

Effizientes Vierwellenmischen durch Ausnutzen von Resonanzen in Quecksilber

Dissertation zur Erlangung des Grades
Doktor der Naturwissenschaften
am Fachbereich 08: Physik, Mathematik und Informatik
der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz

von
Daniel Kolbe
geboren in Bonn

Mainz den 5. Mai 2011

1. Gutachter:

2. Gutachter:

Tag der mündlichen Prüfung: 15. April 2011

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird eine kohärente, kontinuierliche Strahlungsquelle im vakuum-ultravioletten (VUV) Spektrum vorgestellt. Sie basiert auf einem Vierwellenmischprozess in Quecksilberdampf mit Fundamentalstrahlen bei 253,7 nm, 407,9 nm und 545,5 nm Wellenlänge. Diese fundamentalen Strahlen werden durch frequenzverdoppelte bzw. frequenzvervierfachte Festkörperlaser-Systeme bereit gestellt. Durch das Ausnutzen der 6^1S-7^1S Zweiphotonenresonanz und zusätzlich der 6^1S-6^3P Einphotonenresonanz kann der Vierwellenmischprozess deutlich effizienter betrieben werden als zuvor. Eine nahe Einphotonenresonanz verringert die optimale Phasenanpassungstemperatur des Vierwellenmischprozesses, wodurch Druck- und Stoßverbreiterungen des Quecksilbers verkleinert und damit der nichtlineare Prozess effizienter wird. So können Leistungen bis zu 0,3 nW bei 121,56 nm, dem $1S-2P$ Lyman- α Übergang von Wasserstoff, erzeugt werden. Diese Lyman- α Quelle soll für die zukünftige Laserkühlung von Antihydrogen genutzt werden.

Neben der Generierung von Strahlung bei Lyman- α kann, durch Veränderung der dritten Fundamentalwellenlänge, auch Strahlung in der Nähe zu einer Einphotonenresonanz im VUV bei dem 6^1S-12^1P Übergang in Quecksilber durch Vierwellenmischen erzeugt werden. Durch diese weitere Einphotonenresonanz kann die nichtlineare Suszeptibilität, verantwortlich für das Vierwellenmischen, stark vergrößert werden, ohne Einfluss auf die Phasenanpassung zu haben. Damit lässt sich der Mischprozess um drei Größenordnungen effizienter gestalten und Leistungen von 6 μ W im VUV konnten realisiert werden. Dies entspricht einer Leistungssteigerung um einen Faktor 30 im Vergleich zu früheren Quellen.

Darüberhinaus konnte die Zweiphotonenresonanz in Quecksilber ausführlich untersucht werden. Man erhält bei kleinen Rabi-Frequenzen der Fundamentalstrahlen eine geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz, die den gleichen Ursprung wie Dunkelresonanzen in Λ -Systemen hat. Bei hohen Rabi-Frequenzen kann die Anregung in das Zweiphotonen-niveau so stark werden, dass auf dem 7^1S-6^1P Übergang ein Laserprozess initiiert wird. Dieser Prozess wurde hier zum ersten Mal mit kontinuierlichen Fundamentallasern nachgewiesen. Es wird gezeigt, dass der zusätzliche Laserprozess das Vierwellenmischen nicht beeinträchtigt.

Summary

A continuous, coherent radiation source in the vacuum ultraviolet spectral region is presented. It is based on four-wave-mixing in mercury vapor with fundamental beams at 253.7 nm, 407.9 nm und 545.5 nm wavelength. The fundamental beams are produced by frequency doubling and quadrupling of beams from solid-state laser-systems respectively. Due to the 6^1S-7^1S two-photon resonance and additionally the 6^1S-6^3P one-photon resonance the efficiency can be increased compared to former sources. A near one-photon resonance reduces the optimal phasematching temperature of the four-wave-mixing process. This leads to smaller Doppler and pressure broadening resulting in a higher four-wave-mixing efficiency. A maximum power of 0.3 nW at 121.56 nm wavelength, the $1S-2P$ Lyman- α transition in hydrogen, can be obtained. This Lyman- α source is needed for future laser cooling of antihydrogen.

Apart from the Lyman- α generation, four-wave-mixing with a slightly different third fundamental wavelength results in radiation near a one-photon resonance in the VUV at the 6^1S-12^1P transition in mercury. Due to this additional one-photon resonance the nonlinear susceptibility, responsible for the four-wave-mixing, can be strongly increased without an influence on the phasematching. With such a mixing process the efficiency can be enlarged by three orders of magnitude and powers up to 6 μ W in the VUV could be realised. This is an improvement of a factor of 30 to former laser sources in this VUV regime.

Furthermore the two-photon resonance of mercury could be investigated in detail. We observed a velocity-selective double resonance at small Rabi frequencies of the fundamental beams, which has the same origin as dark resonances in Λ -systems. At high Rabi frequencies excitation to the two-photon level can be high enough to initiate a laser process on the 7^1S-6^1P transition. This process could be observed with continuous-wave fundamental lasers for the first time. It can be shown that the additional laser process does not limit the four-wave-mixing efficiency.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Theorie	9
2.1. Zweiphotonenresonanz	9
2.1.1. Herleitung der optischen Blochgleichungen	9
2.1.2. 6^1S-7^1S Übergang in Quecksilber	11
2.2. Vierwellenmischen	14
2.2.1. Herleitung der Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik	15
2.2.2. Vierwellenmischen mit fokussierten Gaußstrahlen	16
2.2.3. Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi^{(3)}$	19
2.2.4. Berechnung der Phasenfehlانpassung Δk	24
2.2.5. Alternative Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi^{(3)}$	28
3. Experimenteller Aufbau	35
3.1. Lasersystem	35
3.1.1. Das UV Lasersystem	36
3.1.2. Das blaue Lasersystem	39
3.1.3. Das grüne Lasersystem	41
3.2. Aufbau der Lyman- α Quelle	45
3.2.1. Strahlüberlagerung	48
4. Ergebnisse	53
4.1. Zweiphotonenresonanz	53
4.1.1. Zweiphotonenresonanz mit weitverstimmttem UV Laser	53
4.1.2. Zweiphotonenresonanz mit nahverstimmtten UV Laser	55
4.1.3. Geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz	58
4.1.4. Verschiebung von Resonanzen durch ein intermediäres Niveau	63
4.1.5. Einfluss der Hyperfeinstruktur auf die Zweiphotonenresonanz	66
4.1.6. Kontinuierlicher Laserprozess durch Zweiphotonenanregung	66
4.2. Vierwellenmischen in Quecksilber	74
4.2.1. Phasenانpassung	75
4.2.2. Vierwellenmischen mit einer Zweiphotonenresonanz	75

4.2.3. Einfluss der 6^3P Resonanz	79
4.2.4. Einfluss des Strahlprofils der Fundamentalstrahlen	84
4.2.5. Dreifach einphotonresonantes Vierwellenmischen	86
5. Zusammenfassung	95
6. Ausblick	97
A. Zusammenstellung der benötigten Quecksilberdaten	103
B. Optische Blochgleichungen für ein Vierniveausystem	108
C. Mathematica Programme	110
Literaturverzeichnis	121

1. Einleitung

Die Welt der Antimaterie stellt bereits seit mehreren Jahrzehnten ein faszinierendes Feld für die Forschung dar und inspirierte nicht nur einmal auch die Welt der Medien und der Science-Fiction. Eine viel diskutierte und immernoch offene Frage ist, wie das Ungleichgewicht zwischen Materie und Antimaterie im Universum erklärt werden kann [Col02]. In einem durch den *Big Bang* entstandenen Universum müsste ein Gleichgewicht zwischen beiden Teilen beobachtet werden. Eine mögliche Erklärung wäre eine Verletzung der CPT-Symmetrie, also die Symmetrie unter gleichzeitiger Umkehrung des Ladungsvorzeichens (**C**harge), der Parität (**P**arity) und der Zeit (**T**ime) [BCKP97]. Nach der CPT-Symmetrie besitzt ein Antiteilchen die gleiche träge Masse und das gleiche gyromagnetische Verhältnis aber entgegengesetzte Ladung und magnetisches Moment. Nach [BKR99] muss jede Lorentz-invariante Quantenfeldtheorie, wie das Standardmodell oder die Quantenelektrodynamik, diese Symmetrie erfüllen. Eine Verletzung wäre demnach von fundamentaler Bedeutung. Der genaueste Test der CPT-Symmetrie konnte bisher am Zerfall des neutralen Kaons gemacht werden. Die relative Massendifferenz von Teilchen und Antiteilchen konnte zu kleiner 1×10^{-18} bestimmt werden [eaPDG08]. Ein weiteres System, an dem ein Test der CPT-Symmetrie aussichtsreich erscheint, ist Wasserstoff. Beim Vergleich der $1S-2S$ Übergangsfrequenz zwischen Wasserstoff und Antiwasserstoff kann ein sehr stringenter Test durchgeführt werden. Voraussetzung dafür ist die sehr hohe Genauigkeit bei der $1S-2S$ Spektroskopie an gewöhnlichem Wasserstoff. Diese wurde mit hoher Präzision bis auf eine relative Genauigkeit von $1,8 \times 10^{-14}$ vermessen [NHR⁺00, FKZ⁺04]. Eine Vermessung von Antiwasserstoff steht jedoch noch aus. Dafür muss zunächst eine ausreichende Menge Antiwasserstoff hergestellt werden, um Experimente daran durchführen zu können.

Auch kann neutraler Antiwasserstoff benutzt werden um direkt die Gravitationswirkung von Materie auf Antimaterie zu testen [Gab88]. Es ist noch vollkommen unklar, sowohl theoretisch als auch experimentell, ob Antimaterie von Materie angezogen oder abgestoßen wird. Die Anfälligkeit geladener Teilchen auf elektrische Felder macht es praktisch unmöglich diesen Effekt bei geladener Antimaterie zu beobachten [DROM92]. Neutrale Antiatome würden hier einen entscheidenden Vorteil bringen [WH04].

Nach der Postulierung der Antimaterie von Dirac [Dir28, Dir31], war es Carl Andersen 1932, der den ersten experimentellen Nachweis von Antimaterie in Form von positiv geladenen Elektronen, den Positronen, in einer Nebelkammer durchführte [And32, And33]. Weitere 23 Jahre später gelang es auch das Antiproton experimentell nachzuweisen [CSWY55]. Durch Beschuss eines Kupfertargets mit Protonen konnten un-

ter einem großen Untergrund von π^- Mesonen einige wenige Antiprotonen detektiert werden. Die erste Herstellung von Antiwasserstoff durch Zusammenbringen dieser beiden Antiteilchen konnte 1996 am CERN im LEAR (**L**ow **E**nergy **A**ntiproton **R**ing) beobachtet werden [BBB⁺96]. Wenige Jahre später konnte auch am Fermilab die Produktion von Antiwasserstoff nachgewiesen werden [BCG⁺98]. Bei beiden Experimenten war jedoch der Antiwasserstoff mit 90% der Lichtgeschwindigkeit zu schnell um Experimente über den reinen Nachweis hinaus durchführen zu können. Die Herstellung von kaltem Wasserstoff gelang 2002 der ATHENA-Kollaboration [AAB⁺02] und kurz darauf auch der ATRAP-Kollaboration [GBO⁺02]. In beiden Experimenten wurden Antiprotonen und Positronen bei kryogenen Temperaturen in einer verschachtelten Penningfalle zunächst getrennt gespeichert und gekühlt (siehe Abbildung 1.1), um sie dann kontrolliert zusammenzubringen. Durch Dreikörper-Rekombinationen kann dann Antiwasserstoff entstehen. So konnten bei ATHENA 50.000 bzw. bei ATRAP 170.000 Antiwasserstoffatome hergestellt werden. Eine weitere vielversprechende Variante der Antiwasserstoffproduktion ist der doppelte Ladungsaustausch, bei dem ein Positronium Atom mit einem Antiproton zu einem Antiwasserstoff rekombiniert und das übrigbleibende Elektron überschüssigen Impuls wegträgt [SSS⁺04]. Durch die Herstellung des Positroniums in einem hohen Rydbergzustand kann der Wirkungsquerschnitt für solch einen Stoßprozess stark vergrößert werden.

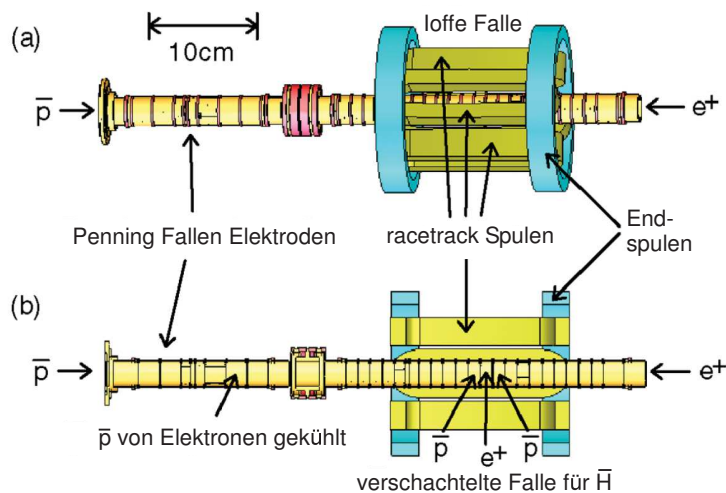


Abbildung 1.1: Verschachtelte Penning-Ioffe-Falle zur Herstellung kalten Antiwasserstoffes. Die kalten Antiprotonen werden von links in die erste Penningfalle eingebracht. Dort werden sie zunächst weiter abgekühlt bis sie dann mit denen von rechts kommenden Positronen in der verschachtelten Penningfalle zusammengebracht werden. Dem Penningfallenpotential ist eine Ioffe-Falle überlagert um den neutralen Antiwasserstoff zu speichern.

Der geformte neutrale Antiwasserstoff kann in der auf elektrischen Feldern basierenden Penningfalle nicht gespeichert werden. Für Hochpräzisionsexperimente ist die Speicherung jedoch essentiell. Dies kann durch die Überlagerung eines zusätzlichen magneti-

schen Fallenpotentials in der Ioffe-Konfiguration erreicht werden, wie es für gewöhnlichen Wasserstoff bereits verwendet wurde [HKD⁺87, CFK⁺96]. In solch einem Aufbau konnte nun erstmals die Herstellung und Speicherung von wenigen einzelnen Antiwasserstoffatomen nachgewiesen werden [AABR⁺10]. Dazu wurde nach der Herstellung der Antiatome alle Antiprotonen aus der Falle entfernt und dann schnell die Magnetfalle ausgeschaltet um Annihilationen von Antiwasserstoff zu beobachten. So konnten insgesamt 38 Atome in insgesamt 335 Experimentläufen nachgewiesen werden. Dies ist zwar für eine genaue Spektroskopie noch zu wenig, gibt aber Grund zur Annahme, dass in naher Zukunft genügend gefangener Antiwasserstoff für Hochpräzisionsexperimente zur Verfügung steht.

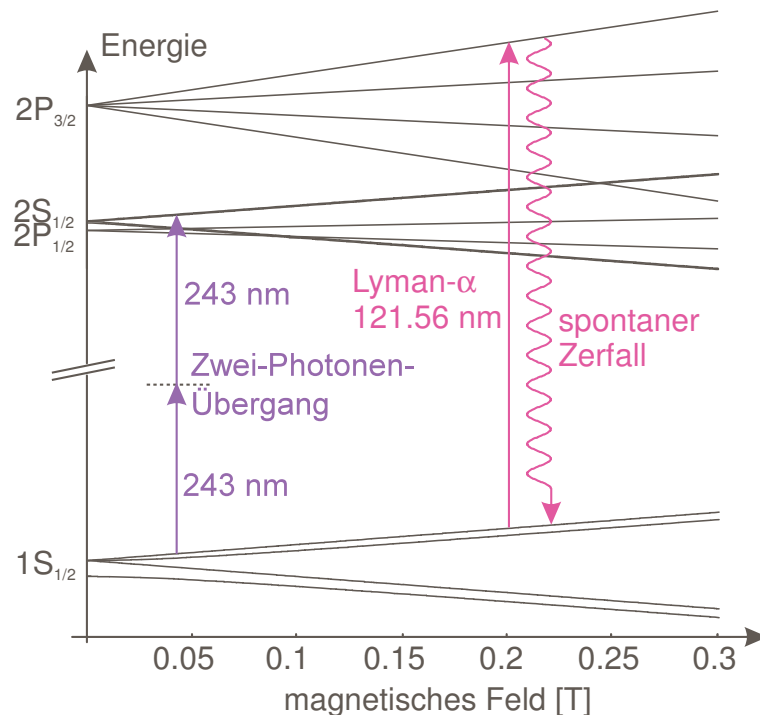


Abbildung 1.2: Aufspaltung der Energieniveaus von Wasserstoff in einem Magnetfeld. Lage der Energieniveaus gegenüber der Magnetfeldstärke. Der $1S_{1/2}$ - $2S_{1/2}$ Übergang dient zur Präzisionsspektroskopie. Um den Wasserstoff ins Fallenzentrum zu kleinen Magnetfeldstärken zu kühlen kann der geschlossene $1S_{1/2}$ - $2P_{3/2}$ Übergang bei einer Wellenlänge von 121,56 nm (Lyman- α) genutzt werden.

Für die $1S$ - $2S$ Spektroskopie von Antiwasserstoff in einer Magnetfalle muss die Zeemanaufspaltung in Magnetfelder beachtet werden. In Abbildung 1.2 ist die Lage der Energieniveaus von Wasserstoff gegenüber der Magnetfeldstärke aufgetragen. Es bleibt für den $1S_{1/2}$ - $2S_{1/2}$ ($F=1, m_F=1 \rightarrow F'=1, m_{F'}=1$) Übergang eine Magnetfeldabhängigkeit von 186 Hz pro Tesla. Das führt zu einer positionsabhängigen Verschiebung der Spektroskopielinie und damit zu einer Verbreiterung [Ces01, HZ93, Wal93]. Somit ist es notwendig den Antiwasserstoff weiter herunterzukühlen um ihn ins Fallenzentrum zu bringen, wo kleine und homogene Magnetstärken vorliegen. Dies kann durch Laserkühlen auf dem starken geschlossenen $1S_{1/2}(m_j = 1/2)$ - $2P_{3/2}(m_j = 3/2)$ Über-

gang (Lyman- α) geschehen. Die dafür notwendige Wellenlänge liegt mit 121,56 nm tief im vakuum-ultravioletten (VUV) Spektralbereich, der mit Laserquellen nur schwer zugänglich ist. Die bisher einzige Möglichkeit bietet nichtlineare Frequenzmischung. Nichtlineare Prozesse lassen sich mit gepulsten Fundamentalstrahlen wegen der höheren Intensitäten leichter realisieren. So wurden bereits viele gepulste Lyman- α Quellen aufgebaut [MIK78, Cot79, Wal80, MSM⁺90, PRL⁺93, MF98], die alle auf Vierwellenmischen in Edelgasen oder Metaldämpfen basieren. Dazu werden drei Fundamentalstrahlen in die Gas- bzw. Dampfregion geleitet in der durch den nichtlinearen Prozess eine Polarisation bei der Summenfrequenz induziert wird, aus der das erzeugte Feld resultiert. Mit solch einer gepulsten Quelle konnte auch schon das Kühlen von Wasserstoff auf 8 mK demonstriert werden [SWL⁺93].

Auch für Gravitationsexperimente ist das Herunterkühlen von Antiwasserstoff essentiell. Antiwasserstoff bei 8 mK hat immernoch eine Steighöhe von bis zu 3,4 m gegen das Gravitationsfeld der Erde. Laserkühlung wäre also auch hier ein erster wichtiger Schritt für Präzisionsexperimente.

Eine kontinuierliche Lyman- α Quelle hat für das Kühlen von Antiwasserstoff entscheidende Vorteile. Zum Einen durch die geringere Linienbreite einer kontinuierlichen Laserquelle, kann das Pumpen in magnetische Unterniveaus, die nicht mehr im Magnetfeld gefangen sind, vermieden werden. Zum Anderen ist die Kühlrate bei gepulsten Quellen hauptsächlich durch das Puls zu Pause Verhältnis limitiert, so dass bei gepulsten Quellen aus höheren Leistungen keine deutliche Erhöhung der Kühlrate resultiert. Die bisher einzige kontinuierliche Lyman- α Quelle wurde durch Vierwellenmischen in Quecksilberdampf realisiert [EWH99]. Es wurden maximale Leistungen von bis zu 20 nW bei der Lyman- α Wellenlänge erzeugt, was schon im Bereich der Durchschnittsleistung der gepulsten Laserquelle, die zum Kühlen vom Wasserstoff benutzt wurde [EWH01], liegt. Ein weiterer Vorteil eines kontinuierlichen Kühllasers, wäre eine Erhöhung der Empfindlichkeit der Spektroskopie durch ein sogenanntes Shelving-Schema [HZ93]. Dabei wird abwechselnd Kühl- und Spektroskopielaser eingestrahlt und die Streuung von Lyman- α Strahlung beobachtet. Die Anregung in das langlebige $2S$ Niveau durch den Spektroskopielaser verursacht eine Reduktion der Streurrate, bedingt durch die verringerte Zahl von Antiwasserstoff im Grundniveau. Dafür wären jedoch deutlich höhere Lyman- α Leistungen nötig [WPEH01].

Ziel unserer Arbeitsgruppe ist der Aufbau einer verlässlichen kontinuierlichen Lyman- α Laserquelle. Die Basis bilden Hochleistungs-Festkörperlaser im Infraroten, die über Frequenzverdopplungen auf die nötigen Wellenlängen für die Fundamentalen gebracht werden. Die nichtlineare Suszeptibilität, verantwortlich für ein effizientes Vierwellenmischen, kann durch das Ausnutzen von Resonanzen des nichtlinearen Mediums erhöht werden. Quecksilber eignet sich aus mehreren Gründen sehr gut als nichtlineares Medium. Erstens hat es bei schon moderaten Temperaturen eine recht große Dampfdichte. Zweitens ist die Ionisationsgrenze jenseits der Lyman- α Anregung, wird also nicht von Lyman- α ionisiert und Drittens hat Quecksilber viele Niveaus die zur Erhöhung der

nichtlinearen Suszeptibilität genutzt werden können. Eine vielfach genutzte Variante zur Steigerung der Effizienz des Vierwellenmischens ist das Ausnutzen einer Zweiphotonenresonanz [SA87].

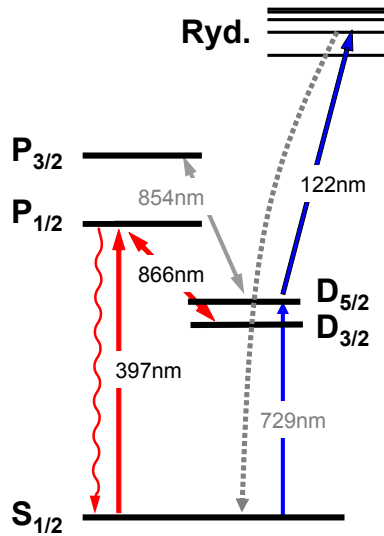


Abbildung 1.3: Termschema von Calciumionen. Das metastabile $3^2D_{5/2}$ Niveau kann aus dem $4^2S_{1/2}$ Grundniveau über Zweiphotonenanregung präpariert werden. Die Anregung aus dem $3^2D_{5/2}$ in ein Rydbergzustand liegt im VUV bei ca. 122 nm. Ein angeregtes Ion zerfällt in das Grundniveau und kann über Fluoreszenz auf dem $4^2P_{1/2}-4^2S_{1/2}$ Übergang beim Einstrahlen von Strahlung bei 397 nm und einem Rückpumplaser bei 866 nm nachgewiesen werden.

Neben der Lyman- α Wellenlänge gibt es noch weiteren Bedarf an einer kontinuierlichen VUV Laserquelle. Die Anregung von Ionen in Rydbergzustände verspricht ein gutes Werkzeug für Quanteninformation in einer Paul Falle zu sein [MLLZ08]. Dadurch kann man die Möglichkeit der Speicherung von Ionen in Paulfallen [LBMW03] mit dem Dipol-Blockade Mechanismus [LFC+01, ARLW+07, HRB+07] von Rydbergzuständen verbinden um ein Zwei-Qubit (Quantenbit) Gatter aufzubauen [JCZ+00]. Dies hat, verglichen mit Neutralatomfallen, den Vorteil, dass durch die Dipolinteraktion bereits ohne zusätzliches Fallenpotential eine lineare Kette bzw. Gitter an Ionen gebildet wird und die Dephasierungszeit größer ist. Ein guter Kandidat zur Rydberganregung sind Calciumionen. Hier könnte eine Präparation in das metastabile $3^2D_{5/2}$ Niveau über Zweiphotonenanregung aus dem $4^2S_{1/2}$ Grundniveau erfolgen um dann in einen nP Rydbergzustand mit Hauptquantenzahl n weiter angeregt zu werden (siehe Abbildung 1.3). Der Nachweis der Rydberganregung könnte über erhöhte Fluoreszenz bei dem $4^2S_{1/2}-4^2P_{1/2}$ Übergang beim Einstrahlen von dem Anregungsfeld bei 397 nm und dem Rückpumplaser bei 866 nm erfolgen. Durch die starke Bindung des Valenzelektrons an den zweifach positiv geladenen Atomrumpf liegt die nötige Anregungswellenlänge im VUV Bereich. Für eine Anregung in das Rydbergniveau mit $n = 10$ ist bereits eine Wellenlänge von 131 nm nötig. Die Anregungswellenlänge konvergiert schnell zu dem Ionisationslimit bei 121,8 nm. Durch das kleine Dipolmatrixelement und die kleine

Linienbreite des Rydbergniveaus, ist auch hier eine kontinuierliche leistungsstarke VUV Quelle essentiell um die nötige Anregungswahrscheinlichkeit zu erhalten.

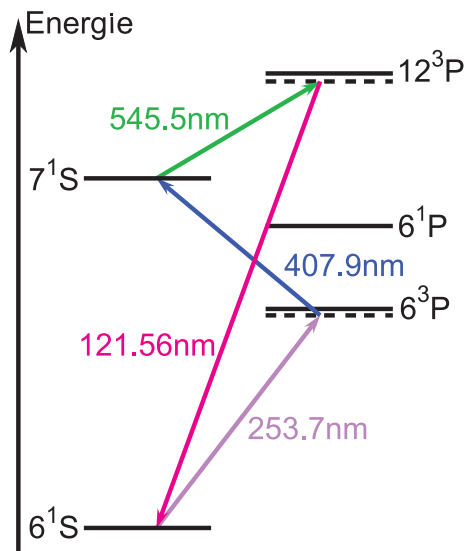


Abbildung 1.4: Quecksilber Termschema. Der UV Laser (253,7 nm) und der blaue Laser (407,9 nm) ermöglichen das Ausnutzen der 6^1S – 7^1S Zweiphotonenresonanz. Dabei kann die UV Wellenlänge beliebig nahe zu dem 6^3P Niveau eingestrahlt werden. Der grüne Laser bei 545,5 nm legt die Wellenlänge der erzeugten Strahlung durch Summenfrequenzmischung fest.

Ziel dieser Arbeit, ist der Aufbau einer kontinuierlichen VUV Quelle durch Vierwellenmischen in Quecksilber. Dazu werden drei fundamentale Laser bei Wellenlängen von 253,7 nm (UV), 407,9 nm (blau) und 545,5 nm (grün) benutzt. Mit Hilfe des UV und des blauen Lasers kann die 6^1S – 7^1S Zweiphotonenresonanz in Quecksilberdampf ausgenutzt werden (siehe Abbildung 1.4). Die UV Frequenz ist dabei nahverstimmt zu der 6^1S – 6^3P Resonanz, so dass der Einfluss von dieser Resonanz untersucht werden kann. Ausschlaggebend für die erzeugte Wellenlänge ist die Wellenlänge des grünen Lasers. Für Lyman- α muss diese bei 545,5 nm liegen.

Die vorliegende Arbeit unterteilt sich in drei Teile. In Kapitel 2 wird die für das Verständnis nötige Theorie diskutiert. Dabei wird zunächst auf die Zweiphotonenresonanz eingegangen, die für die aufgebaute Laserquelle essentiell ist. Danach wird die nichtlineare Optik insbesondere das Vierwellenmischen besprochen und die wichtigen Größen der nichtlinearen Suszeptibilität und der Phasenfehlanpassung hergeleitet. In Kapitel 3 wird der Aufbau der Lyman- α Quelle beschrieben. Dazu gehören die fundamentalen Lasersysteme, die Strahlführung und die Quecksilberdampfzelle. In Kapitel 4 werden die erzielten Ergebnisse präsentiert. Zunächst wird ausführlich über alle Prozesse, die in der Zweiphotonenresonanz beobachtet wurden, eingegangen. Dazu gehören die Zweiphotonenresonanz bei weit- und nahverstimmttem UV Laser, eine geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz und ein kontinuierlicher Laserprozess, der durch eine Zweiphotonenresonanz gepumpt wird. Danach werden die Ergebnisse des Vierwellenmischens besprochen. Dabei wird vorallem auf das Ausnutzen einer Einphotonresonanz

und der Zweiphotonenresonanz eingegangen. Das zusätzliche Ausnutzen einer weiteren Einphotonenresonanz, und damit das Erweitern des Vierwellenmischprozess auf ein dreifach einphotonresonantes Schema, kann die Effizienz stark erhöhen. Diese Möglichkeit wird zum Abschluss dargestellt.

2. Theorie

2.1. Zweiphotonenresonanz

Für den Vierwellenmischprozess zur Erzeugung von Strahlung bei Lyman- α ist es unabdingbar eine Zweiphotonenresonanz auszunutzen [PFH⁺05]. Wir wollen uns deshalb in diesem Kapitel die im Quecksilber benutzte 6^1S-7^1S Zweiphotonenresonanz genauer anschauen. Wir bedienen uns bei dem Formalismus der optischen Blochgleichungen (OBE - *optical Bloch equations*), die von Bloch erstmals für ein Zweiniveausystem im Mikrowellenbereich aufgestellt wurden [Blo46]. Dazu werden zunächst allgemein die Blochgleichungen auf ein Dreiniveausystem erweitert. Dies wird im ersten Abschnitt dieses Kapitels dargestellt. Anschließend wird auf die 6^1S-7^1S Zweiphotonenresonanz in Quecksilber eingegangen und erläutert, welchen Einfluss dies auf die OBE hat. Dies bildet die Grundlage für die in Kapitel 4.1 besprochenen Zweiphotonenresonanzmessungen in Quecksilber.

2.1.1. Herleitung der optischen Blochgleichungen

Ziel dieses Abschnitts wird es sein, die optischen Blochgleichungen für ein Dreiniveausystem mit zwei treibenden Lichtfeldern aufzustellen. In Abbildung 2.1 ist schematisch der Zweiphotonenübergang in einem Termschema eines Dreiniveausystems dargestellt. Dabei treibt ein Lichtfeld mit der Frequenz ω_α den Übergang von Niveau $|1\rangle$ zu Niveau $|2\rangle$ mit dem Energieabstand $\hbar\omega_{12}$. Die Verstimmung zwischen eingestrahelter Frequenz und Übergangsfrequenz ist $\delta_{12} = \omega_\alpha - \omega_{12}$ und ist somit negativ für eingetragte Frequenzen kleiner als die Übergangsfrequenz. Ebenso treibt das Lichtfeld mit der Frequenz ω_β den Übergang von Niveau $|2\rangle$ zu Niveau $|3\rangle$ mit der Übergangsfrequenz ω_{23} und der dazugehörigen Verstimmung δ_{23} .

Der zugehörige Hamiltonoperator für dieses Problem im Wechselwirkungsbild ist gegeben durch [Boy08]:

$$H(t) = H_0 + V(t), \quad (2.1)$$

wobei H_0 der Hamiltonoperator des ungestörten System ist und sich mit den Energien $E_1 = 0$, $E_2 = \hbar\omega_{12}$ und $E_3 = \hbar\omega_{13} = \hbar(\omega_{12} + \omega_{23})$ als Diagonalmatrix mit den Elementen

$$H_{0,nm} = E_n\delta_{nm} \quad (2.2)$$

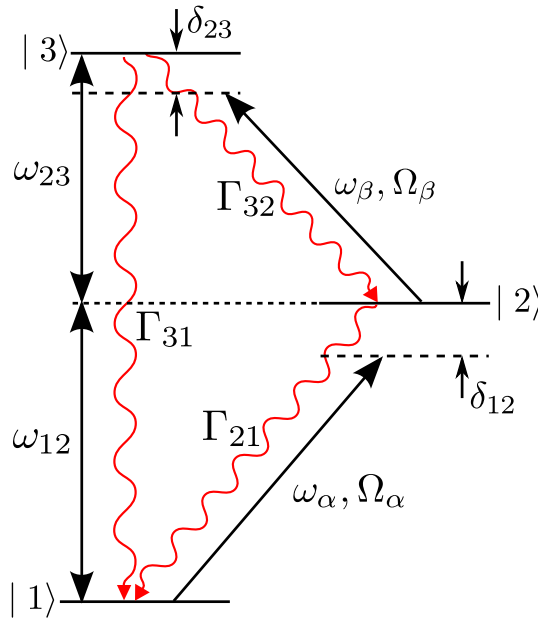


Abbildung 2.1: Zweiphotonenübergang im Termschema eines Dreiniveausystems.

schreiben lässt. Der Wechselwirkungsterm $V(t)$ beschreibt die Wechselwirkung zwischen dem Atom und dem Lichtfeld und ist gegeben durch:

$$V(t) = -\mu E(t). \quad (2.3)$$

Dabei ist μ das Übergangsmatrixelement und $E(t)$ das elektrische Feld des eingestrahlenen Lichtes. Die Diagonalelemente von μ verschwinden, so dass auch die Diagonalelemente von $V(t)$ verschwinden und die Nebendiagonalelemente sind gegeben durch:

$$V_{nm} = V_{mn}^* = -\mu_{nm} E(t). \quad (2.4)$$

Die Populationen und Kohärenzen des Gesamtsystems lassen sich in der Dichtematrix

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} & \rho_{13} \\ \rho_{21} & \rho_{22} & \rho_{23} \\ \rho_{31} & \rho_{32} & \rho_{33} \end{pmatrix}, \quad (2.5)$$

zusammenfassen. Dabei stehen die Diagonalelemente für die Besetzungen in den entsprechenden Energieniveaus und Nebendiagonalelemente für die Kohärenzen zwischen zwei Energieniveaus. Die Zeitentwicklung dieser Dichtematrix wird beschrieben durch die von-Neumann-Gleichung:

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho = [H, \rho]. \quad (2.6)$$

Mit dem Ansatz $E(t) = E_\alpha \cos(\omega_\alpha t) + E_\beta \cos(\omega_\beta t)$ für das Lichtfeld und dem Einführen der resonanten Rabi-Frequenz als charakteristische Größe, die sich aus der Licht-Atom-Wechselwirkung ergibt mit $\Omega = \mu E_0 / \hbar$ erhält man die optischen Blochgleichungen:

$$\dot{\rho}_{11} = i\frac{\Omega_\alpha}{4}(\rho_{21} - \rho_{12}), \quad (2.7)$$

$$\dot{\rho}_{22} = i\frac{\Omega_\alpha}{4}(\rho_{12} - \rho_{21}) + i\frac{\Omega_\beta}{4}(\rho_{32} - \rho_{23}), \quad (2.8)$$

$$\dot{\rho}_{33} = i\frac{\Omega_\beta}{4}(\rho_{23} - \rho_{32}), \quad (2.9)$$

$$\dot{\rho}_{13} = -i(\delta_{12} + \delta_{23})\rho_{13} + i\frac{\Omega_\alpha}{4}\rho_{23} - i\frac{\Omega_\beta}{4}\rho_{12}, \quad (2.10)$$

$$\dot{\rho}_{23} = -i\delta_{23}\rho_{23} + i\frac{\Omega_\beta}{4}(\rho_{22} - \rho_{33}) - i\frac{\Omega_\alpha}{4}\rho_{13}, \quad (2.11)$$

$$\dot{\rho}_{12} = -i\delta_{12}\rho_{12} + i\frac{\Omega_\alpha}{4}(\rho_{22} - \rho_{11}) - i\frac{\Omega_\beta}{4}\rho_{13}. \quad (2.12)$$

Dabei wurde mit der *rotating wave approximation* (RWA) schnell rotierende Terme gegenüber langsam rotierender Terme vernachlässigt. In den optischen Blochgleichungen sind Dämpfungsterme noch nicht enthalten. Sie sind nicht im Dichtematrixformalismus enthalten und müssen nachträglich phänomenologisch eingeführt werden. Dazu wird den Diagonalelementen ein Dämpfungsterm gemäß der Zerfallszeit des entsprechenden Niveaus hinzugefügt. Die Nebendiagonalelemente werden durch die halbe Summe der Zerfallsraten aller beteiligten Niveaus gedämpft [Boy08]. Gleichzeitig soll das System geschlossen sein, das heißt $\rho_{11} + \rho_{22} + \rho_{33} = 1$ soll gelten. Damit und mit den Gleichungen (2.7-2.12) haben wir ein Gleichungssystem aufgestellt, welches es zu lösen gilt. Die Lösung kann in diesem Fall analytisch mit Hilfe eines algebraischen Lösungsprogramms (Mathematica) gefunden werden. Im Vergleich zu der angegebenden Lösung aus [BH75] können so beliebige Zerfallsraten für alle beteiligten Niveaus eingeführt werden.

2.1.2. 6^1S-7^1S Übergang in Quecksilber

Um die Lösungen der optischen Blochgleichungen für das Dreiniveausystem auf Quecksilber zu übertragen, müssen die spezifischen Daten von Quecksilber in unsere Rechnung eingefügt werden. In Abbildung 2.2 ist das Energietermschema des betrachteten Dreiniveausystems in Quecksilber dargestellt. Dabei findet der untere Übergang (ω_{12} in Abbildung 2.1) zwischen dem 6^1S und dem 6^3P Zustand bei 253,7 nm und der obere Übergang (ω_{23}) zwischen dem 6^3P zu 7^1S Zustand bei 408 nm statt.

Da in diesem Experiment natürlich vorkommendes Quecksilber verwendet wurde, muss das natürlich vorkommende Isotopenverhältnis von Quecksilber zugrunde gelegt werden. Quecksilber hat insgesamt sieben stabile Isotope mit den Massezahlen: 196, 198, 199, 200, 201, 202 und 204. Durch die Isotopieverschiebung sind die Energieniveaus der einzelnen Isotope verschoben [MK07]. Die Zweiphotonenresonanz tritt damit für verschiedene Isotope bei verschiedenen Energien auf. Die Häufigkeit der einzelnen Isotope und die Verstimmungen der Energieniveaus durch die Isotopieverschiebung sind im Anhang A aufgelistet und in der Literatur zu finden [ZSB89, GV75, GLV77].

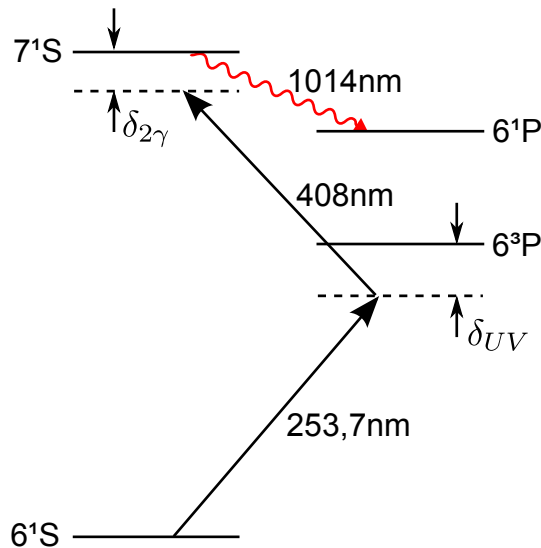


Abbildung 2.2: Dreiniveausystem in Quecksilber. Das verwendete Dreiniveausystem in Quecksilber wird von dem 6^1S , 6^3P und 7^1S Niveau gebildet. Der UV Laser bei $253,7\text{ nm}$ ist nahverstimmt (δ_{UV}) zu dem 6^1S – 6^3P Übergang. Die Zweiphotonenverstimmung $\delta_{2\gamma}$ ist die Verstimmung der Summenfrequenz von blau (408 nm) und UV zu dem Zweiphotonenübergang. Das 7^1S Niveau zerfällt größtenteils in das 6^1P Niveau unter Fluoreszenz bei 1014 nm .

Für die Berechnung der Zweiphotonenresonanz sind noch folgende Größen von Interesse: Die Rabifrequenzen für die beiden angeregten Übergänge und die Zerfallsraten der Dichtematrixelemente. Darüberhinaus, da wir ein thermisches Gas betrachten, noch die Verbreiterung durch den Dopplereffekt.

Rabifrequenzen

Die Rabifrequenz eines Überganges ist definiert durch $\Omega = \mu E/\hbar$ [Boy08]. Dabei ist μ das Übergangsdipolmoment und E die Amplitude des elektrischen Feldes. Die Amplitude des elektrischen Feldes ist verbunden mit der Intensität des eingestrahnten Lichtes über:

$$I = \frac{1}{2}\epsilon_0 c E^2 \quad (2.13)$$

und die Intensität über die experimentell leichter zugänglichen Größen der Leistung P und Strahlgröße definiert über:

$$I = \frac{P}{A} = \frac{P}{\pi r^2} \quad (2.14)$$

wobei A die Strahlfläche darstellt und r den Strahlradius. Für die hier vorliegende Rechnung wurde stets mit einer konstanten Intensität und damit konstanten Rabifrequenz gerechnet. Bei einer näheren Betrachtung müsste jedoch für jeden Punkt im Strahl eine eigene Rabifrequenz berechnet werden. Dies wurde hier vernachlässigt, da der größte Einfluss auf das Zweiphotonensignal von dem Ort mit der höchsten Intensität ausgeht und Orte mit geringerer Intensität einen geringeren Einfluss haben. Die

Übergangsmatrixelemente für die beiden Übergänge sind im Anhang A aufgelistet. Die Leistungen, die für unsere Messungen zur Verfügung stehen bewegen sich für UV im Bereich von 30 mW bis 300 mW und für blau im Bereich von 2 mW bis 400 mW. Durch Veränderung der Leistung und durch Veränderung der Fokussierung lassen sich so Rabi-frequenzen von wenigen MHz bis zu 10 GHz einstellen. Geringe Rabi-frequenzen sind vor allem interessant für die Messungen aus Kapitel 4.1.3, in dem geschwindigkeitsselektive Doppelresonanzen untersucht wurden. Für die Messungen bei hohen Rabi-frequenzen wurden die Strahlen auf wenige μm herunterfokussiert. Die daraus resultierenden hohen Rabi-frequenzen, verbunden mit höheren Temperaturen des Quecksilbers, sind vor allem bei Messungen zur zweiphotonengepumpten spontanen Lasertätigkeit verwendet worden, welche näher in Kapitel 4.1.6 beschrieben wird.

Zerfallsraten

Die reinen Zerfallsraten der Energieniveaus bedingt durch die endliche Lebensdauer sind in Anhang A aufgelistet. Diese dämpfen die Diagonalelemente der Dichtematrix. Darüber hinaus kommt durch Stoßverbreiterung ein weiterer Beitrag zu den Zerfallsraten hinzu. Es ergibt sich somit für den Zustand i :

$$\Gamma_i^{tot} = \Gamma_i^{sp} + \Gamma_i^{st}. \quad (2.15)$$

Dabei steht *tot* für die totale, *sp* für die spontane und *st* für die von Stößen verursachte Zerfallsrate. Für die Dämpfung der Nebendiagonalelemente wurde die halbe Zerfallsrate aller beteiligten Energieniveaus verwendet [Boy08]. Zusätzlich kommen hier dephasierende Stöße hinzu. Bei dephasierenden Stößen ändert sich die Besetzung eines Energieniveaus nicht, sondern nur die Kohärenz zwischen zwei Energieniveaus geht verloren. Somit gibt es einen weiteren Effekt der nur auf die Nebendiagonalelemente wirkt. Es folgt für die Zerfallsrate des Elementes ij :

$$\Gamma_{ij}^{tot} = \frac{1}{2} (\Gamma_i^{tot} + \Gamma_j^{tot}) + \Gamma_{ij}^{ph}. \quad (2.16)$$

Dabei steht *ph* für dephasierende Stöße.

Diese zusätzlichen Verbreiterungen werden bei den optischen Blochgleichungen (2.7) hinzugefügt und bilden dann die gesamte homogene Linienverbreiterung.

Dopplerverbreiterung

Ein weiterer Verbreiterungsmechanismus ist der Dopplereffekt. Durch die thermische Bewegung der Quecksilberatome erfahren verschiedene Quecksilberatome verschiedene treibende Frequenzen. So ist die Übergangsfrequenz bei einem Atom, das sich auf den Laser zubewegt geringer als bei einem Atom, welches sich von dem Laser wegbewegt. Da dies keine allgemeine Verbreiterung darstellt, im Gegensatz zu den vorangehenden Verbreiterungen durch begrenzte Lebensdauer und Stöße, nennt sich diese Verbreiterung inhomogen. Diese Verbreiterung wird formal durch eine Faltung der Lösung mit

einer eindimensionalen Boltzmannverteilung erreicht. Dazu werden folgende Ersetzungen in den Lösungen der optischen Blochgleichungen gemacht:

$$\delta_{12} \rightarrow \delta_{12} + k_{12}v, \quad (2.17)$$

$$\delta_{23} \rightarrow \delta_{23} + k_{23}v. \quad (2.18)$$

Dies bedeutet, dass ein Atom mit Geschwindigkeit v eine andere Verstimmung der Laserfrequenzen erfährt gemäß der Dopplerformel wobei k_{ij} der Wellenvektor des eingestrahlten Lichtes darstellt.

Die eindimensionale Boltzmannverteilung ist gegeben durch:

$$f(v) = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_0} e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2}. \quad (2.19)$$

Sie gleicht einer normierten Gaußverteilung mit einer vollen Breite von v_0 , welche gegeben ist durch die häufigste Geschwindigkeit

$$v_0 = \sqrt{\frac{2k_bT}{m}} \quad (2.20)$$

bedingt durch die Temperatur T des Quecksilberdampfes. Dabei ist m die Masse eines Quecksilberatoms und k_b die Boltzmannkonstante. Die Faltung kann numerisch mit Hilfe eines C++-Programmes und der für numerische Berechnungen spezialisierten Bibliothek *numerical Recipes in C++* berechnet werden [Bey08, BKS⁺09].

Beobachtung der Zweiphotonenresonanz

Experimentell kann die Zweiphotonenresonanz über die Besetzung des 7^1S Niveaus beobachtet werden. Bei Quecksilber zerfällt das 7^1S Niveau zu 80% in das 6^1P Niveau bei einer Wellenlänge von 1014 nm (siehe auch Abbildung 2.2). Dieses infrarote Licht kann mit einer Photodiode detektiert werden. Die geringen Intensitäten können mit Hilfe eines Lock-In Verstärkers verstärkt werden und Untergrund von dem Signal abgezogen werden, dafür wird einer der Laser gechoppt. Die Intensität des infraroten Lichtes ist, im Falle von Fluoreszenz, proportional zu der Besetzung in diesem Niveau.

2.2. Vierwellenmischen

Um einen effektiven Vierwellenmischsystem aufzubauen ist es von entscheidender Bedeutung, sich der Theorie des Vierwellenmischens zu widmen. Ausgehend von der Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik wird in diesem Kapitel zunächst das Vierwellenmischen mit ebenen Wellen, dann mit fokussierten Gaußstrahlen hergeleitet, um dann die Berechnung der wichtigen Größen, der nichtlinearen Suszeptibilität und der Phasenanpassung zusammenzufassen.

2.2.1. Herleitung der Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik

Die Polarisation eines Mediums durch ein eingestrahktes Lichtfeld kann in den meisten Fällen als linear angenommen werden. Bei ausreichend hohen Intensitäten ist die nichtlineare Polarisation gegenüber der linearen Polarisation jedoch nicht mehr vernachlässigbar und die gesamte Polarisation des Medium beträgt

$$\vec{P} = \vec{P}^L + \vec{P}^{NL}, \quad (2.21)$$

$$\vec{P}^{NL} = \epsilon_0 \left(\chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \right). \quad (2.22)$$

Dabei sind $\chi^{(i)}$ Suszeptibilitäten i -ter Ordnung. Aus Symmetriegründen verschwinden in isotropen Medien die Suszeptibilitäten gerader Ordnung [Boy08]. In Gasen ist somit der erste nichtlineare Prozess, der bei hohen Intensitäten auftritt, ein Prozess dritter Ordnung. Dabei erzeugen drei sogenannte *Fundamentalstrahlen* eine vierte Welle, deren Frequenz eine Linearkombination der fundamentalen Frequenzen ist:

$$\omega_4 = \pm\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3; \quad \omega_4 > 0. \quad (2.23)$$

Dieser nichtlineare Prozess wird deshalb auch als Vierwellenmischen bezeichnet, da insgesamt vier verschiedene Wellen beteiligt sind. Beiträge höherer Ordnung sind bei unseren erreichbaren Intensitäten vernachlässigbar [Rei84] und werden hier nicht weiter betrachtet. Suszeptibilitäten i -ter Ordnung sind mathematisch Tensoren $(i + 1)$ -ter Ordnung. Damit ergibt sich für die nichtlineare Polarisation:

$$P_i^{NL} = \epsilon_0 \sum \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l, \text{ mit } i, j, k, l \in \{x, y, z\}. \quad (2.24)$$

Sind nun alle eingehenden Lichtfelder linear polarisiert, so kann, wiederum wegen der Isotropie, die Antwort des Mediums nur in diese Richtung zeigen. Es ist also ausreichend nur eine Komponente, zum Beispiel $\chi_{xxxx}^{(3)}$, zu betrachten. Der Einfachheit halber werden ab nun die Indizes weggelassen. Durch die nichtlineare Polarisation können im Medium Strahlungsfelder bei neuen, nicht eingestrahkten Frequenzen erzeugt werden. Direkt aus den Maxwell-Gleichungen ergibt sich in einem isotropen Medium die nichtlineare Wellengleichung:

$$\Delta \vec{E} - \frac{1 + \chi^{(1)}}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}^{NL}. \quad (2.25)$$

Die nichtlineare Polarisation ist hier der treibende Term der Wellengleichung und wirkt als Quelle neuer Strahlungskomponenten. Wir wollen uns im Folgenden auf die für diese Arbeit relevante Summenfrequenzmischung konzentrieren. Als Ansatz wählen wir

$$\vec{E}(z, t) = \vec{e}_x \frac{1}{2} (E_1 e^{-i(\omega_1 t - k_1 z)} + E_2 e^{-i(\omega_2 t - k_2 z)} + E_3 e^{-i(\omega_3 t - k_3 z)} + c.c.) \quad (2.26)$$

$$\vec{P}^{NL} = \vec{e}_x \frac{1}{2} P_4 e^{-i\omega_4 t} \quad (2.27)$$

$$= \vec{e}_x \frac{6}{8} \epsilon_0 \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3 e^{-i[(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3) - (k_1 + k_2 + k_3)z]}, \quad (2.28)$$

für die Wellengleichungen wobei \vec{e}_x einen Einheitsvektor in x-Richtung bezeichnet und k_i den Wellenvektor des i -ten Strahlungsfeldes. Zur Berechnung des erzeugten Feldes bei der Frequenz ω_4 wird angenommen, dass die Änderung der Feldamplitude E_i der Fundamentalstrahlen während einer optischen Periode vernachlässigbar werden kann. Diese Näherung ist unter der Bezeichnung *slowly varying amplitude approximation* bekannt. Wir erhalten somit die Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik:

$$\frac{\partial E_4}{\partial z} = \frac{i\omega_4}{2n_4\epsilon_0 c} P_4^{NL} e^{-ik_4 z}. \quad (2.29)$$

Alle Größen mit dem Index 4 beziehen sich dabei auf die Summenfrequenz bei ω_4 . Benutzt man die nichtlineare Polarisation aus Gleichung 2.24, kann diese Gleichung, unter der Annahme dass die fundamentalen Felder keine Abschwächung erfahren, entlang der Propagationsrichtung z integriert werden. Somit erhält man für die gesamte Intensität bei der Summe der Eingangsfrequenzen:

$$I_4 = \frac{9}{32} \frac{\epsilon_0 \omega_4^2 L^2}{n_4 c} |\chi^{(3)}|^2 E_1^2 E_2^2 E_3^2 \frac{\sin\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)^2}. \quad (2.30)$$

Dabei ist L die Länge der Wechselwirkungszone und Δk die Phasenfehlanpassung, die sich aus den Wellenvektoren aller beteiligter Felder zusammensetzt: $\Delta k = k_4 - k_1 - k_2 - k_3$. Maximale Intensität bei der Summenfrequenz ist nach Gleichung 2.30 bei einer Phasenfehlanpassung von $\Delta k = 0$ zu erwarten. In diesem Fall der optimalen Phasenanpassung schwingt das erzeugte Feld an jedem Ort mit der erzeugenden Polarisation in Phase. Damit interferieren die an unterschiedlichen Orten erzeugten Teilwellen der harmonischen Strahlung konstruktiv und die erzeugte Strahlung baut sich über die gesamte Länge der Wechselwirkungszone auf. Aus Gleichung 2.30 lässt sich auch erkennen, dass für hohe Intensitäten in der Erzeugten hohe Intensitäten in den Fundamentalen, eine hohe nichtlineare Suszeptibilität und optimale Phasenanpassung nötig sind.

2.2.2. Vierwellenmischen mit fokussierten Gaußstrahlen

Im vorangehenden Kapitel haben wir erkannt, dass es zur Erzeugung von hohen Intensitäten durch Vierwellenmischen hohe Intensitäten in den Fundamentalstrahlen vonnöten sind. Dazu wird man versuchen, die Fundamentalstrahlen möglichst scharf zu fokussieren. Für fokussierte Gaußstrahlen ist die Herleitung aus Kapitel 2.2.1 nicht mehr gültig, da dort von ebenen Wellen ausgegangen wurde. Ein entscheidender Unterschied ergibt sich durch die gekrümmten Wellenfronten bei fokussierten Strahlen.

Durch diese erhält ein Strahl beim Durchlaufen eines Fokus die sogenannte Gouy-Phase [Sve98]. Dabei erfährt jeder fundamentale Strahl diese Phasenänderung, also auf der fundamentalen Seite insgesamt dreimal, auf der Seite der Erzeugten jedoch nur einmal. Dadurch gerät die erzeugte Strahlung mit der erzeugenden Polarisation außer Phase. Für die Berechnung nimmt man zunächst an, dass alle Strahlen kollinear sind und identische konfokale Parameter, Fokusort und lineare Polarisation haben. Der konfokale Parameter b ist über $b = k\omega_0^2$ mit dem Strahlradius ω_0 verbunden und wird oft auch kurz nur b -Parameter genannt. Weiterhin soll keine Absorption bei den fundamentalen Strahlen vorliegen und von einem rechteckigen Dichteprofil des nichtlinearen Mediums ausgegangen werden. Somit ist die Dichteverteilung gegeben durch:

$$N(z) = \begin{cases} N & , \text{für } -L/2 < z < L/2 \\ 0 & , \text{sonst} \end{cases} . \quad (2.31)$$

Berechnet man damit, als auch mit dem Ansatz von Gaußstrahlen für die fundamentalen Strahlen, die Leistung bei der Summenfrequenz P_4 aus den eingehenden Leistungen der fundamentalen Strahlen $P_{1,2,3}$, ergibt sich [Bjo75]:

$$P_4 = \frac{9}{4} \frac{\omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4}{\pi^2 \epsilon_0^2 c^6} N^2 |\chi_a^{(3)}|^2 P_1 P_2 P_3 F(b\Delta k, b/L) . \quad (2.32)$$

Dabei wurde ausgenutzt, dass die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung $\chi^{(3)} = N\chi_a^{(3)}$ proportional zur Atomdichte N des nichtlinearen Mediums ist. Damit ist $\chi_a^{(3)}$ als eine Suszeptibilität pro Atomdichte anzusehen. Die Funktion $F(b\Delta k, b/L)$ wird als Phasenanpassungsintegral bezeichnet. Es ist eine dimensionslose Funktion, die alle Informationen zur Phasenanpassung enthält. Mit Hilfe des Phasenanpassungsintegrals lässt sich berechnen, welcher Wert für Δk bei fokussierten Strahlen zur Phasenanpassung ideal ist. Das Phasenanpassungsintegral ist gegeben durch:

$$F(b\Delta k, b/L) = \left| \int_{-L/2}^{L/2} dz \frac{2be^{-i\Delta kz}}{(b+2iz)^2} \right|^2 . \quad (2.33)$$

Im Grenzfall starker Fokussierung ($b \ll L$), wie bei uns gegeben, entfällt die Abhängigkeit von der Länge der Dampfzelle und das Integral kann analytisch berechnet werden. Es gilt dann:

$$F(b\Delta k) = \begin{cases} \pi^2 (b\Delta k)^2 e^{b\Delta k} & , \text{für } \Delta k < 0 \\ 0 & , \text{für } \Delta k \geq 0 \end{cases} . \quad (2.34)$$

Damit hängt die Phasenanpassung nur von dem b -Parameter und der Phasenfehlanspassung Δk ab. Die Abhängigkeit von $F(b\Delta k)$ von $b\Delta k$ ist in Abbildung 2.3 (a) dargestellt. Es ergibt sich ein Maximum bei $b\Delta k = -2$. Dies kann durch verschiedene Möglichkeiten erreicht werden. Beispielsweise kann durch Beimischung eines Puffergases Einfluss auf die Dispersion der einzelnen Strahlen genommen werden. Dadurch lassen sich dann

die Teilchenzahldichte N und die Phasenfehlانpassung Δk unabhängig voneinander verändern. In unserem Fall wären jedoch zu hohe Drücke des Puffergases nötig, um einen Einfluss auf die Dispersion zu erhalten. Hohe Drücke machen den Aufbau technisch komplizierter und darüberhinaus durch die Druckverbreiterung vor allem der Zweiphotonenresonanz den Vierwellenmischprozess ineffizienter.

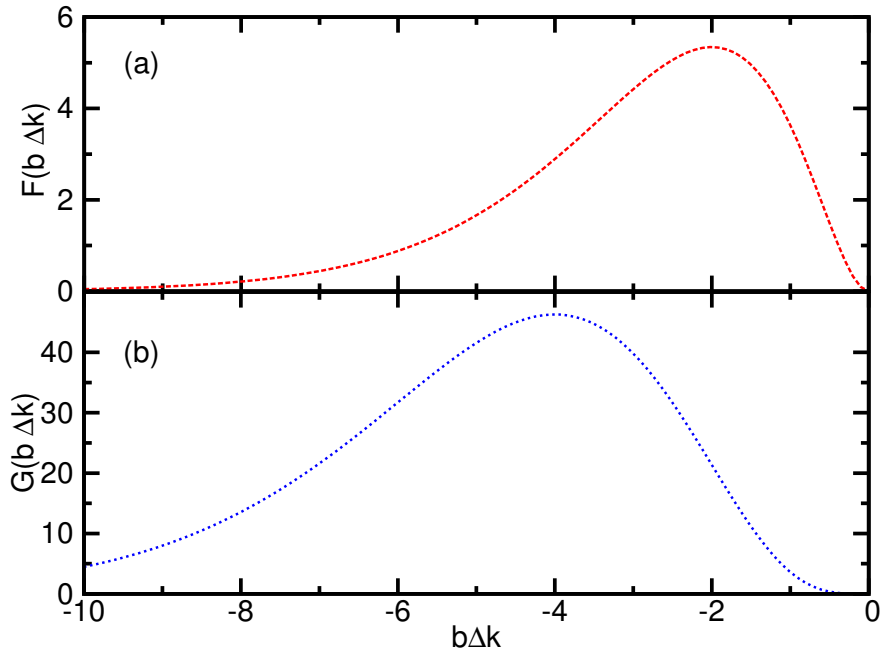


Abbildung 2.3: Phasenanpassungsfunktionen. Phasenanpassungsintegrale $F(b\Delta k)$ (a) und $G(b\Delta k)$ (b) in Abhängigkeit von dem dimensionslosen Parameter $b\Delta k$. Für $F(b\Delta k)$ ergibt sich ein Maximum bei $b\Delta k = -2$, durch das zusätzliche Hereinziehen der Dichte verschiebt sich das Maximum bei $G(b\Delta k)$ zu -4.

Eine weitere Möglichkeit ist die Phasenanpassung durch das Einstellen eines kleinen Winkels zwischen den einzelnen Strahlen. Auf diese Möglichkeit wird in Kapitel 6 eingegangen. Ebenso ist es möglich auf eine Phasenanpassung zu verzichten und eine periodische Struktur zu nutzen. Auch auf diese Variante, der Quasi-Phasenanpassung, soll in Kapitel 6 eingegangen werden.

Eine weitere Möglichkeit, die auch in unserem Experiment angewendet wird, ist die Phasenanpassung über die Einstellung der Teilchendichte des nichtlinearen Mediums. Für dünne Gase gilt, dass der reduzierte Brechungsindex $(n - 1)$ proportional zur Teilchenzahldichte ist. Da aber auch gilt, dass der Wellenvektor k jedes Strahls proportional zu n ist [Boy08], resultiert, dass Δk proportional zur Dichte ist. Eine genauere Betrachtung der Berechnung von Δk wird in Kapitel 2.2.4 stattfinden. Damit ist Δk über die Dichte einstellbar. Diese Methode der Phasenanpassung ist nur möglich, wenn Δk durch geeignete Wahl der Frequenzen so gewählt werden kann, dass es negativ ist. Bei unseren Fundamentalstrahlen ist dies der Fall, wenn der UV Laser rot zu dem

6^1S-6^3P Übergang verstimmt ist. Erfolgt die Phasenanpassung über die Teilchendichte muss beachtet werden, dass in Gleichung 2.34 die Teilchendichte sowohl über N^2 im Vorfaktor als auch über Δk im Phasenanpassungsintegral eingeht. Es ist somit zweckmäßig, die Dichte aus dem Vorfaktor über die dimensionslose Größe $b\Delta k$ in die Phasenanpassungsfunktion zu ziehen. Dann ergibt sich:

$$P_4 = \frac{9}{4} \frac{\omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4}{\pi^2 \epsilon_0^2 c^6} \frac{1}{b^2} \left(\frac{N}{\Delta k} \right)^2 |\chi_a^{(3)}|^2 P_1 P_2 P_3 G(b\Delta k) \quad . \quad (2.35)$$

Der Vorfaktor ist nun unabhängig von der Dichte, da der Quotient $N/\Delta k$ unabhängig von der Dichte ist. Damit muss nun die neue Funktion $G(b\Delta k)$ maximiert werden, um eine optimale Phasenanpassung zu erreichen. Diese neue Funktion $G(b\Delta k)$ ergibt sich aus der alten Phasenanpassungsfunktion $F(b\Delta k)$ wie folgt:

$$G(b\Delta k) = (b\Delta k)^2 F(b\Delta k) \quad . \quad (2.36)$$

Diese Funktion ist in Abbildung 2.3 (b) abgebildet und hat ihr Maximum bei $b\Delta k = -4$. Das Maximum wird also durch das zusätzliche Hereinziehen der Dichte in das Phasenanpassungsintegral zu höheren $b\Delta k$ -Werten und damit zu höheren Dichten verschoben. Beim Phasenanpassen mit der Dichte des nichtlinearen Mediums wird also ein Kompromiss zwischen hoher Dichte und passabler Phasenanpassung gewählt.

2.2.3. Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi^{(3)}$

Da die Leistung bei Lyman- α durch Vierwellenmischen quadratisch von der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ abhängt, ist es für eine leistungsstarke Lyman- α Quelle wichtig, diese möglichst zu erhöhen. Dies kann durch Ausnutzung von Resonanzen geschehen. In der allgemeinen Form enthält die nichtlineare Suszeptibilität eine Vielzahl von Termen, die alle möglichen Prozesse, wie zum Beispiel auch Differenzfrequenzmischen, enthalten. Ebenso sind dort alle möglichen Resonanzen der eingestrahlten Lichtfelder mit atomaren Niveaus enthalten [Rei84]. In unserem Fall der Summenfrequenzmischung mit einer Zweiphotonenresonanz lässt sich die Matrix wesentlich vereinfachen, da hier nur Resonanzen maßgeblich beitragen, die die Zweiphotonenresonanz beinhalten. Wenn man weiterhin nur von gleich linear polarisierten Strahlungsfeldern ausgeht, ist $\chi^{(3)}$ eine skalare Größe und lässt sich nach [SA86] berechnen durch:

$$\chi^{(3)} = \frac{N}{6\epsilon_0 \hbar^3} S(\omega_1, \omega_2) \chi_{12} \chi_{34} \quad . \quad (2.37)$$

Die einzelnen Beiträge berechnen sich wie folgt:

$$\chi_{12} = \sum_m \left(\frac{p_{nm} p_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_1} + \frac{p_{nm} p_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_2} \right) \quad , \quad (2.38)$$

$$\chi_{34} = \sum_\nu \left(\frac{p_{n\nu} p_{\nu g}}{\omega_{g\nu} - \omega_4} + \frac{p_{n\nu} p_{\nu g}}{\omega_{g\nu} + \omega_3} \right) \quad , \quad (2.39)$$

und

$$S(\omega_1 + \omega_2) = \frac{1}{\omega_{ng} - (\omega_1 + \omega_2)} \quad . \quad (2.40)$$

Die partiellen Suszeptibilitäten χ_{12} und χ_{34} ähneln Suszeptibilitäten erster Ordnung. Sie hängen von den Übergangsmatrixelementen p_{ij} der beteiligten Niveaus ab und von der Übergangsfrequenz ω_{ij} zwischen diesen Niveaus. Die Summationen laufen über alle Niveaus m und v , die über einen Dipolübergang von dem Grundniveau g und dem Zweiphotonenniveau n erreichbar sind (siehe dazu Abbildung 2.4). Die Funktion $S(\omega_1 + \omega_2)$ beschreibt die Zweiphotonenresonanz und hängt nur von der Summenfrequenz von ω_1 und ω_2 ab. Die Frequenz ω_3 legt die Frequenz durch Vierwellenmischen bei ω_4 fest. Es lässt sich erkennen, dass sich die nichtlineare Suszeptibilität erhöhen lässt wenn der Frequenzabstand von ω_1 , ω_2 oder ω_4 zu starken Einphotonenresonanzen klein gewählt wird oder die Summenfrequenz von ω_1 und ω_2 zu einer Zweiphotonenresonanz klein gewählt wird.

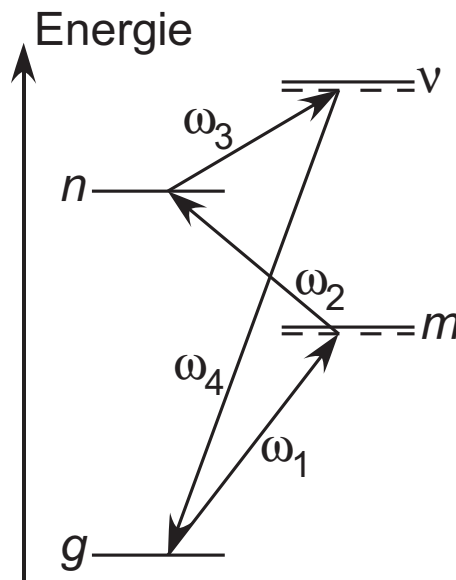


Abbildung 2.4: Vierwellenmischen mit einer Zweiphotonenresonanz. Die Frequenzen ω_1 und ω_2 ermöglichen eine Zweiphotonenresonanz zwischen dem Grundniveau g und dem Zweiphotonenniveau n . Die dritte Frequenz ω_3 legt die ausgehende Summenfrequenz ω_4 fest. Zur nichtlinearen Suszeptibilität tragen alle Niveaus bei, die über eine Einphotonenresonanz (m, v) bzw. über eine Zweiphotonenresonanz (n) vom Grundniveau (g) erreichbar sind.

Für die Berechnung müssen nun diejenigen Niveaus in Quecksilber identifiziert werden, die vom 6^1S Grundzustand aus mit einem Dipolübergang erreicht werden können. Für den Gesamtdrehimpuls des Grundzustands gilt $J = 0$, für dessen x-Komponente $M_J = 0$, für den Bahndrehimpuls $L = 0$ und für den Spin $S = 0$. Nach den Auswahlregeln für Dipolübergänge können Singulett P-Niveaus n^1P_1 erreicht werden und wegen der intermediären Kopplung in Quecksilber auch Triplet P-Niveaus n^3P_1 [Dem07].

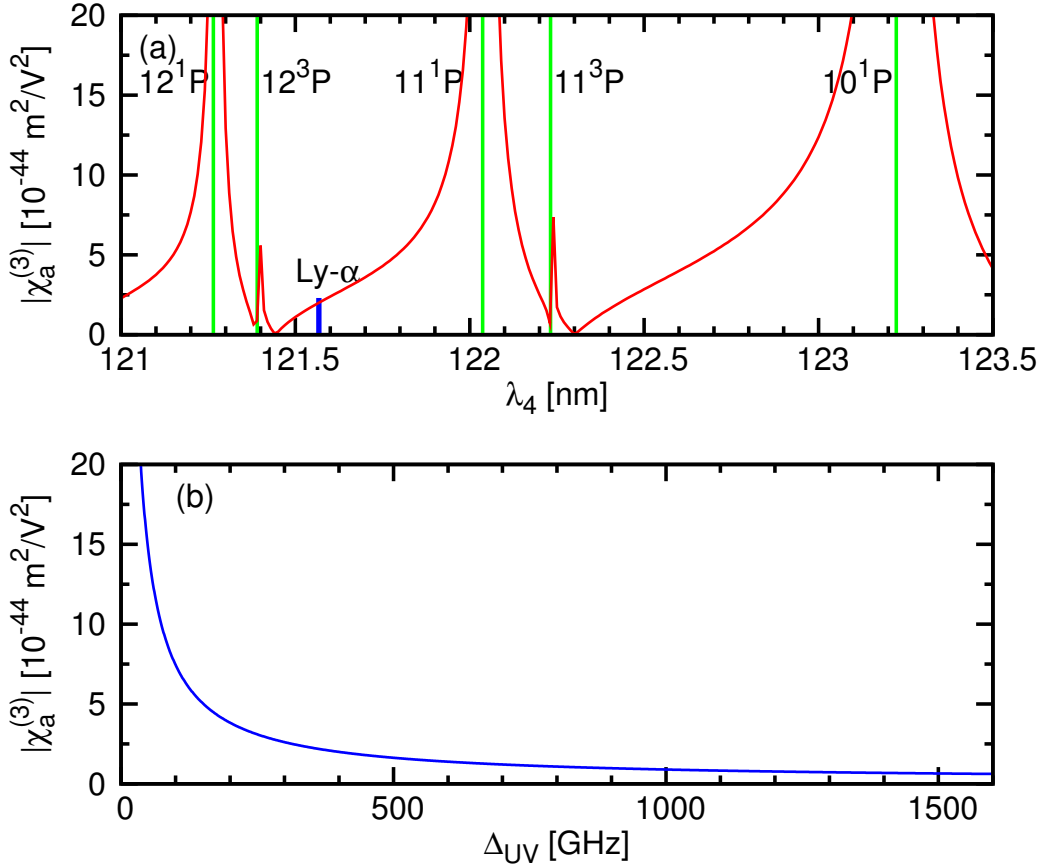


Abbildung 2.5: Nichtlineare Suszeptibilität in der Nähe von Einphotonresonanzen. Aufgetragen ist der Betrag der berechneten nichtlinearen Suszeptibilität pro Atomdichte über die Wellenlänge der Summenfrequenz (a) und über die Verstimmung des UV Lasers zur 6^3P Resonanz $\Delta_{UV} = \nu_{6^3P} - \nu_{UV}$ bei der Lyman- α Wellenlänge (b). In (a) ist die Lage der einzelnen Resonanzen in Quecksilber (grüne Striche) und die Lage der Lyman- α Wellenlänge eingezeichnet. Dazu wurde mit einer UV Verstimmung zum 6^3P Niveau von 400 GHz gerechnet.

Beschränkt man sich wieder auf in x -Richtung polarisierte Laserstrahlen, die in z -Richtung propagieren, muss nur die x -Komponente des Dipolmatrixelements betrachtet werden. Wegen der linearen Polarisation ändert sich die x -Komponente des Gesamtdrehimpulses nicht ($\Delta M_J = 0$). Unter diesen Voraussetzungen lassen sich die Dipolmatrixelemente eines Übergangs von einem Niveau a mit Gesamtdrehimpuls J in ein Niveau b mit Gesamtdrehimpuls $J + 1$ aus den Oszillatorenstärken der Übergänge f_{ab} berechnen [Rei84]:

$$p_{ba} = ea_0 \sqrt{\frac{3[(J+1)^2 - M_J^2]g_u f_{ab} hc R_y}{(J+1)(2J+1)(2J+3)\hbar\omega_{ab}}} \quad (2.41)$$

Dabei bezeichnet e die Elementarladung, a_0 den Bohr-Radius und R_y ist die Rydbergkonstante. Der Faktor g_u ist die Entartung des unteren Niveaus. Da der Dipoloperator ein hermitescher Operator ist, gilt $p_{ab} = p_{ba}$ [CTDL99]. Die benötigten Oszilla-

torstärken und Übergangsfrequenzen sind im Anhang A gegeben. Sie wurden von Smith und Alford bis $n=13$ gemessen [SA86, AS87]. Der Beitrag des Kontinuums wird nach Smith und Alford durch den ersten autoionisierenden Zustand $^2D_{3/2}6p'1P$ dominiert. Deshalb wird dieses Niveau mit in die Summation aufgenommen und auf ein Integral über das Kontinuum verzichtet. Da die Oszillatorstärken zum Teil Unsicherheiten von 50% haben, wird die Genauigkeit der Berechnung von $\chi^{(3)}$ mit 20-30% angegeben [AS87].

In Abbildung 2.5 ist die berechnete nichtlineare Suszeptibilität pro Atomdichte in der Nähe von Einphotonresonanzen der Summenfrequenz (a) und der UV Frequenz (b) gezeigt. Dabei wurde in Abbildung 2.5 (a) bei einer UV Verstimmung von 400 GHz die Wellenlänge der Erzeugten durch Änderung der dritten Wellenlänge über mehrere Quecksilberresonanzen durchgestimmt. In der Nähe von Singulett und Triplett-Zuständen steigt die Suszeptibilität dritter Ordnung stark an. Dabei sind Singulett-Zustände stärker ausgeprägt als Triplett-Zustände. Die Position der Lyman- α Wellenlänge liegt in einem Bereich, in dem die nichtlineare Suszeptibilität nicht verschwindet, jedoch nicht nah bei einer Quecksilberresonanz, um den Effekt voll auszuschöpfen. In Abbildung 2.5 (b) ist die nichtlineare Suszeptibilität pro Atomdichte bei Verstimmung des UV Lasers zur 6^3P Resonanz bei der Lyman- α Wellenlänge gezeigt. Auch hier ergibt sich ein starker Anstieg.

Die Zweiphotonenresonanz wird im Experiment mit dem 7^1S Zustand eingestellt. Genau auf der Zweiphotonenresonanz ($\omega_1 + \omega_2 = \omega_{7^1S}$) divergiert die Funktion $S(\omega_1 + \omega_2)$, was unphysikalisch ist. Deshalb muss für eine korrekte Behandlung die Linienbreite der Zweiphotonenresonanz mit einbezogen werden. Die Linienbreite setzt sich zusammen aus einem homogenen und einem inhomogenen Anteil. Die homogene Verbreiterung ist die Summe aus der natürlichen Linienbreite und der Druckverbreiterung. Sie kann formal eingeführt werden, indem in Gleichung 2.40 ω_{7^1S} durch $\omega_{7^1S} - i\frac{\gamma_{7^1S}}{2}$ ersetzt wird [BC90], mit der vollen, homogenen Linienbreite γ_{7^1S} . Die inhomogene Linienbreite wird durch die Dopplerverbreiterung bestimmt. Sie entsteht dadurch, dass ein Atom mit Geschwindigkeit v in Strahlrichtung den Laser durch den Doppler-Effekt um die Frequenz $\Delta\omega = -kv$ verschoben sieht. Um dies mit einzurechnen muss Gleichung 2.40 mit der Wahrscheinlichkeitsverteilung der Geschwindigkeiten in Strahlrichtung gewichtet und über die Geschwindigkeit integriert werden. Man erhält:

$$S(\omega_1 + \omega_2) = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_w} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{(-\frac{v}{v_w})^2}}{\omega_{7^1S} + kv - i\gamma_{7^1S}/2 - (\omega_1 + \omega_2)} dv \quad , \quad (2.42)$$

mit der wahrscheinlichsten Geschwindigkeit v_w bei einer Temperatur T :

$$v_w = \sqrt{\frac{2k_bT}{m_{Hg}}} \quad . \quad (2.43)$$

Dabei ist k_b die Boltzmann-Konstante und m_{Hg} die Masse der Quecksilberatome. Die Funktion $S(\omega_1 + \omega_2)$ geht quadratisch in die Lyman- α Leistung ein. Die Form der

Zweiphotonenresonanz im Lyman- α Signal wird also durch $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ beschrieben. Das entspricht einem so genannten Voigt-Profil, der typischen Linienform einer sowohl homogen als auch inhomogen verbreiterten Linie [Dem07]. Zur Berechnung kann man sich der Plasmadispersionsfunktion $Z(\zeta)$ bedienen [FC61]:

$$S(\omega_1 + \omega_2) = \frac{1}{\omega} Z(\zeta) \quad , \quad (2.44)$$

mit

$$Z(\zeta) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-x^2}}{x - \zeta} dx \quad , \quad (2.45)$$

$$\zeta = (\omega_1 + \omega_2 + i\gamma_{7^1S}/2 - \omega_{7^1S}) \frac{1}{\omega} \quad , \quad (2.46)$$

$$w = \omega_{7^1S} \frac{v_w}{c} = \frac{\Delta\omega_D}{2\sqrt{\ln 2}} \quad . \quad (2.47)$$

Dabei ist $\Delta\omega_D$ die Dopplerbreite. Die so genannte Plasmadispersionsfunktion $Z(\zeta)$ kann aus der Fehlerfunktion berechnet werden:

$$Z(\zeta) = i\sqrt{\pi} e^{-\zeta^2} [1 + \operatorname{erf}(i\zeta)] \quad . \quad (2.48)$$

Für kleine UV-Verstimmungen macht sich auch bei der Zweiphotonenresonanz die Isotopie und Hyperfeinstrukturaufspaltung des 6^3P Niveaus bemerkbar. Für einige Isotope oder Hyperfeinkomponenten ist die UV-Strahlung näher resonant als für andere. Deren Anteil an der Zweiphotonenresonanz wird dann stärker gewichtet. Dies lässt sich rechnerisch durch das Produkt $|\chi_{12}S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ beschreiben:

$$\begin{aligned} \chi_{12}S(\omega_1 + \omega_2) &= \frac{1}{\sqrt{\pi}v_w} \sum_m \int_{-\infty}^{\infty} dv e^{-\left(\frac{v}{v_w}\right)^2} \frac{p_{nm}p_{mg}}{\omega_{6^3P,m} + kv - i\gamma_{6^3P}/2 - \omega_1} \\ &\quad \times \frac{1}{\omega_{7^1S} + kv - i\gamma_{7^1S}/2 - (\omega_1 + \omega_2)} \end{aligned} \quad . \quad (2.49)$$

Es wird hier zusätzlich die Doppler-Verbreiterung und die homogene Breite γ_{6^3P} des 6^3P Niveaus berücksichtigt. Summiert wird über die Komponenten der Hyperfeinstruktur. Das heißt, für die geraden Isotope muss gar nicht summiert werden. Dieses Produkt muss für alle Isotope ausgerechnet und, mit der Häufigkeit der Isotope gewichtet, summiert werden. In Abbildung 2.6 wird die Form der Zweiphotonenresonanz im Lyman- α Signal als Funktion der Verstimmung zur Zweiphotonenresonanz des ^{202}Hg Isotops gezeigt. Angenommen wurde eine UV-Verstimmung zum 6^3P Niveau des ^{202}Hg Isotops von 50 GHz. Die Verstimmung zur Zweiphotonenresonanz wird definiert als $\Delta_{2\gamma} = \nu_{blau} + \nu_{UV} - \nu_{7^1S}$, es ergibt sich also eine positive Verstimmung, wenn die Summe der Laserfrequenzen größer als die Frequenz des 6^3P - 7^1S Übergangs des ^{202}Hg

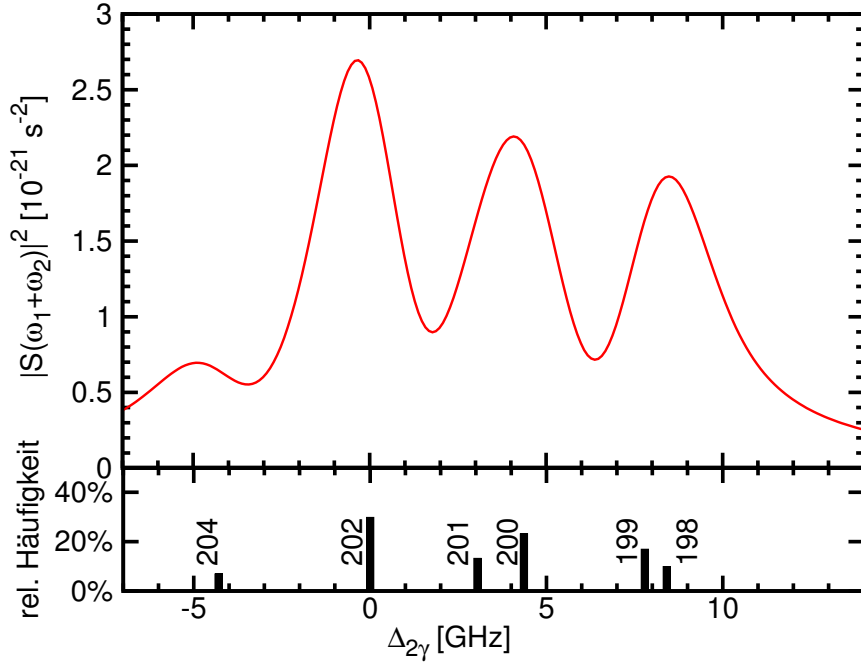


Abbildung 2.6: Form der Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal. $S(\omega_1 + \omega_2)$ gegenüber der Verstimmung zur Zweiphotonenresonanz des ^{202}Hg Isotops $\Delta_{2\gamma} = \nu_{\text{blau}} + \nu_{\text{UV}} - \nu_{71S}$. Für die Dopplerverbreiterung wurde eine Temperatur von 136°C angenommen, für die Druckverbreiterung $\gamma_{71S} = 1,25 \text{ GHz}$. Im unteren Teil des Graphen wird die Position der Zweiphotonenresonanz und die relative Häufigkeit der einzelnen Isotope gezeigt. Angenommen wurde eine UV-Verstimmung zum 6^3P Niveau des ^{202}Hg Isotops von 50 GHz und eine homogene Breite von $\gamma_{6^3P} = 1,25 \text{ GHz}$.

Isotops ist. Man erhält insgesamt vier Peaks jeweils auf der Zweiphotonenresonanz eines Isotops. Dabei bilden die Isotope 201/200 und 199/198 jeweils einen gemeinsamen Peak, da sie durch die Verbreiterungen nicht mehr getrennt im Spektrum erscheinen.

2.2.4. Berechnung der Phasenfehlانpassung Δk

Für die oben beschriebene Berechnung der Konversionseffizienz, benötigt man Kenntnis über die Phasenfehlانpassung Δk . Bei bekanntem b -Parameter muss $\Delta k = -4/b$ eingestellt werden um eine optimale Phasenانpassung bei fokussierten Gaußstrahlen zu erreichen. Der Wellenvektorunterschied ist zunächst formal durch die Differenz aus dem Wellenvektor bei der Erzeugten (k_4) und der Summe aus den Wellenvektoren der Fundamentalen (k_1, k_2, k_3) gegeben:

$$\Delta k = k_4 - (k_1 + k_2 + k_3). \quad (2.50)$$

Die Wellenvektoren sind verknüpft mit der Wellenlänge und dem Brechungsindex im Medium über:

$$k_i = \frac{n(\omega_i)\omega_i}{c}. \quad (2.51)$$

Dabei ist ω_i die Frequenz des i -ten Strahls und $n(\omega_i)$ der Brechungsindex bei dieser Frequenz. Der komplexe Brechungsindex lässt sich über die lineare Suszeptibilität berechnen zu [Boy08]:

$$n(\omega_i) = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega_i)} \approx 1 + \frac{1}{2}\chi^{(1)}(\omega_i) \quad (2.52)$$

mit der linearen Suszeptibilität $\chi^{(1)}(\omega_i)$. Für den realen Brechungsindex erhält man so $n'(\omega_i) = 1 + 1/2 \times \Re[\chi^{(1)}(\omega_i)]$. Nutzt man nun noch, dass im Vakuum $\Delta k = 0$ gilt, kann man die Phasenfehlانpassung angeben mit

$$\Delta k = \frac{1}{2c} \left\{ \omega_4 \Re[\chi^{(1)}(\omega_4)] - \sum_{i=1}^3 \omega_i \Re[\chi^{(1)}(\omega_i)] \right\}. \quad (2.53)$$

Für ein isotropes Medium kann die lineare Suszeptibilität angegeben werden mit [Boy08]:

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_e} \sum_n \frac{f_{gn}}{\omega_{gn}^2 - (\omega - i\gamma_{gn}/2)^2}. \quad (2.54)$$

Dabei ist N die Dichte des Mediums, e die Elementarladung, m_e die Elektronenmasse, f_{gn} die Oszillatorenstärke, ω_{gn} die Übergangswellenlänge des Dipolübergangs und γ_{gn} die Linienbreite des Niveaus. Für die Berechnung der linearen Suszeptibilität muss über alle Niveaus n , die mit einem Dipolübergang erreicht werden können, summiert werden. Im Falle von Quecksilber sind das alle n^1P_1 und alle n^3P_1 Niveaus. Im Anhang A sind die Angaben zu all diesen Niveaus zu finden. Das Kontinuum wird berücksichtigt, in dem das dominierende erste autoionisierende $^2D_{3/2}6p^1P$ Niveau in die Rechnung integriert wird. Weitere Beiträge sind klein und darüberhinaus nur ungenau bekannt [SA86, AS87]. Da die lineare Suszeptibilität linear zur Atomdichte ist (siehe Gleichung (2.54)) und damit auch die Phasenfehlانpassung, kann die Phasenfehlانpassung auch pro Atomdichte angegeben werden. Der resultierende Wellenvektorunterschied $\Delta k_a = \Delta k/N$ enthält dann alle Informationen zur Resonanzstruktur von Quecksilber, die für die Phasenanpassung relevant ist.

Neben der homogenen Verbreiterung der Resonanzlinien muss auch Rücksicht auf die thermische Verteilung der Atome und die damit verbundene Dopplerverbreiterung genommen werden. Wie auch bei der Zweiphotonenresonanz muss hier eine Faltung mit der Geschwindigkeitsverteilung erfolgen. Ein Atom mit einer Geschwindigkeitskomponente v_z entlang der Laserstrahlachse hat eine zum ruhenden Atom verschobene Resonanz [Dem07]:

$$\omega = \omega_0 \left(1 + \frac{v_z}{c} \right). \quad (2.55)$$

Durch diese Ersetzung in Gleichung (2.54) erhält man für die lineare Suszeptibilität:

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_e} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{\pi}v_0} \exp\left[-(v_z/v_0)^2\right] \sum_n \frac{f_{gn}}{\omega_{gn}^2 - (\omega(1 + \frac{v_z}{c}) - i\gamma_{gn}/2)^2} dv_z. \quad (2.56)$$

Dabei stellt v_0 die häufigste Geschwindigkeitskomponente dar und ergibt sich aus der Temperatur T und der Masse eines Quecksilberatoms m_{Hg} zu:

$$v_0 = \sqrt{\frac{2k_b T}{m_{Hg}}}. \quad (2.57)$$

Für kleine UV Verstimmung zu der 6^3P Resonanz muss die Isotopenaufspaltung und auch Hyperfeinaufspaltung der ungeraden Isotope berücksichtigt werden. Dies wird erreicht, indem zuerst die lineare Suszeptibilität für jedes Isotop einzeln berechnet wird. Dabei muss die entsprechende Isotopieverschiebung dieses Isotops verwendet werden. Zusätzlich muss bei den ungeraden Isotopen noch über die Hyperfeinstrukturkomponenten summiert werden, deren Beiträge jeweils mit dem Entartungsfaktor G gewichtet werden. Der Entartungsfaktor G gibt das Verhältnis aus der Entartung der betrachteten Hyperfeinstrukturkomponente zur Summe der Entartung aller Hyperfeinstrukturkomponenten an, also das Verzweigungsverhältnis der einzelnen Linie zur gesamten 6^3P Resonanz.

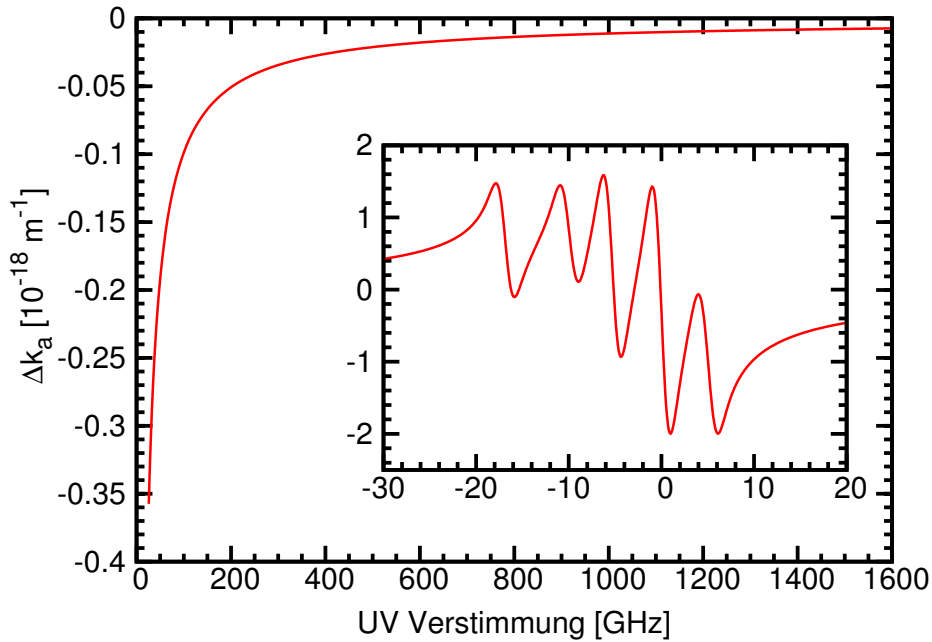


Abbildung 2.7: Abhängigkeit der Phasenfehlanpassung von der UV-Verstimmung. Aufgetragen ist die Phasenfehlanpassung pro Atomdichte über der Verstimmung des UV-Lasers zur 6^3P Resonanz des ^{202}Hg Isotops $\Delta_{UV} = \nu_{6^3P} - \nu_{UV}$. Der innere Graph zeigt die Isotopie und Hyperfeinstrukturaufspaltung bei kleinen Verstimmungen. Gechnet wurde mit $\gamma_{6^3P} = 1,25$ GHz und $T = 150^\circ\text{C}$.

In Abbildung 2.7 ist die Phasenfehlanpassung gegenüber der Verstimmung des UV Lasers zur 6^3P Resonanz des ^{202}Hg Isotops gezeigt. Da zur Phasenfehlanpassung nur Einphotonresonanzen beitragen und der UV Laser am nächsten zu einer Resonanz verstimmt ist, dominiert der UV Laser die Phasenfehlanpassung. Selbst bei den größten eingestellten UV Verstimmungen in dieser Arbeit von 1,6 THz macht der UV Laser mehr als 80% der Phasenfehlanpassung aus. Da für optimale Phasenanpassung

$\Delta k = -4/b$ gelten muss, erkennt man aus Abbildung 2.7, dass die UV Verstimmung rotverstimmt zu der Einphotonenresonanz gewählt werden muss. In dem inliegenden Graph, ist die Phasenfehlanpassung innerhalb der Isotopieaufspaltung und Hyperfeinaufspaltung bei kleinen UV Verstimmungen gezeigt. Auch zwischen den Isotopen kann $\Delta k < 0$ erzielt werden und somit der Vierwellenmischprozess phasenangepasst werden, jedoch wäre hier die Absorption bei der UV Wellenlänge zu groß. Um die erforderliche Dichte für Phasenangepasstung zu erhalten, muss nun die Gleichung

$$b\Delta k = b\Delta k_a N = -4 \quad (2.58)$$

nach der Dichte aufgelöst werden. Bei unserem Experiment wird die Dichte über die Temperatur eingestellt. Über die Beziehung $N = p/k_b T$ kann von der Temperatur auf die Dichte geschlossen werden, wenn die Dampfdruckkurve von Quecksilber bekannt ist. In Anhang A sind gemessene Werte von Quecksilber angegeben [WAW97]. Bei einer festen UV Verstimmung kann somit die Phasenangepasstungskurve bestimmt werden. Aus der UV Verstimmung resultiert eine feste Phasenfehlanpassung pro Atomdichte Δk_a , aus der mit der Atomdichte die gesamte Fehlanpassung folgt. In Abbildung 2.8 ist solch eine gerechnete Phasenangepasstungskurve bei einer UV Verstimmung von 400 GHz gezeigt. Es resultiert eine optimale Phasenangepasstungstemperatur von 176°C, bei der eine erhöhte Lyman- α Leistung beobachtet wird.

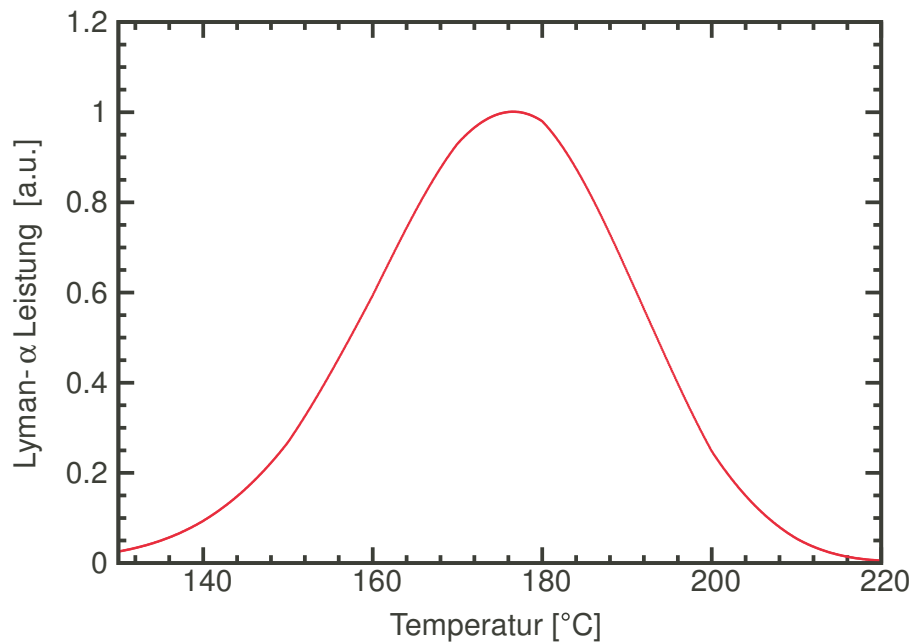


Abbildung 2.8: Berechnete Phasenangepasstungskurve für eine UV-Verstimmung von 400 GHz. Aufgetragen ist die relative Lyman- α Leistung über der Temperatur des Quecksilberdampfs. Das Maximum der Phasenangepasstung liegt bei 176°C. Gerechnet wurde nach Gleichung 2.36 mit einem b-Parameter von $b = 0,8$ mm.

Wir haben damit nun alle relevanten Größen zum Vierwellenmischen mit fokussierten Gaußstrahlen zusammengetragen. Neben der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ ist auch

die Phasen Anpassung ein wichtiger Parameter zum Vierwellenmischen.

2.2.5. Alternative Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi^{(3)}$

In der Literatur gibt es bereits viele Beispiele für Vierwellenmischen mit einer Zweiphotonenresonanz, die sich das Phänomen der elektromagnetisch induzierten Transparenz (EIT) [BIH91, Har97] zu Nutze gemacht haben, um die nichtlineare Suszeptibilität zu steigern [ZHS93, HF190, DKM99, WSZ03]. Dabei wird eine fundamentale Wellenlänge bewusst resonant zu einer Einphotonresonanz eingestrahlt. Absorption bei dieser Wellenlänge wird jedoch mit EIT ausgeschaltet. Durch eine starke Kopplung dieses Niveaus an ein weiteres ergibt sich eine Aufspaltung (Autler-Towns Aufspaltung [AT55]) und die Absorption wird unterdrückt. Obwohl die Absorption dabei komplett ausgelöscht werden kann, bleibt die nichtlineare Suszeptibilität endlich. Es kann also mit einer sehr nahverstimmten Einphotonresonanz ohne Absorption Vierwellenmischen betrieben werden. In [Hen05] wurde auch schon EIT im 6^1S-6^3P Übergang in Quecksilber untersucht, um eine durch EIT verstärkte Lyman- α Quelle aufzubauen. Die Theorie zur nichtlinearen Suszeptibilität aus Abschnitt 2.2.3 kann Effekte wie EIT nicht wiedergeben. Die Berechnung zur Zweiphotonenresonanz mit Hilfe der optischen Blochgleichungen jedoch schon, dafür jedoch nicht das Vierwellenmischen. Hier wird nun eine alternative Berechnungsweise für die nichtlineare Suszeptibilität aufgezeigt, die dabei dem Formalismus der optischen Blochgleichungen folgt um für zukünftige Experimente zum Vierwellenmischen mit der Ausnutzung von EIT genutzt werden zu können.

Wir möchten dabei einem Verfahren von Petch et.al. [PKKM96] folgen, die 1996 den Effekt der elektromagnetisch induzierten Transparenz im resonanten Vierwellenmischprozess in einem Dreiniveausystem untersucht haben. Die Antwort eines Systems auf ein elektrisches Feld wird wiedergegeben durch die makroskopische Polarisierung des Mediums:

$$\langle P \rangle = N \text{Sp} [\mu \rho]. \quad (2.59)$$

Dabei stellt ρ die Dichtematrix des Systems, wie sie in Kapitel 2.1 bereits eingeführt wurde, erweitert auf ein Vierniveausystem dar. Die Spur des Matrixproduktes aus der Dichtematrix mit der Dipolmatrix μ ergibt den Erwartungswert des Dipolmomentes und damit die mikroskopische Polarisierung. Die Multiplikation mit der Dichte N ergibt die makroskopische Polarisierung des Mediums. Verwenden wir die in Abbildung 2.9 eingeführte Konvention zur Bezeichnung der Niveaus und erinnern wir uns daran, dass μ nur aus Nicht-Diagonalelementen besteht (2.1). Es ergibt sich für die Polarisierung

$$\begin{aligned} \langle P \rangle = N(\mu_{ab}\rho_{ba} + \mu_{ba}\rho_{ab} + \mu_{ac}\rho_{ca} + \mu_{ca}\rho_{ac} + \mu_{ad}\rho_{da} + \mu_{da}\rho_{ad} + \\ \mu_{bc}\rho_{cb} + \mu_{cb}\rho_{bc} + \mu_{bd}\rho_{db} + \mu_{db}\rho_{bd} + \mu_{cd}\rho_{dc} + \mu_{dc}\rho_{cd}). \end{aligned} \quad (2.60)$$

Diese insgesamt zwölf Terme lassen sich zu verschiedenen Frequenzen, in der die Polarisierung schwingt, unterteilen. So beziehen sich die Terme $\mu_{ab}\rho_{ba} + \mu_{ba}\rho_{ab}$ auf Schwin-

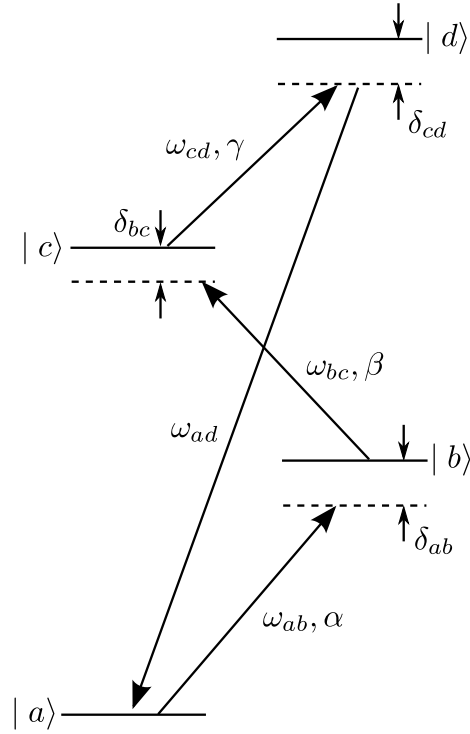


Abbildung 2.9: Notation für die Vierniveaurechnung. Die Laser mit Frequenzen ω_{ij} treiben die Übergänge $|i\rangle \rightarrow |j\rangle$ mit Verstimmungen δ_{ij} zu den Resonanzen. Die Rabi-Frequenzen α , β und γ beziehen sich auf den unteren, mittleren bzw. oberen Übergang. Die erzeugte Frequenz ω_{ad} schwingt in der Nähe des $|d\rangle \rightarrow |a\rangle$ Überganges.

gungen in der Nähe der Frequenz des $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ Überganges. Da wir nur an Schwingungsanteile in der Nähe des $|a\rangle \rightarrow |d\rangle$ Überganges interessiert sind reduziert sich P auf $P(\omega_{ad}) = N(\mu_{ad}\rho_{da} + \mu_{da}\rho_{ad})$. Die beiden Terme beziehen sich auf die komplexen Anteile der Felder. Für den Realteil der Polarisation ergibt sich folgend:

$$P(\omega_{ad}) = 2N\mu_{ad}\rho_{da}. \quad (2.61)$$

Damit ist die Beziehung zwischen dem Dichtematrixelement und der nichtlinearen Polarisation hergestellt. Aus dem Abschnitt zur nichtlinearen Suszeptibilität ist jedoch auch eine weitere Beziehung für die nichtlineare Polarisation bekannt, die den Zusammenhang zwischen den fundamentalen Feldern und der nichtlinearen Polarisation über die nichtlineare Suszeptibilität herstellt (2.24):

$$P(\omega_{ad}) = 6\epsilon_0\chi^{(3)}E_1E_2E_3 = 6\epsilon_0N\chi_a^{(3)}E_1E_2E_3. \quad (2.62)$$

Dabei sind E_i die Amplituden der eingehenden Felder und $\chi_a^{(3)}$ die nichtlineare Suszeptibilität pro Atomdichte. Der Vorfaktor 6 stammt von allen möglichen Permutationen der elektrischen Felder. Führt man diese beiden Beziehungen zusammen, lässt sich die nichtlineare Suszeptibilität darstellen als

$$\chi_a^{(3)} = \frac{1}{3} \frac{1}{\epsilon_0 E_1 E_2 E_3} \rho_{da}. \quad (2.63)$$

Mit der Definition der Rabifrequenz (2.1.2) lässt sich dies noch umschreiben zu:

$$\chi_a^{(3)} = \frac{1}{3} \frac{\mu_{ad} \mu_\alpha \mu_\beta \mu_\gamma}{\hbar^3 \epsilon_0 \alpha \beta \gamma} \rho_{da}. \quad (2.64)$$

Dabei stehen α, β und γ für die Rabifrequenzen der drei Fundamentalstrahlen und $\mu_{\alpha, \beta, \gamma}$ für die Übergangsdipolmomente der entsprechenden Übergänge.

Die Berechnung des Dichtematrixelementes kann über die Lösung der statischen optischen Blochgleichungen erfolgen, wie sie in Kapitel 2.1 beschrieben ist. Dazu muss für den Fall des hier vorliegenden Vierwellenmischen auf ein Vierniveausystem umgestiegen werden. Die daraus resultierenden Lösungen sind sehr lang und unübersichtlich. Sie enthalten neben Termen die linear in $\alpha\beta\gamma$ sind auch Terme höherer Ordnungen in den Fundamentalen. Diese Terme mit höherer Ordnung spielen zunächst bei den in diesem Experiment verwendeten Leistungen der fundamentalen Strahlen keine Rolle. Aus ihnen folgt bei höheren Rabifrequenzen die elektromagnetisch induzierte Transparenz [PKKM96]. Die verwendeten optischen Blochgleichungen finden sich in Anhang B. Diese werden wieder analytisch mit Hilfe eines Rechenprogrammes (Mathematica) gelöst. Aus der Dichtematrix wird dann der Zustand extrahiert, der für die nichtlineare Polarisation bei der Summenfrequenz verantwortlich ist. Setzt man nun die Verstimmungen der eingestrahnten Laserfelder und Rabifrequenzen ein, erhält man von einem Vierniveausystem die resultierende nichtlineare Suszeptibilität. Um nun die gesamte nichtlineare Suszeptibilität zu erhalten, muss diese Berechnung für alle möglichen Vierniveausysteme wiederholt werden und die nichtlineare Suszeptibilität addiert werden. Die Addition der partiellen Suszeptibilitäten passiert dabei vor der Betragsbildung der Suszeptibilität wie sie für Gleichung 2.35 nötig ist, und damit erfolgt die Addition phasenkorrekt. Das heißt, das Vorzeichen der partiellen Suszeptibilitäten enthält Information über die Phase der Polarisation gegenüber der eingestrahnten Felder. Schaut man sich den Verlauf von $\chi^{(3)}$ um eine Resonanz an, so ergibt sich ein Vorzeichenwechsel beim Wechsel von rot- zu blauverstimmten Einstrahlen der Fundamentalen. Beim Vierwellenmischen zwischen zwei Niveaus ergibt sich damit durch destruktive Interferenz eine geringere nichtlineare Suszeptibilität. Es sollen nun hier Ergebnisse dieser Rechnungen mit der in Kapitel 2.2.3 vorgestellten Rechnung verglichen werden. Dazu werden wir uns $\chi^{(3)}$ in Abhängigkeit der Frequenz des dritten Fundamentalstrahles anschauen. Dabei ist die Summenfrequenz der beiden anderen Strahlen resonant mit einer Zweiphotonenresonanz. Der dritte Fundamentalstrahl verändert die Frequenz bei der Summenfrequenz und kann diese über verschiedene Resonanzen verstimmen.

Der Vergleich der beiden vorgestellten Rechnungen zur nichtlinearen Suszeptibilität soll durch die Abhängigkeit von $\chi^{(3)}$ von der Verstimmung der Summenfrequenz der drei eingestrahnten Lichtfelder geschehen. In Abbildung 2.10 sind die beiden Berechnungen der nichtlinearen Suszeptibilität gegenübergestellt. Die Berechnung nach Al-

ford&Smith, wie sie auch in Abschnitt 2.2.3 beschrieben wurde, ist dabei in (a) zu sehen und die Berechnung wie sie in diesem Kapitel erfolgte in (b). Es wurde eine UV Verstimmung von 16,17 THz gewählt und eine Quecksilbertemperatur von 254°C. Dies entspricht Parametern, wie sie bei [Pah02, PFH⁺05] zur Erzeugung von VUV Strahlung in einem Bereich von 121 bis 123,5 nm, benutzt wurden. In (b) ist in grün der Betrag der nichtlinearen Suszeptibilität pro Atomdichte gegenüber der Wellenlänge im VUV aufgetragen, wie sie direkt aus der Rechnung resultiert. Da im Prinzip bei der Berechnung mit Hilfe der optischen Blochgleichungen eine Vielzahl an Vierniveausystemen berechnet werden müsste und dies viel Zeit in Anspruch nimmt, werden nur relevante Niveaus mit in die Rechnung integriert. Relevant bedeutet in diesem Zusammenhang, dass nur die Niveaus betrachtet werden, die eine kleine Verstimmung zu einem Laser haben. Für die Rechnung wurde im UV nur der 6^1S-6^3P und im blauen der 6^3P-7^1S Übergang berücksichtigt. Durch diese Vernachlässigung ergeben sich Diskrepanzen zu der Berechnung nach Alford&Smith. Diese können aber durch einen konstanten Offset und einen konstanten Faktor angepasst werden. Damit erhält man die blaue gestrichelte Kurve in Abbildung 2.10 (b) für den Betrag der nichtlinearen Suszeptibilität. Für die Korrektur wurde ein Offset von $\chi_{\text{off}} = 3 \times 10^{-44} \text{ m}^2/\text{V}^2$ und ein Faktor von 0,18 verwendet. Damit erhält man eine gute Übereinstimmung für diese beiden Berechnungen. In (c) ist die damit berechnete Effizienz des Vierwellenmischprozesses aufgetragen. Dazu wurde Gleichung (2.35) verwendet in die auch die Phasenfehlanpassung und die Phasenanpassungsfunktion eingeht. In rot ist die Berechnung nach Alford&Smith und in blau gestrichelt die Berechnung nach Petch gegenübergestellt. Man erhält eine gute Übereinstimmung. Es lässt sich also festhalten, dass die Berechnung mit Hilfe der optischen Blochgleichungen an die Berechnung von Alford&Smith angepasst werden kann und damit eine Theorie zur Verfügung steht, die den Einfluss von elektromagnetischer induzierter Transparenz auf den Vierwellenmischprozess in einem Vierniveausystem beschreiben kann.

Um den Effekt von EIT auf den Vierwellenmischprozess zu untersuchen, soll nun die Rechnung exemplarisch auf einen möglichen Fall angewendet werden. Um eine Einphotonabsorption zu vermeiden, kann durch eine starke Kopplung des Niveaus b an ein weiteres dieses durch ein Aufspalten der Resonanz verschoben werden. Zum Test ob der Fall von EIT vorliegt kann dann der untere Laser über die Einphotonresonanz verstimmt werden und die Absorption beobachtet werden. Dies ist in Abbildung 2.11 (a) gezeigt. Dafür wurde einmal die Rechnung mit gleich kleinen Rabifrequenzen ($\alpha = \beta = \gamma = 100 \text{ Hz}$) für alle drei Laserfelder und einmal bei erhöhter Rabifrequenz für den zweiten Koppellaser ($\beta = 200 \text{ MHz}$) durchgeführt. Man erkennt für den Fall schwacher Kopplung erhöhte Absorption, wenn die Verstimmung zur Einphotonresonanz verschwindet (grün durchgezogen). Bei starker Kopplung erhält man zwei Peaks im Spektrum, die durch die Autler-Towns Aufspaltung entstehen (blau gestrichelt). Die Absorption bei verschwindender Verstimmung zur Einphotonresonanz ist unterdrückt. Dies ist der Fall von elektromagnetisch induzierter Transparenz. Obwohl der Laser un-

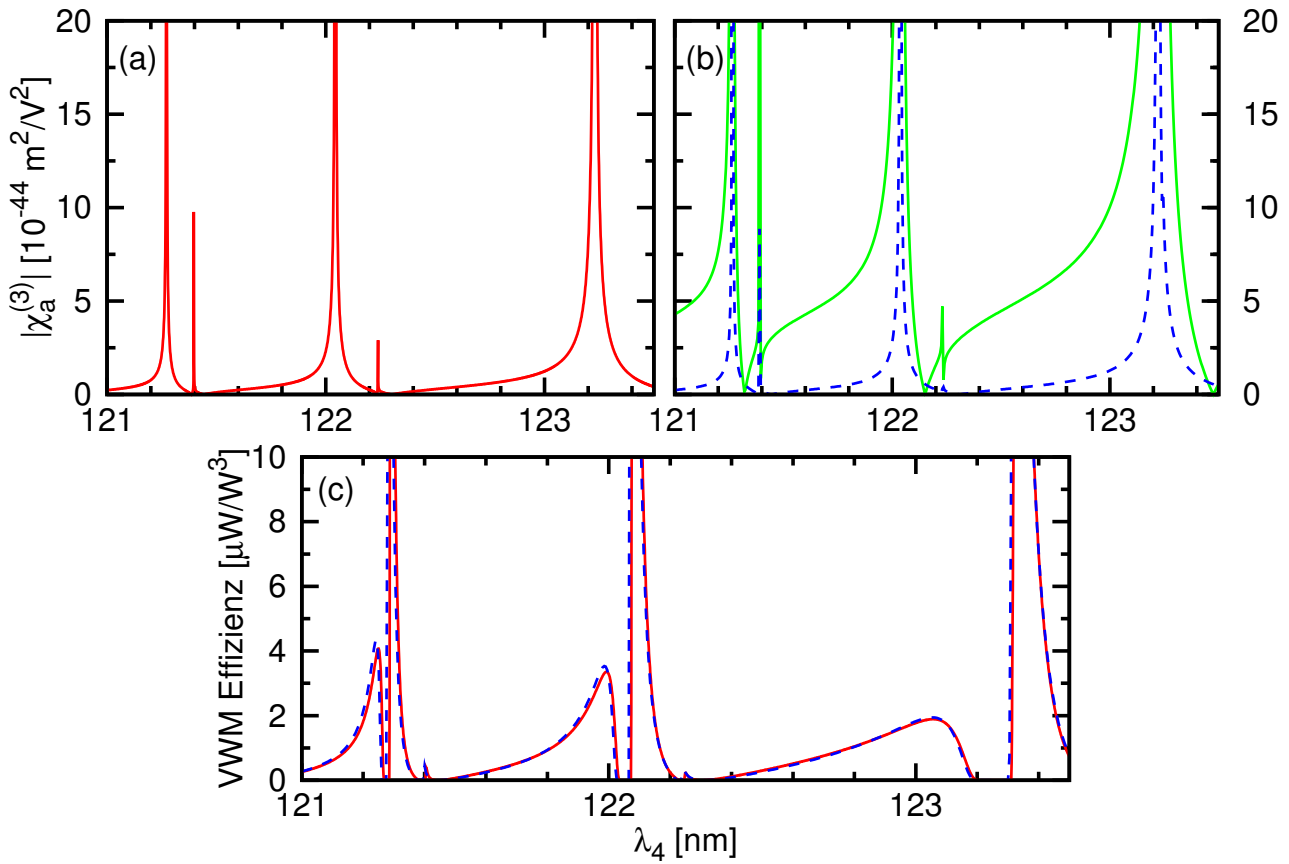


Abbildung 2.10: Vergleich der Berechnungen zur nichtlinearen Suszeptibilität.

Oben: Nichtlineare Suszeptibilität berechnet nach Kapitel 2.2.3 (a) und mit Hilfe der optischen Blochgleichungen (b). In (b) stellt die grüne durchgezogene Linie die unkorrigierte Rechnung und die blaue gestrichelte die korrigierte dar. (c) Daraus folgende Effizienzberechnung des Vierwellenmischprozess, dabei in rot durchgezogen berechnet mit der nichtlinearen Suszeptibilität aus (a) und blau gestrichelt mit der Berechnung aus (b).

verstimmt zu dem ungekoppelten Niveau eingestrahlt wird, erfährt er nur eine geringe Absorption. Für beiden Situationen ist die nichtlineare Suszeptibilität pro Atomdichte in Abbildung 2.11 (b) gezeigt. Im Falle schwacher Kopplung steigt die nichtlineare Suszeptibilität stark in der Nähe der Einphotonenresonanz an. Bei starker Kopplung erkennt man wieder die Aufspaltung des Niveaus. Im Vergleich zur Absorption verschwindet die nichtlineare Suszeptibilität jedoch nicht bei $\delta_{ab} = 0$. Die Beiträge, der durch Aufspaltung entstandenen Peaks, interferieren konstruktiv und man erhält eine erhöhte nichtlineare Suszeptibilität. Für die Rechnung wurde auf Verbreiterungsmechanismen über die natürliche Linienbreite verzichtet und es wurde zur Vereinfachung nur ein einzelnes Vierniveausystem berechnet. Um mit dieser Rechnung den Vierwellenmischprozess in Quecksilber zu simulieren, muss die Isotopen- und Hyperfeinaufspaltung der 6^3P und 7^1S Niveaus und die Dopplerverbreiterung integriert werden.

Dies kann analog zu Kapitel 2.1. Darauf wurde an dieser Stelle verzichtet.

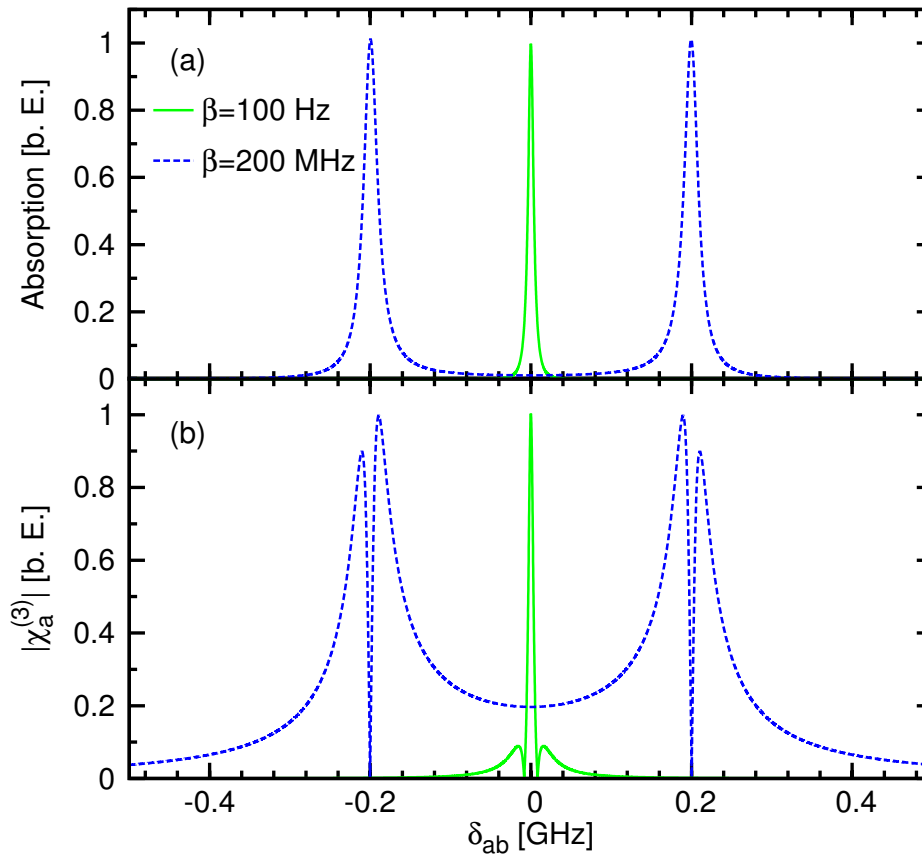


Abbildung 2.11: EIT im Vierwellenmischprozess. (a) Absorption bei ω_{ab} und (b) nichtlineare Suszeptibilität pro Atomdichte gegenüber der Verstimmung zur Einphotonresonanz des unteren Überganges. Bei den grünen durchgezogenen Kurven wurde eine Rabi-frequenz von 100 Hz für alle Laser angenommen. Bei blau gestrichelt wurde für den blauen Übergang die Rabi-frequenz $\beta = 200$ MHz eingesetzt. Obwohl die Absorption im Falle einer starken Kopplung genau auf Resonanz unterdrückt ist, bleibt die nichtlineare Suszeptibilität endlich. Alle Kurven wurden zum Vergleich auf das Maximum normiert.

Man kann festhalten, dass die Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität mit Hilfe der optischen Blochgleichungen eines Vierniveausystems dazu dienen kann, den Vierwellenmischprozess bei starken Kopplungen zu untersuchen. Da nicht alle Vierniveausysteme innerhalb von Quecksilber berücksichtigt werden, muss die Rechnung an die aus Kapitel 2.2.3 angepasst werden. Nach der Anpassung erhält man vergleichbare Ergebnisse bei beiden Berechnungen. Da die Berechnung mit optischen Blochgleichungen abhängig ist von den Rabi-frequenzen der Fundamentalen, kann der Prozess der elektromagnetisch induzierten Transparenz damit berechnet werden.

3. Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel soll der Aufbau der Lyman- α Quelle vorgestellt werden. Im ersten Abschnitt wird das fundamentale Lasersystem detailliert beschrieben. Es besteht aus einem UV Lasersystem, einem blauen Lasersystem und einem grünen Lasersystem. Danach wird näher auf die Quecksilberzelle, die den Quecksilberdampf zum Vierwellenmischen bereitstellt, eingegangen. Kritisch zum effizienten Vierwellenmischen ist der Überlapp der Fundamentalstrahlen in der Quecksilberregion. Die dazu nötige Optimierung der Strahlüberlagerung wird im letzten Abschnitt beschrieben.

3.1. Lasersystem

Wie in der Einleitung bereits dargestellt, sind für den Aufbau einer Lyman- α Quelle starke fundamentale Laser bei den Wellenlängen 253,7 nm (UV), 407,9 nm (blau) und 545,5 nm (grün) nötig. In Abbildung 3.1 ist das Energietermschema von Quecksilber abgebildet. Der UV Laser bei 253,7 nm ist nahverstimmt zu dem 6^1S-6^3P Übergang in Quecksilber. Für viele Zwecke ist es wünschenswert diesen Laser beliebig zu diesem Übergang verstimmen zu können. Dieses System wird in dem nachfolgenden Abschnitt näher beschrieben. Der zweite Fundamentalstrahl bei der blauen Wellenlänge ermöglicht zusammen mit dem UV Strahl das Ausnutzen der 6^1S-7^1S Zweiphotonenresonanz, welche für den Aufbau der kontinuierlichen Lyman- α -Quelle essentiell ist. Die Wellenlänge ist kontinuierlich verstimmbar und ermöglicht Experimente zur Zweiphotonenresonanz. Dieses Lasersystem wird im zweiten Abschnitt dieses Kapitels beschrieben. Der dritte Fundamentalstrahl bei 545,5 nm im grünen Wellenlängenbereich ist für die Lyman- α Produktion durch den Abstand zwischen der Lyman- α Frequenz und der Übergangsfrequenz der Zweiphotonenresonanz festgelegt. Dieses System wird im dritten Abschnitt dieses Kapitels beschrieben.

Alle Lasersysteme müssen folgende Bedingungen erfüllen:

1. kontinuierlicher Laserbetrieb,
2. hohe Leistung,
3. schmale Linienbreite und
4. hohe Zuverlässigkeit.

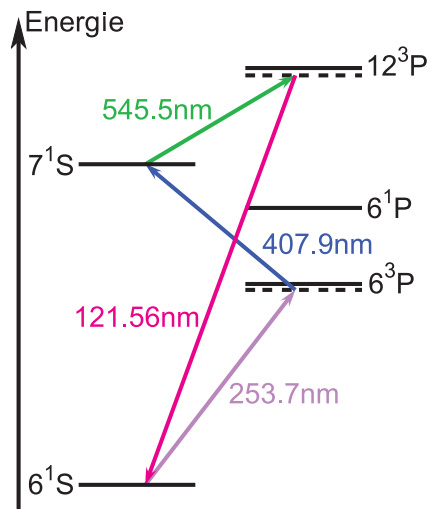


Abbildung 3.1: Energiediagramm Quecksilber. Darstellung der relevanten Energieniveaus zum Vierwellenmischen in Quecksilber. Der UV Laser bei 253,7 nm ist nahverstimmt zum 6^1S – 6^3P Übergang in Quecksilber. Der blaue Laser bei 407,9 nm ermöglicht das Ausnutzen der 6^1S – 7^1S Zweiphotonenresonanz. Die noch benötigte Wellenlänge um auf die Lyman- α Wellenlänge zu kommen beträgt 545,5 nm.

Dazu werden für alle Lasersysteme als Ausgang kontinuierliche (*cw - continuous wave*) infrarote, einfrequente Festkörperlaser verwendet. Diese IR Laser werden dann mit externen Frequenzverdopplungen auf die benötigten Wellenlängen gebracht.

3.1.1. Das UV Lasersystem

Kernelement des UV Lasersystems bei 253,7 nm bildet ein Ytterbium:YAG (Yttrium-Aluminium-Granat) Scheibenlaser (ELS Model 1030-50), der fern von seinem Hauptverstärkungsmaximum bei 1014 nm betrieben wird. Bei einfrequenterem Betrieb auf seinem Hauptmaximum (1030 nm) liefert dieser Laser bis zu 50 W Leistung. In Abbildung 3.2 ist das Verstärkungsprofil von Yb:YAG gezeigt. Deutlich ist das Hauptmaximum bei 1030 nm und das schwächere Nebenmaximum bei 1050 nm zu erkennen. Desweiteren ist auch bei 1014 nm noch eine geringe Verstärkung vorhanden und somit ist auch hier Laserbetrieb möglich. Durch das stark verringerte Verstärkungsprofil ist jedoch nur noch eine Ausgangsleistung von bis zu 5 W möglich. Der Laserresonator ist ein gefalteter linearer Resonator, begrenzt durch einen hochreflektierenden Spiegel, auf den das aktive Lasermaterial aufgedampft ist und einem 99% Auskoppelspiegel. Ein entscheidender Vorteil eines Scheibenlasers ist die verhältnismäßig kleine thermische Linse die sich im laseraktiven Bereich ausbildet und durch effizientes Kühlen der dünnen Scheibe klein gehalten werden kann. Der einfrequente Betrieb wird durch frequenzselektive Elemente erzielt. Für eine grobe Frequenzvorauswahl, wird ein Lyotfilter verwendet. Zusammen mit einem temperaturstabilisierten Etalon ermöglicht dies den einfrequenteren Betrieb. Die Wellenlänge kann über den Rotationswinkel des Lyotfilters, die Temperatur des Etalons und die Länge des Resonators beliebig im Bereich

des Emissionsprofils variiert werden. Die Länge des Resonators kann mit Hilfe des, auf einen Piezokristall angebrachten, Auskoppelspiegels geändert und somit auch eine Frequenzstabilisierung erzielt werden. Abbildung 3.3 zeigt den schematischen Aufbau des UV Lasersystems. Im oberen Teil der Abbildung ist der Scheibenlaser schematisch dargestellt. Die Wellenlänge wird mit Hilfe eines Wellenlängenmessgerätes auf Basis eines Fizeauinterferometers gemessen. Dieses kann zur Stabilisierung der Wellenlänge ein Fehlersignal an eine Regelelektronik geben, die die Länge des Resonators mit Hilfe der Piezokeramik verändert.

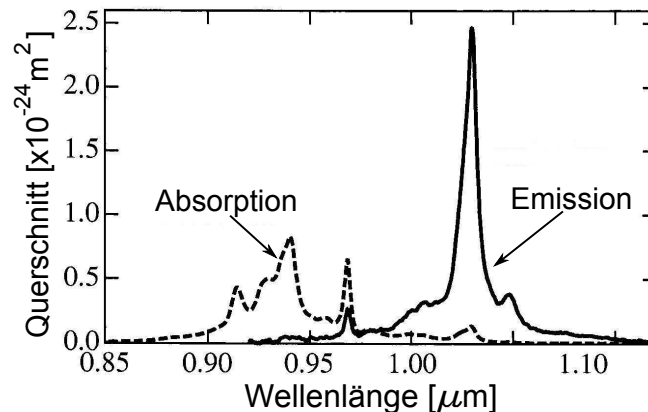


Abbildung 3.2: Absorptions- und Emissionsquerschnitte von Yb:YAG. Das Emissionsspektrum des Yb:YAG ist zu größeren Wellenlängen gegenüber der Absorption verschoben. Das Emissionsmaximum liegt bei 1030 nm mit einem Nebenmaximum bei 1050 nm. Die Schulter bei 1 µm Wellenlänge ermöglicht den Betrieb des Lasers bei 1014 nm. Aus [SPK⁺01].

Der ausgehende Strahl bei einer Wellenlänge von 1014,8 nm muss frequenzvervieracht werden um die gewünschte Wellenlänge von 253,7 nm zu liefern. Dies wird durch zwei sukzessive Frequenzverdopplungen erzielt. Der Strahl wird dafür zunächst in einen Überhöhungsresonator eingekoppelt, in dem ein temperaturphasenangepasster LBO (Lithium Triborat) Kristall zur Frequenzverdopplung im Strahlfokus steht. Der Überhöhungsresonator ist in der Doppel-Z-Geometrie aufgebaut und wird begrenzt durch zwei gekrümmte Spiegel (Krümmungsradius 75 mm), die den scharfen Fokus im Verdopplungskristall erzeugen, einen auf einer Piezokeramik aufgebrauchten Spiegel und einen Einkoppelspiegel. Alle Spiegel, bis auf den Einkoppelspiegel (96%), sind hochreflektierend für die Fundamentalstrahlung und zusätzlich ist der Auskoppelspiegel hochtransmittierend für die harmonische Strahlung. Bei IR Leistungen von 4,8 W werden bis zu 3 W im Grünen bei 507,5 nm erreicht. Dies entspricht einer Frequenzkonversion von 62%. Die zweite Verdopplung wird ebenfalls in einem Überhöhungsresonator in Doppel-Z-Geometrie erzielt. Hier dient ein winkelphasenangepasster BBO-Kristall (β -Barium borat) als nichtlineares Medium. Es werden Leistungen von bis zu 750 mW bei Eingangsleistungen im Grünen von 2 W erzielt [Sch06, SMW⁺07]. Dies entspricht einer Konversionseffizienz von 38%. Bei höheren Eingangsleistungen verhindern Degradierungseffekte im Kristall noch höhere UV Leistungen [KOW⁺98]. Beide Resonatoren

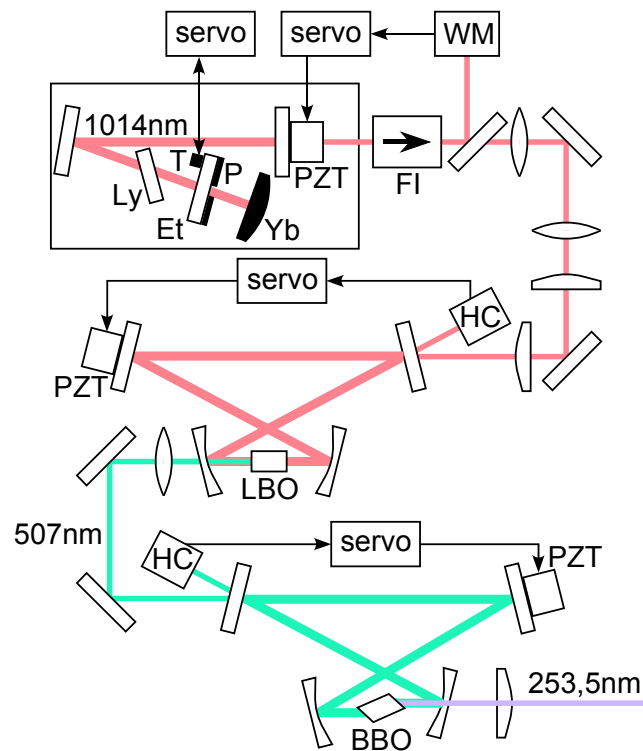


Abbildung 3.3: Aufbau des 254 nm-Lasers *Yb*: Yb:YAG Scheibe, *Et*: Etalon, *P*: Polierelement, *T*: Thermistor, *Ly*: doppelbrechender (Lyot-) Filter, *PZT*: Piezokeramiken, *FI*: Faradayisolator, *WM*: Wavemeter, *HC*: Einheit zur Erzeugung und Detektion des Hänsch-Couillaud-Fehlersignals, *LBO*, *BBO*: nichtlineare optische Kristalle, *servo*: Stabilisierungselektronik.

werden mit Hilfe einer polarisationssensitiven Messmethode (Hänsch-Couillaud Methode [HC80]) auf ein Vielfaches der Fundamentalwellenlänge längenstabilisiert. Mit diesem Lasersystem ist es möglich beliebige Wellenlängen in der Umgebung des 6^1S-6^3P Übergangs in Quecksilber zu erzielen. Abbildung 3.4 zeigt einen Frequenzscan der UV Wellenlänge um diesen Frequenzbereich. Durch gleichzeitiges Verstellen der Resonatorlänge des Scheibenlasers und der Temperatur des Etalons ist es möglich einen kontinuierlichen Frequenzscan durchzuführen. Abgebildet ist das Signal einer Photodiode hinter einer 1 mm langen Quecksilberzelle bei Raumtemperatur. Das Signal wurde auf die UV Leistung normiert. Um den 6^1S-6^3P Übergang nicht zu sättigen, wurde die Leistung auf ca. 1 mW abgeschwächt und der Strahl nicht weiter fokussiert. Von den verschiedenen Quecksilberisotopen sind Absorptionsdips zu sehen. Damit ist gezeigt, dass mit diesem System beliebige Wellenlängen um den 6^1S-6^3P Übergang bei 253,7 nm erreicht werden können. Für den täglich Betrieb stehen mit diesem Lasersystem über mehrere Stunden stabil Leistungen im Bereich von 200 - 300 mW zur Verfügung. Durch den großen *walk-off* Winkel bei der Frequenzverdopplung von 507,5 nm zu 253,7 nm ergibt sich ein von einem Gaußstrahl stark abweichendes Profil. In Abbildung 3.5 ist das Strahlprofil gezeigt. Man erkennt mehrere waagerechte Streifen in vertikaler Richtung die gerade in Richtung des *walk-off* Winkels durch Interferenz entstehen. Der Ein-

fluss dieses Strahlprofils auf den Vierwellenmischprozess wird in Kapitel 4.2.4 näher beschrieben.

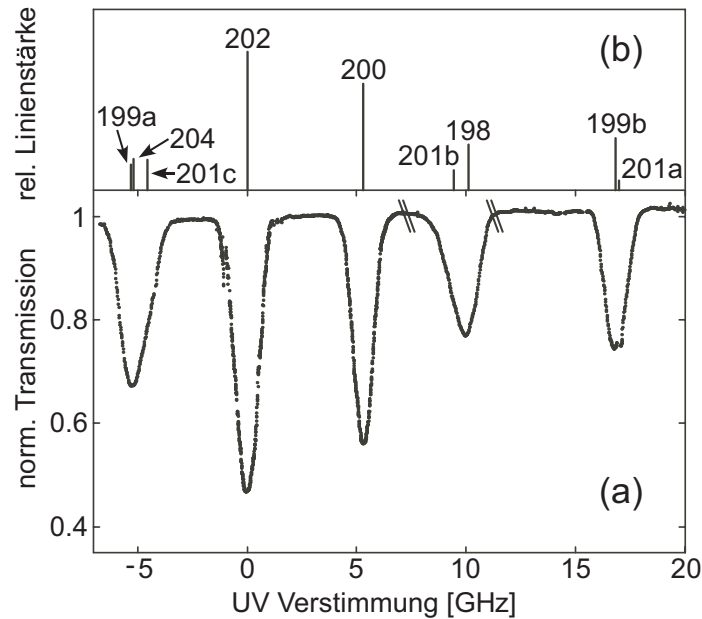


Abbildung 3.4: Quecksilberspektroskopie. (a) Absorptionsspektrum des $6^1S - 6^3P$ -Übergangs in atomarem Quecksilber. (b) Linienmitten der unterschiedlichen Quecksilberisotope. Buchstaben bezeichnen Hyperfeinkomponenten der ungeraden Isotope. a: $F = 1/2$; b: $F = 3/2$; c: $F = 5/2$. Die UV Verstimung wird gegenüber der Linienmitte des ^{202}Hg Isotops angegeben.

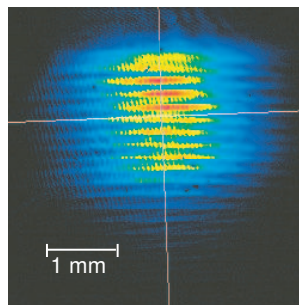


Abbildung 3.5: Strahlprofil des UV Lasers. Das Strahlprofil des UV Lasers ist durch den *walk-off* Winkel des BBO Kristalls stark abweichend von dem eines Gaußstrahls.

3.1.2. Das blaue Lasersystem

Für eine leistungsstarke kontinuierliche Lyman- α Quelle ist das Ausnutzen einer Zweiphotonenresonanz essentiell. In Quecksilber bietet sich dabei der $6^1S - 7^1S$ Übergang an. Eine Zweiphotonenresonanz hat im Vergleich zu einer Einphotonenresonanz den

entscheidenden Vorteil, dass neben der enormen Steigerung der nichtlinearen Suszeptibilität eine wesentlich geringere Absorption stattfindet. Effekte, die beim Ausnutzen einer Zweiphotonenresonanz auftreten können und in Konkurrenz zum Vierwellenmischen stehen, werden in [SAH88] näher erläutert. Dies sind zum Beispiel neben der Zweiphotonenabsorption: stimulierte Raman-Prozesse, parametrische Prozesse und verstärkte spontane Emission. Diese Effekte spielen, wie wir es im Falle der verstärkten spontanen Emission auch in Kapitel 4.2.2 näher betrachten werden, in unserem Intensitätsbereich kaum eine Rolle.

Zum Ausnutzen der Zweiphotonenresonanz muss die Summe aus der UV Frequenz und der blauen Frequenz auf die Übergangsfrequenz des Zweiphotonenübergangs angepasst werden. Dazu wird bei einer UV Wellenlänge von 253,7 nm eine blaue Wellenlänge von 407,9 nm benötigt. Dies wird ermöglicht durch einen frequenzverdoppelten Titan:Saphir (Ti:Sa) Laser. In Abbildung 3.6 ist das Gesamtlasersystem für den blauen Strahl dargestellt.

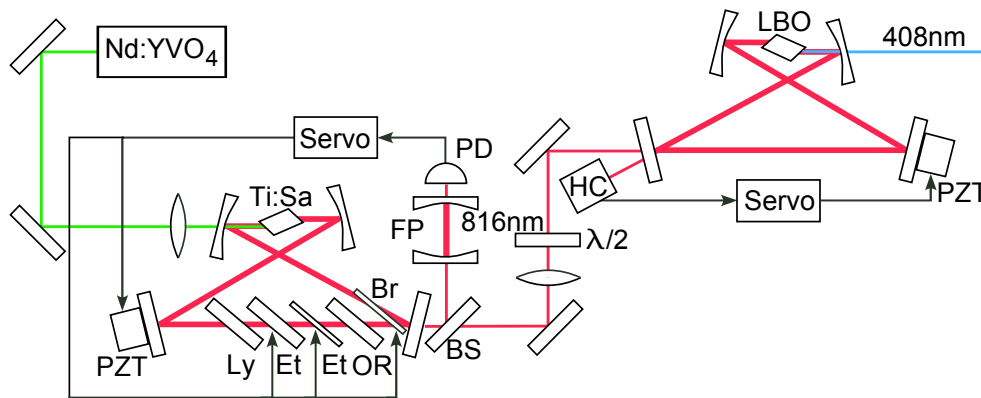


Abbildung 3.6: Aufbau des 408 nm-Lasers. *Ti:Sa*: Titan:Saphir-Kristall, *PZT*: Piezokeramiken, *Ly*: Lyot-Filter, *Et*: Etalon, *OR*: optische Diode, *Br*: Brewsterplättchen, *BS*: Strahlteiler, *PD*: Photodiode, $\lambda/2$: Wellenplatte, *HC*: Einheit zur Erzeugung und Detektion des Hänsch-Couillaud-Fehlersignals, *LBO*: Lithium-Triborat-Kristall., *Nd:YVO₄*: verdoppelter Neodym:Ytterbium-Vanadat Laser, *servo*: Stabilisierungselektronik.

Der Ti:Sa Kristall wird dabei von einem intern frequenzverdoppelten Neodym:Ytterbium-Vanadat (Nd:YVO_4) Laser mit einer Ausgangsleistung von 10,5 W bei einer Wellenlänge von 532 nm gepumpt. Einfrequenter Betrieb wird hier durch ein Lyotfilter, ein dünnes und ein dickes Etalon ermöglicht. Eine optische Diode zwingt den Resonator unidirektional anzuschwingen. Eine Brewsterplatte und eine Piezokeramik werden verwendet um den Resonator auf einen externen Fabry-Perot-Resonator zu stabilisieren. Gemeinsame Scans der Resonatorlänge mit Hilfe des Piezokristalls und der Brewsterplatte sowie eine Verkipfung der Etalons ermöglichen auch kontinuierliche Veränderungen der Laserfrequenz von bis zu 30 GHz. Es werden maximale Ausgangsleistungen bei 816 nm von bis zu 1,65 W erzielt. Die nötige Wellenlänge von 407,9 nm wird durch eine externe Frequenzverdopplung erreicht. Dieser Resonator ist wiederum in der Doppel-Z-Geometrie aufgebaut und wird über das Hänsch-Couillaud Stabilisierungsverfahren

auf ein Vielfaches der Laserwellenlänge stabilisiert. Ein winkelphasenangepasster LBO-Kristall dient als nichtlineares Medium. Er wird, um ihn vor Feuchtigkeit zu schützen, auf 45°C geheizt. Aus 1,65 W IR Licht können so bis zu 650 mW blaue Leistung erzielt werden. Für den täglichen Betrieb ohne Justageaufwand ergibt sich eine stabile Leistung von ca. 300 mW. Der Resonator kann der Laserfrequenz bei einem Scan ca. 3,5 GHz folgen, dann muss der Resonator einen neuen Stabilisierungspunkt suchen. Frequenzscans des blauen Lasers sind vorallem für die Messungen zur Zweiphotonenresonanz, die im Kapitel 4.1 vorgestellt werden, sehr wichtig.

In Abbildung 3.7 ist das Strahlprofil des blauen Lasers dargestellt. Auch hier erkennt man durch den *walk-off* des Verdopplungskristalls eine nicht rein gaußförmige Leistungsverteilung. Aber durch den deutlich geringeren *walk-off* Winkel ist der Effekt viel kleiner als bei dem UV Laser (vgl. Abbildung 3.5).

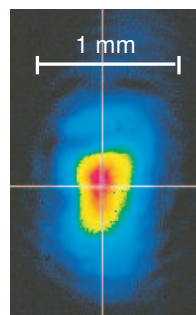


Abbildung 3.7: Strahlprofil des blauen Lasers.

Für die Messungen mit sehr kleinen Rabi-Frequenzen (siehe Kapitel 4.1.3) wurde ein anderes IR Lasersystem verwendet. In Abbildung 3.8 ist ein Schema dieses System dargestellt. Der Ausgangsstrahl einer gitterstabilisierten Laserdiode im Littrow-Aufbau [RWE⁺95] wird mit Hilfe zweier Trapezverstärker (TA) auf bis zu 1 W verstärkt. Damit stehen hinter einer optischen Diode, die zwingend zum Schutz des Trapezverstärkers nötig ist, 750 mW zur Verfügung. Durch das schlechtere Strahlprofil lassen sich von diesem Strahl nur ca. 30% in den Verdopplungsresonator einkoppeln. Mit diesem System können blaue Leistungen bis zu 30 mW realisiert werden. Durch die Überlagerung zweier TA Strahlen lässt sich im Prinzip sogar ein halbleiterbasierter Laser bei 816 nm realisieren, der bis zu 1,6 W zur Verfügung stellt [Kol07].

Durch das Ausbleiben der Weiterentwicklung von TA-Chips im Wellenlängenbereich von 816 nm, sowohl zu höheren Leistungen als auch zur Verbesserung des Strahlprofils, wird für das Vierwellenmischen das Ti:Sa Lasersystem verwendet.

3.1.3. Das grüne Lasersystem

Die fehlende Energie vom 7^1S Niveau bis zur Lyman- α -Frequenz legt die Frequenz des dritten Fundamentalstrahls fest. Die benötigte Wellenlänge liegt bei einer Wellenlänge

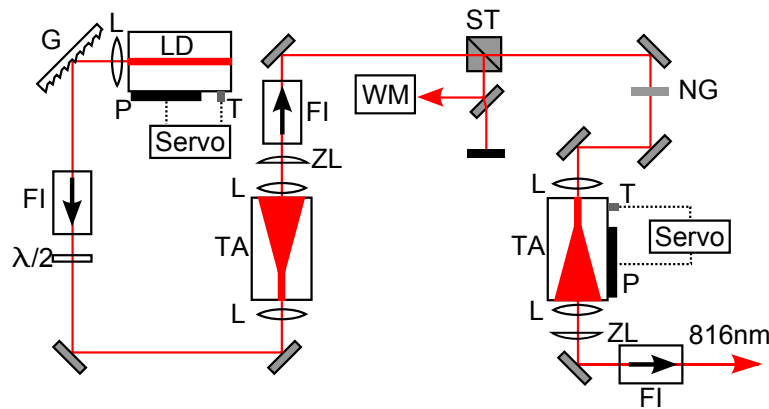


Abbildung 3.8: Alternativer Aufbau zur Erzeugung von 816 nm. *LD*: Laserdiode, *TA*: Trapezverstärker, *FI*: Faradayisolator, $\lambda/2$: Wellenplatten, *L*, *ZL*: Linsen bzw. Zylinderlinsen, *T*: Thermoelement, *P*: Peltierelement, *ST*: Strahlteiler, *NG*: Neutralgraufilter, *G*: Littrow-Gitter.

von 545,5 nm im Grünen. Das Lasersystem dazu besteht aus einem kommerziellen Laseroszillator mit zwei Verstärkereinheiten und einem modifizierten kommerziellen Verdopplungsresonator. Es ist in Abbildung 3.9 dargestellt. Der Laseroszillator besteht aus einem Ytterbium-dotiertem Faserlaser, der eine maximale Ausgangsleistung von 127 mW generiert. Durch die Temperatur der Faser lässt sich die Wellenlänge von 1090,81 nm bis 1091,19 nm verstellen. Für schnelle Modulationen ist die Faser durch eine Piezokeramik in der Länge verstellbar, womit die Frequenz um bis zu 8,4 GHz verstimmbar ist. Mit Hilfe eines Vor- und Hauptverstärkers wird die Leistung auf bis zu 9,3 W weiter verstärkt.

Die Frequenzverdopplung von 1091 nm auf 545,5 nm geschieht in einer kommerziellen Frequenzverdopplungseinheit. Ein Resonator zur Leistungsüberhöhung beinhaltet einen brewstergeschnittenen LBO Kristall, der zur Frequenzverdopplung genutzt wird. Er wird mit dem Pound-Drever-Hall Verfahren [DHK⁺83] auf ein Vielfaches der Fundamentallwellenlänge stabilisiert. Dazu werden der Fundamentalfrequenz Seitenbänder aufmoduliert. Dies geschieht in einem Phasenmodulator, der zwischen dem Laseroszillator und der ersten Verstärkereinheit platziert ist. Der Resonator ist in der so genannten Dreieckskonfiguration aufgebaut [ZMLG99]. Er ist durch zwei gekrümmte Spiegel und einem Prisma beschränkt. Das Prisma ist auf eine Piezokeramik aufgebracht und kann so die Länge des Resonators verändern und damit die Stabilisierungsbedingung des Resonators erfüllen. Die dreieckige Konfiguration hat, im Vergleich zur Doppel-Z-Konfiguration, mehrere Stabilitätsvorteile. Durch den kürzeren Umlaufweg fallen Strahlpositionsschwankungen weniger ins Gewicht. Darüber hinaus ist die Linibreite eines kürzeren Resonators bei gleicher Finesse größer als für einen längeren Resonator. Dadurch lässt sich der Resonator einfacher auf die Laserfrequenz stabilisieren. Durch das Einfassen des Resonators in ein massives Resonatorgehäuse, ist

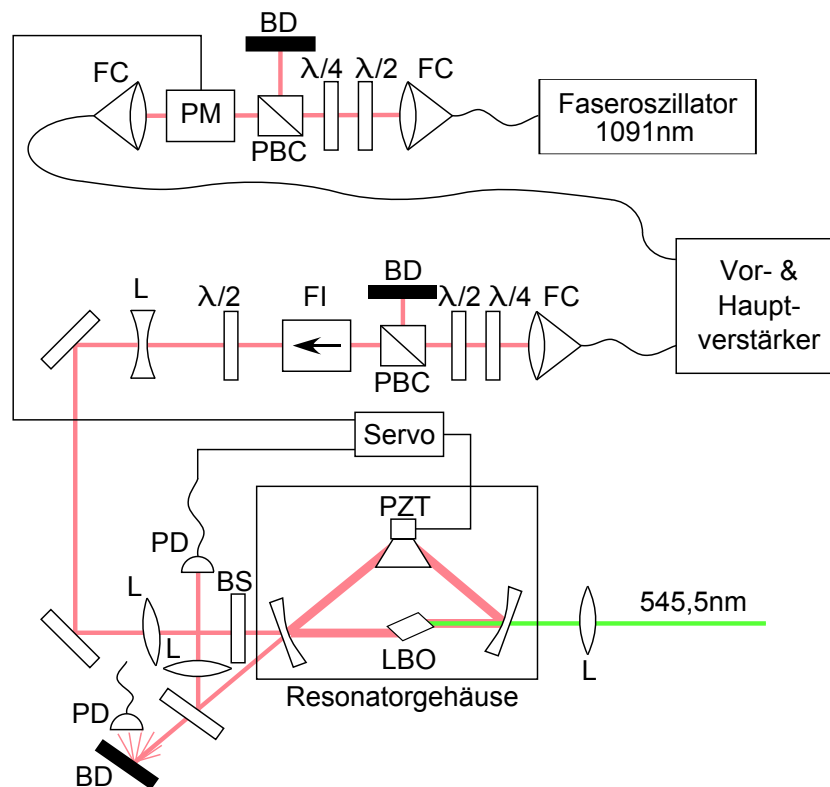


Abbildung 3.9: Aufbau des 546 nm-Lasers. *WM*: Wavemeter, *FC*: Faserkoppler, $\lambda/4$, $\lambda/2$: Wellenplatten, *PBC*: polarisierende Strahlteilerwürfel, *BD*: Strahlblocker, *PM*: Phasenmodulator, *PD*: Photodioden, *FI*: Faradayisolator, *BS*: Strahlverschieber, *LBO*: Lithium Triborat-Kristall, *PZT*: Piezokeramik, *L*: Linse.

der Resonator auch wesentlich weniger anfällig auf akustische Störungen, was sich in einem stabileren Betrieb bemerkbar macht. Aus 8,3 W IR Leistung, die nach einem Faradayisolator zur Verfügung stehen, erhält man bis zu 4,1 W bei 545,5 nm [MSKW07]. Da die kommerzielle Verdopplungseinheit für solch hohe Leistungen nicht konzipiert wurde, waren mehrere Modifikationen nötig. Zum Einen wurde der Phasenmodulator bereits zwischen den Oszillator und die Verstärker gestellt. Zum Anderen ist die Temperaturstabilisierung der LBO-Kristallheizung nicht für die anfallende thermische Last, verursacht durch die Absorption der IR Strahlung im Kristall, ausgelegt. Deshalb muss für den Betrieb bei hohen Leistungen der Gehäusedeckel des Resonatorgehäuses abgenommen werden, um einen ausreichenden Wärmeabtransport zu gewährleisten. Auch ändert sich durch das Aufwärmen des Kristalls der Phasenanpassungswinkel und muss im laufenden Betrieb nachgeregelt werden. Trotzdem lassen sich mit diesem Aufbau über mehrere Stunden stabil hohe Leistungen im Grünen produzieren. Durch den kleinen *walk-off* Winkel im Vergleich zu den Verdopplungen im UV und im blauen Wellenlängenbereich ergibt sich hier der kleinste Effekt im Strahlprofil und man erhält ein fast gaußförmiges Strahlprofil hinter der Verdopplung (siehe Abbildung 3.10).

Um die Frequenzstabilität und die Möglichkeit des Frequenzscans zu testen, wurde eine dopplerfreie Jodspektroskopie aufgebaut. In Abbildung 3.11 ist eine Aufnahme eines

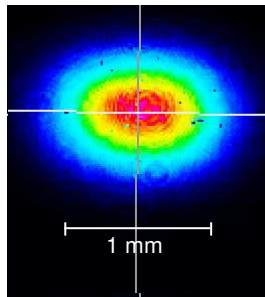


Abbildung 3.10: Strahlprofil des grünen Lasers.

solchen Spektrums zu sehen. Im oberen Teil ist ein dopplerverbreitertes Absorptionsspektrum zu sehen. Dabei wurde der Faseroszillator über seinen kompletten Temperaturbereich durchgestimmt. An den Stellen, die mit einem kleinen Pfeil markiert sind, konnte der Verdopplungsresonator der Laserfrequenz nicht weiter folgen und musste sich einen neuen Stabilisierungspunkt suchen. Im unteren Bereich der Abbildung 3.11 ist eine dopplerfreie Spektroskopie an der dopplerverbreiterten Linie im rechten Bereich des weiten Spektrums zu sehen. Dazu wurde eine Sättigungsspektroskopie aufgebaut und die Frequenz mit Hilfe der Piezokeramik zur Längenänderung der Faser verstimmt. Zum Abschluss muss noch eine einschränkende Ergänzung zu dem Faserlasersystem gemacht werden. Auch wenn der Hersteller des Faserlasersystems einen stabilen Betrieb bei Ausgangsleistungen bis zu 9,3 W spezifiziert, kann bei hohen Leistungen durch erhöhte Emission in Gegenrichtung die Eintrittsfacette des Faserverstärker beschädigt werden. Um die mehrmonatigen Reparaturzeiten einzusparen, betreiben wir den Faserlaser bei reduzierten Ausgangsleistungen von kleiner 800 mW und erhalten grüne Leistungen von 300 mW. Bei diesen sehr konservativen Einstellungen läuft das System vollkommen einwandfrei.

Um in Zukunft nicht mehr auf Reparaturen des Herstellers angewiesen zu sein, wurde in unserer Gruppe ein alternatives Faserverstärkersystem aufgebaut. Es besteht aus zwei Verstärkerstufen. Die erste Verstärkerstufe kann Leistungen bis 3 W stabil erzeugen [Ste09] und die zweite Verstärkerstufe kann ohne Probleme Leistungen von 30 W im IR erreichen. Bei diesem System können alle Reparaturen, die an den Fasern anfallen könnten, selbstständig innerhalb weniger Tage durchgeführt werden. Bei einer möglichen Konversionseffizienz von 75% wäre so eine grüne Quelle mit bis zu 23 W möglich. Durch eine stärkere Pumpquelle wäre sogar eine grüne 100 W Laserquelle denkbar [MWD10].

Grünes Lasersystem bei 540 nm

Für die Messungen in Kapitel 4.2.5 wurde das Faserlasersystem variiert um eine Wellenlänge von 540 nm zu generieren. In Abbildung 3.12 ist das Emissionsspektrum einer Yb-Faser dargestellt. Ytterbium Fasern decken den gesamten Bereich zwischen 1000

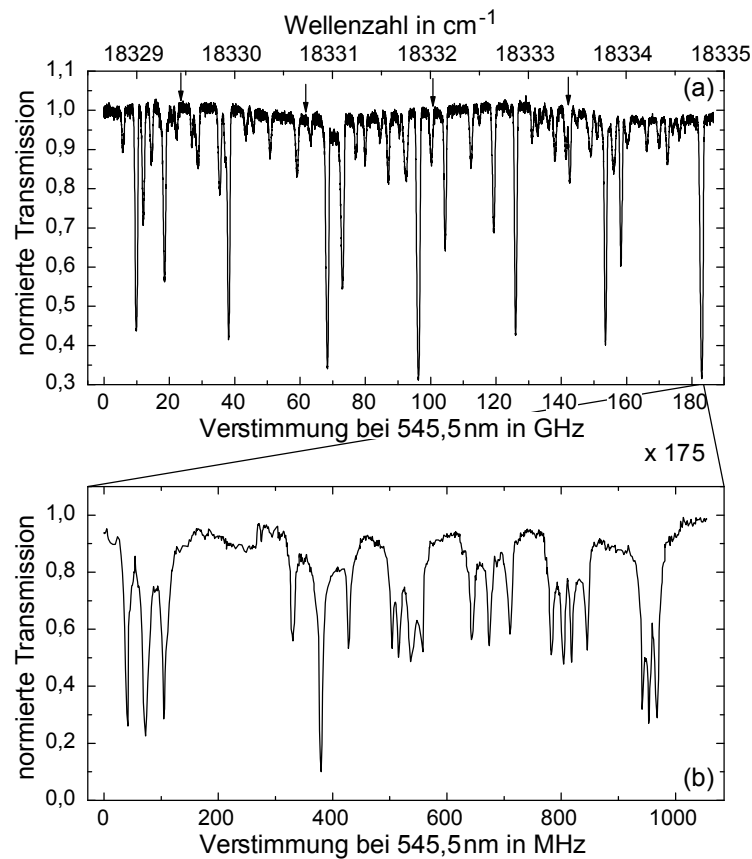


Abbildung 3.11: Jodspektroskopie. (a) Dopplerverbreitertes Spektrum im gesamtenm Scanbereich des grünen Lasers. Pfeile markieren Stellen, an denen der Resonator neu stabilisiert werden. (b) Dopplerfreie Sättigungsspektroskopie von der in (a) ganz rechten verbreiterten Linie.

bis 1200 nm ab [PCH⁺95]. Um also das System auf eine Wellenlänge von 540 nm zu verändern muss nur eine andere Oszillatorfrequenz verwendet werden. Hierfür wurde eine gitterstabilisierte Laserdiode im Littrowaufbau verwendet. Die resultierende Leistung von 50 mW wird fasergekoppelt als Quellenlaser für die kommerziellen Faserverstärker genutzt. Damit stehen 800 mW IR Leistung bei 1080 nm bereit, die verdoppelt die gewünschten 540 nm liefern. Zum Verdoppeln muss lediglich der Kristallwinkel verändert werden, um die Phasenanpassungsbedingung bei der veränderten Wellenlänge zu erfüllen.

3.2. Aufbau der Lyman- α Quelle

In diesem Abschnitt soll der Aufbau der Lyman- α Quelle beschrieben werden. Dazu sind zwei Teile nötig: Zum Einen das fundamentale Lasersystem (siehe Kapitel 3.1) und zum Anderen die Quecksilbervakuumapparatur, die einen konstanten Quecksilberdampfdruck erzeugen kann. Darüber hinaus ist es extrem wichtig einen guten Über-

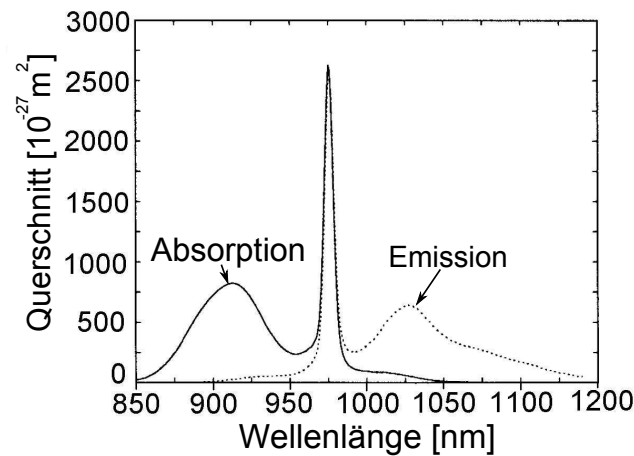


Abbildung 3.12: Absorptions- und Emissionsquerschnitte von Yb^{3+} dotiertem Germanosilikatglas. Der rechte Emissionspeak kann zwischen 1000 nm und 1200 nm zur Verstärkung genutzt werden. Aus [PNTH97].

lapp der einzelnen Fundamentalstrahlen im Fokusbereich zu gewährleisten. In diesem Abschnitt wird zunächst die Strahlformung und -überlappung in longitudinaler sowie transversaler Richtung zum Strahl beschrieben und danach die Quecksilberdampfzelle. In Abbildung 3.13 ist der Aufbau der Lyman- α Quelle skizziert. Im unteren Bereich findet sich das fundamentale Lasersystem bestehend aus dem frequenzvervierfachen Scheibenlaser für die 254 nm, dem frequenzverdoppelten Titan:Saphir Laser für die 408 nm und dem frequenzverdoppelten Faserlaser mit Faserverstärker für die 545 nm. Alle drei Strahlen werden getrennt durch ein Zylinderlinsenteleskop rund geformt und von ihrem Astigmatismus befreit. Ein normales Teleskop dient dann zum Einen dazu die Strahlen möglichst groß aufzuweiten, um einen schärferen Fokus zu ermöglichen, zum Anderen dazu die Divergenz der einzelnen Strahlen getrennt ändern zu können. Die Strahlen werden dann an dichroitischen Spiegeln überlagert. Gemeinsam werden die Strahlen durch eine Fokussierlinse mit einer Brennweite von $f = 15 \text{ cm}$ in die Quecksilberdampfzelle fokussiert. Die Zelle ist in zwei Bereiche unterteilt. Der Vierwellenmischbereich, in dem der Vierwellenmischprozess stattfindet, ist mit Hilfe einer vakuumgedichteten Magnesiumfluoridlinse vom Separations und Detektionsbereich getrennt. Beide Bereiche sind bis auf einen Restgasdruck von 10^{-7} mbar abpumpbar. Im Vierwellenmischbereich ist der Quecksilberbereich durch gekühlte Aperturen von dem Vakuumbereich getrennt. An den gekühlten Aperturen wird durch Kondensation das Austreten von Quecksilberdampf verhindert und flüssiges Quecksilber kann über den Rücklauf zum Quecksilberreservoir zurückfließen. Um zusätzlich die Optiken vor Quecksilberkontamination zu schützen, kann Helium als Puffergas in die Apparatur eingelassen werden. Mit einem Puffergasdruck von 100 mbar lassen sich so mit dieser Konstruktion Quecksilbertemperaturen von bis zu 240°C einstellen, ohne dass Kondensation von Quecksilber an Optiken beobachtet wird. Dies entspricht einer Atomdichte von $1 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$. Ab dem Quecksilberbereich propagiert neben den Fundamentalstrah-

len auch der Lyman- α -Strahl mit. Dieser muss vor der Detektion von den Fundamentalstrahlen getrennt werden. Dies wird durch die Dispersion der MgF_2 Linse erzielt. Diese weist bedingt durch die stark unterschiedlichen Wellenlängen eine andere Brennweite für die Lyman- α Wellenlänge im Vergleich zu den Fundamentalwellenlängen auf ($f = 21,5 \text{ cm}$ bei 546 nm , $f = 13 \text{ cm}$ bei Lyman- α). Dadurch ergibt sich der Fokus von Lyman- α deutlich früher. An der Fokusposition der Fundamentalstrahlen ist der Lyman- α -Strahl bereits wieder aufgeweitet. So lassen sich die Fundamentalstrahlen durch einen kleinen Spiegel an der Fokusposition der Fundamentalstrahlen aus der Apparatur herausreflektieren. Der Verlust bei Lyman- α lässt sich abschätzen auf ca. 30%. Darüber hinaus hat man so Zugriff auf die Fundamentalstrahlen und auch auf das Fluoreszenzlicht aus dem Zweiphotonenprozess. Weitere Unterdrückung der Fundamentalstrahlen wird durch das Einbringen von VUV Interferenzfiltern (Acton, 122-N und 122-XN) erzielt. Diese weisen eine UV zu VUV Unterdrückung von 60 (122-N) und 3000 (122-XN) auf. Dabei beträgt die Transmission bei Lyman- α 14% (122-N) bzw. 4% (122-XN). Die Detektion erfolgt mit Hilfe eines Photomultipliers (Hamamatsu, R6835), der eine erhöhte Empfindlichkeit im VUV Wellenlängenbereich aufweist und blind im sichtbaren Bereich ist. Sich noch ergebende Untergrundzählraten lassen sich durch Differenzbildung zweier aufeinanderfolgender Messpunkte (mit und ohne grünem Strahl) eliminieren. Dazu kann der grüne Strahl periodisch unterbrochen werden. Da Helium durch das Magnesiumfluoridfenster des Photomultipliers diffundiert [BKV00], wird der Detektionsbereich mit Argon als Puffergas befüllt.

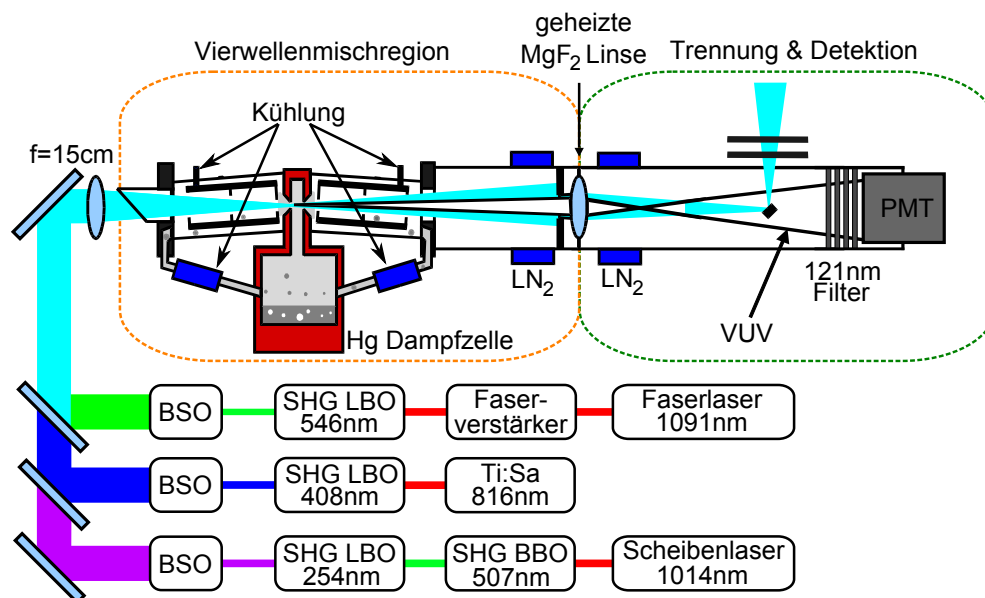


Abbildung 3.13: Aufbau der Lyman- α Quelle. Die Fundamentallaser werden an Dichroiten überlagert und mit einer Linse in den Vierwellenmischbereich fokussiert. Im hinteren Bereich der Zelle wird die Trennung der Lyman- α Strahlung von den Fundamentalstrahlen durchgeführt und detektiert. LN_2 : Kühlfalle mit flüssigem Stickstoff, PMT : Photomultiplier.

3.2.1. Strahlüberlagerung

In Abbildung 3.14 ist eine Detailansicht der Überlagerung der Strahlen gezeigt. Dabei dient zur Vorjustage der Überlagerung der Reflex des Eintrittsfensters der Quecksilberdampfzelle als Referenzstrahl. Er ist im Gegensatz zum tatsächlichen Fokus in der Dampfzelle frei zugänglich und kann damit vermessen werden. Um den Strahlversatz durch das Eintrittsfenster und, da es im 45° Winkel zum Strahl aufgebaut ist, den vom Fenster verursachten Astigmatismus zu simulieren, wird ein baugleiches Quarzfenster der gleichen Dicke in den Strahlengang eingebracht. Die Fokusüberlagerung in transversaler Richtung kann nun direkt durch das Maximieren der Transmission durch eine Apertur (Durchmesser $20\ \mu\text{m}$) geschehen. Dabei dienen piezogetriebene Feinmechanikspiegelhalter als Justagemittel, die in jedem Strahlengang eingebracht sind. Die so erlangte Überlagerung der Fundamentalstrahlen ist eine gute Startkonfiguration zur Lyman- α Produktion. Zur weiteren Feinjustage dient zum Einen die Detektion der Zweiphotonenresonanz und letztendlich das Lyman- α Signal. Durch das Zweiphotonensignal, welches hinter der Zelle gemessen werden kann, lässt sich bei heißer Dampfzelle direkt der Überlapp des blauen und des UV Lasers weiter optimieren. Final kann dann mit dem Lyman- α Signal der Überlapp des grünen Lasers mit den beiden anderen optimiert werden. Um die mechanische Stabilität zu erhöhen, wurde auf lange Spiegelhalterungen verzichtet und eine Tischerhöhung vor die Dampfzelle errichtet, auf der die Strahlüberlagerung stattfindet. Die Strahlen werden mit Periskopen von der Tischhöhe auf die erhöhte Position gebracht und gleichzeitig die Polarisation auf p-Polarisation gedreht um Reflexionsverluste am Eintrittsfenster zu minimieren.

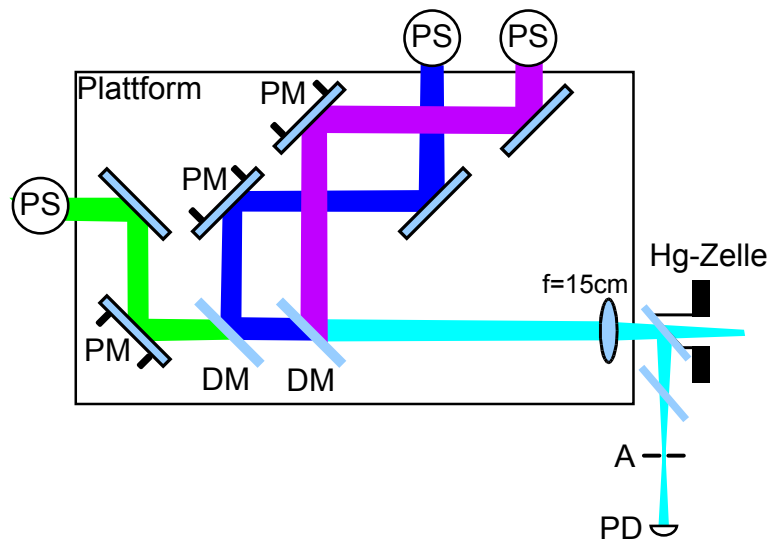


Abbildung 3.14: Detailansicht der Überlagerung der Fundamentalstrahlen. *PS*: Periskop, *PM*: piezogetriebene Spiegel, *DM*: Dichroiten, *A*: Apertur, *PD*: Photodiode.

Neben der transversalen Überlagerung ist es auch wichtig, die longitudinale Überlagerung der Fundamentalstrahlen zu gewährleisten. Durch die verschiedene Dispersion

der Fokussierlinse bei den verschiedenen fundamentalen Wellenlängen liegen die Foki der einzelnen Strahlen zunächst nicht am selben Ort. Bei gleicher Strahldivergenz ist der Fokus des UV Strahls früher als der des blauen und des grünen Strahls. Diese dispersionsbedingte Fehljustage muss durch verschiedene Strahldivergenzen der Fundamentalstrahlen ausgeglichen werden.

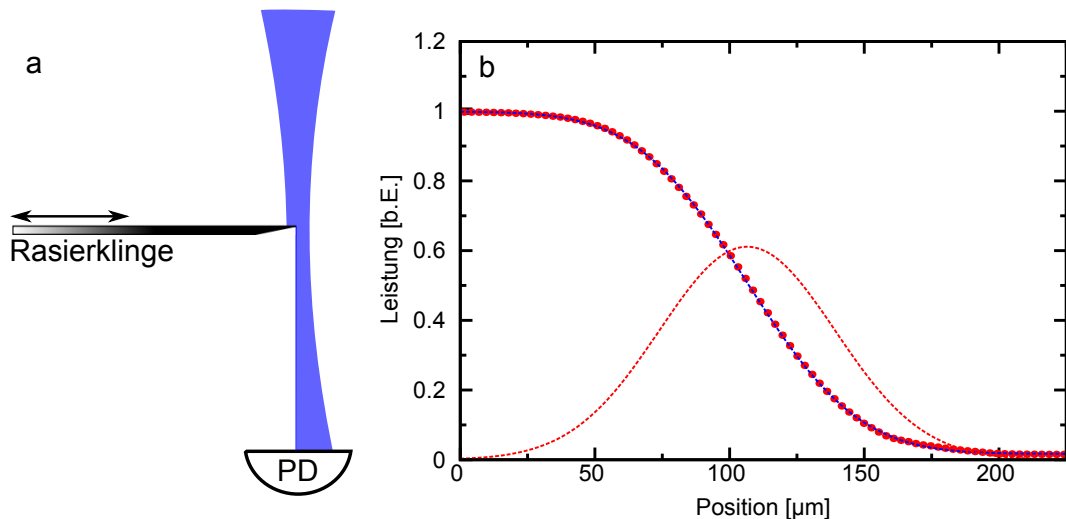


Abbildung 3.15: Knife-edge Strahlvermessung. **a** Eine Photodiode (PD) nimmt die Leistung des Strahls der von einer Rasierklinge teilweise geblockt wird auf. **b** Sie ergeben das integrale Intensitätsspektrum beim Verfahren der Rasierklingenposition senkrecht zur Strahlausbreitungsrichtung und daraus berechnetes Strahlprofil.

Um die Lage des Fokus in Strahlausbreitungsrichtung zu bestimmen wird die Stelle mit dem geringsten Strahldurchmesser mit Hilfe des *knife edge*-Verfahrens bestimmt. Hierbei wird senkrecht zum Strahl eine Rasierklinge in den Strahl eingebracht und die Transmission an der Klinge vorbei durch eine Photodiode detektiert (siehe Abbildung 3.15 a). Es ergibt sich ein integriertes Leistungsspektrum entlang der Verschiebeachse der Rasierklinge. Bei einem perfektem Gaußstrahl ergibt sich eine Transmission in Abhängigkeit zur Position der Rasierklinge wie sie in Abbildung 3.15 b gezeigt ist. Der Verlauf kann durch die Fehlerfunktion wiedergegeben werden. Durch eine Anpassung lässt sich damit der Strahlradius bestimmen. Messen mit einer zur Verschiebeachse um 45° gedrehten Klinge liefert den Strahlradius entlang einer zweiten Achse und es kann auf den Radius entlang der senkrechten Achse geschlossen werden. Durch Messen der Strahlradii entlang der Ausbreitungsrichtung erhält man somit die Strahlpropagation. In Abbildung 3.16 ist der Strahlverlauf der einzelnen Fundamentalstrahlen in der Nähe des Fokus gezeigt nachdem die longitudinale Überlagerung optimiert wurde. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Strahltaile für kleinere Wellenlängen kleiner ist und die Überlagerung für beide Richtungen gut erfüllt ist.

Perfekte Gaußstrahlen breiten sich gemäß

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \frac{z}{z_R}} \quad (3.1)$$

aus [ST91, Sie86]. Wobei $w(z)$ den Strahlradius an der Stelle z , w_0 den Strahlradius im Fokus und z_R die Rayleighlänge bezeichnen. Die Rayleighlänge ist über

$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (3.2)$$

mit der Strahlweite w_0 und der Wellenlänge verbunden. Wie aus den Strahlprofilen der einzelnen Laser ersichtlich ist (Abbildungen 3.5,3.7,3.10), handelt es sich in diesem Fall nicht um reine Gaußstrahlen. Dies lässt sich mit der Beugungsmaßzahl M^2 beschreiben. Im Allgemeinen lässt sich für einen Gaußstrahl folgende Beziehung herleiten:

$$\frac{\pi \Theta w_0}{\lambda} = 1. \quad (3.3)$$

Für eine Überlagerung aus mehreren Gaußstrahlen ist diese Beziehung nicht mehr erfüllt und anstatt der 1 auf der rechten Seite ergibt sich eine Zahl größer 1. Diese Zahl wird mit M^2 bezeichnet. M^2 ist damit auch eine Maßzahl für die Strahlqualität. In Tabelle 3.1 ist eine Auflistung aller gemessener Beugungsmaßzahlen, b-Parameter und Strahlradii der Fundamentalstrahlen zu sehen. Wie aus den Strahlprofilen schon zu erwarten war, ist der grüne Strahl einem Gaußstrahl am ähnlichsten und der UV Strahl hat schon eine deutlich von 1 verschiedene Beugungsmaßzahl.

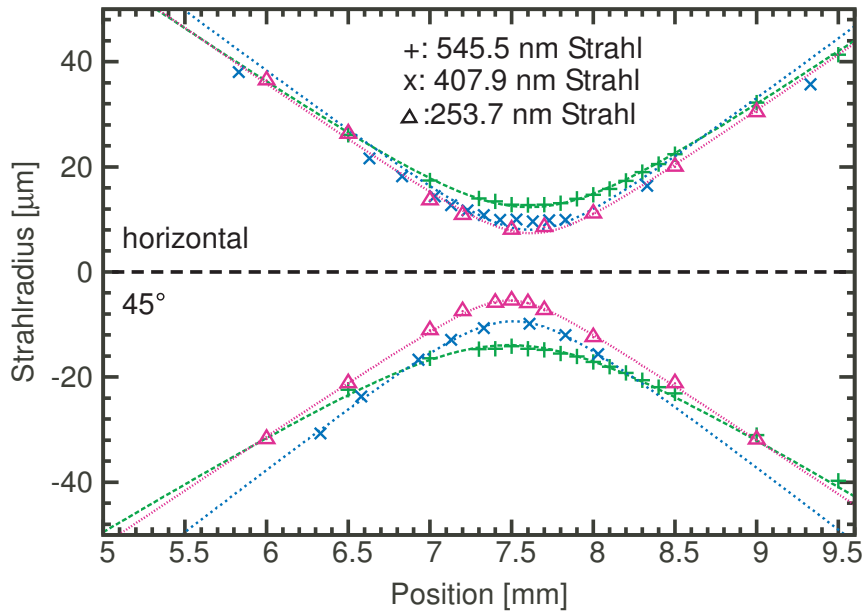


Abbildung 3.16: Strahlpropagation der Fundamentalstrahlen in der Nähe des Fokus. Oben: Entlang der Tischebene gemessen. **Unten:** Entlang einer um 45° verkippten Achse gemessen.

Tabelle 3.1: Beugungsmaßzahlen M^2 , b-Parameter und Strahltaillen der einzelnen Fundamentalstrahlen. *Parallel:* Gemessen entlang der Tischebene; *45°:* Mit einer um 45° gedrehten Rasierklinge gemessen.

Farbe	parallel			45°		
	w_0 [μm]	b [mm]	M^2	w_0 [μm]	b [mm]	M^2
UV	7,3	0,68	2	5,4	0,52	1,4
blau	8,8	0,78	1,5	9,4	0,78	1,7
grün	12,3	1,16	1,5	13,9	1,46	1,5

4. Ergebnisse

In diesem Kapitel sollen die erzielten Ergebnisse präsentiert werden. Der erste Abschnitt wird sich dabei auf die 6^1S-7^1S Zweiphotonenresonanz konzentrieren. Da für ein effizientes Vierwellenmischen das Ausnutzen einer Zweiphotonenresonanz essentiell ist, soll hier ausführlich alle beobachteten Phänomene beschrieben werden. Ein gutes Verständnis ist Grundvoraussetzung für eine Lyman- α Quelle. Im zweiten Abschnitt wird auf das Vierwellenmischen in Quecksilber eingegangen. Im Speziellen wird über das Ausnutzen einer Ein-, Zwei- bzw. Dreiphotonenresonanz gesprochen und welche Einflüsse dies auf den Vierwellenmischprozess hat.

4.1. Zweiphotonenresonanz

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der Zweiphotonenresonanz diskutiert. Zunächst wird die Spektroskopie der Zweiphotonenresonanz mit weiter und naher Verstimmung des UV Lasers zum intermediären Niveau besprochen. Neben den Zweiphotonenresonanzen treten doppelte Einphotonresonanzen auf. Bei nahverstimmttem UV Laser können bei kleinen Rabi-Frequenzen zusätzlich geschwindigkeitsselektive Doppelresonanzen auftreten, die näher untersucht werden. Darüberhinaus hat das intermediäre Niveau noch Einfluss auf die Peak-Lagen der Zweiphotonenresonanz und die Hyperfeinaufspaltung der ungeraden Quecksilberisotope kann zu einer Unterdrückung der Zweiphotonenabsorption führen. Durch hohe Anregungswahrscheinlichkeiten bedingt durch die kleine UV Verstimmung und hohen Rabi-Frequenzen kann sogar ein spontaner Laserübergang zwischen dem 7^1S und 6^1P Niveau, getrieben durch die Zweiphotonenabsorption, auftreten. Dies wurde zuvor mit kontinuierlichen PumpLasern noch nicht beobachtet und soll hier ausführlich beschrieben werden.

4.1.1. Zweiphotonenresonanz mit weitverstimmttem UV Laser

Bei der Beobachtung der Zweiphotonenresonanz lassen sich zwei unterschiedliche Fälle trennen: Der in diesem Unterkapitel beschriebene fernresonante Fall (dabei ist die Verstimmung des UV Lasers zur Einphotonresonanz des 6^1S zum 6^3P Überganges deutlich größer als die Isotopieaufspaltung dieses Überganges) und analog der in Abschnitt 4.1.2 beschriebene nahresonante Fall.

In Abbildung 4.1 ist das typische Bild einer fernresonanten Zweiphotonenresonanz abgebildet. Dabei wird die Frequenz des blauen Lasers bei fester UV Verstimmung

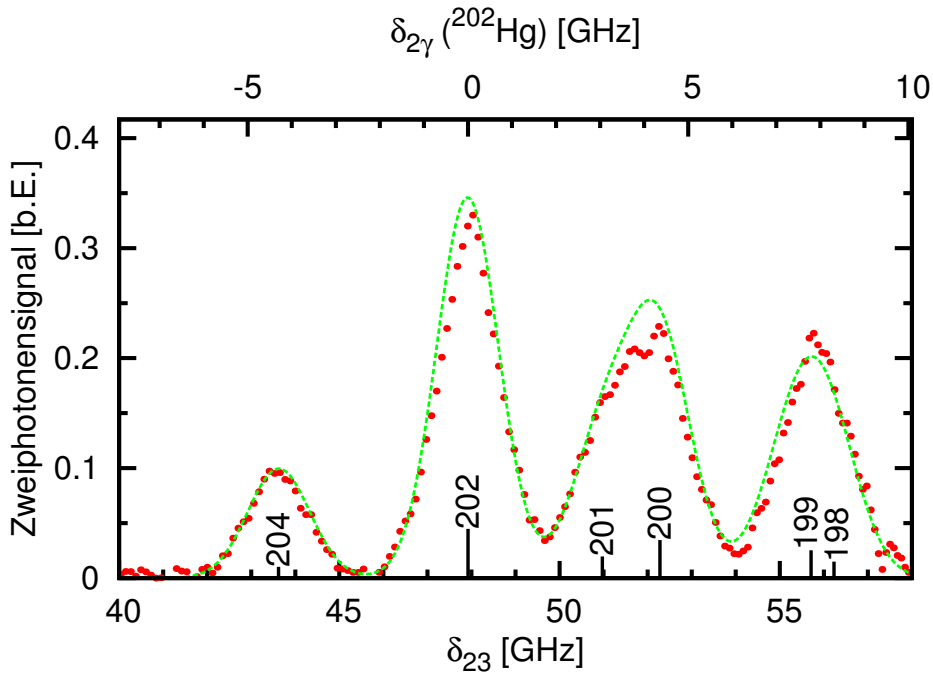


Abbildung 4.1: Zweiphotonenresonanz bei weitverstimtem UV Laser. Aufgetragen ist das Fluoreszenzsignal bei 1014 nm gegenüber der Verstimmung des blauen Lasers δ_{23} zur Zweiphotonenresonanz bei einer UV Verstimmung von -48 GHz. Position und Häufigkeit der verschiedenen Isotope sind mit senkrechten Strichen markiert. Die gestrichelte Linie stellt eine Rechnung mit optischen Blochgleichungen dar.

($\delta_{12} = -48$ GHz) über die Zweiphotonenresonanz verstimmt und das Fluoreszenzsignal bei 1014 nm, aus dem Zerfall des 7^1S Niveaus, mit einer Photodiode detektiert. Die Quecksilberzelle hatte dabei Raumtemperatur und die Leistungen in den fundamentalen Strahlen waren 30 mW im blauen und 90 mW im UV bei einer Strahlgröße in der Zelle von ca. 30 μm . Es ergeben sich mehrere Resonanzen mit unterschiedlicher Höhe gemäß der Isotopenhäufigkeit. Die Position ist gegeben durch die Energieverschiebung der verschiedenen Isotope. Die aufgetragene Verstimmung ist die Verstimmung bezogen auf das Isotop ^{202}Hg , das mit 23% das häufigste Isotop im natürlich vorkommenden Isotopengemisch darstellt. Zu sehen sind Resonanzen der Isotope 204, 202, 201, 200, 199 und 198. Dabei lassen sich die Isotope 201/200 und 199/198 spektral wegen der Verbreiterungsmechanismen nicht trennen. Das Isotop 196 hat eine zu geringe Häufigkeit, als dass es sich in diesem Experiment nachweisen lässt. Somit ergeben sich vier Peaks. Der Verlauf der grün gestrichelten Linie wurde mit den in Abschnitt 2.1.1 vorgestellten optischen Blochgleichungen berechnet. Dabei wurde die Dopplerverbreiterung bei 20°C angenommen, die Stoßverbreiterung trägt bei dieser Temperatur kaum bei und kann vernachlässigt werden. Die Rabi-Frequenzen wurden aus den eingestrahelten Leistungen wie in Abschnitt 2.1.1 berechnet. Der theoretische Verlauf gibt den Verlauf der Kurve gut wieder.

Dieses Bild ergibt sich qualitativ für jede fernresonante Messung. Die Verstimmung des

UV Lasers zur Einphotonresonanz 6^1S-6^3P beeinflusst nur, wie effektiv der Zweiphotonenprozess getrieben werden kann. Die Höhe der Zweiphotonenresonanz ist invers proportional zu der UV Verstimmung zum intermediären Niveau. Dementsprechend ergibt sich bei einer Halbierung der UV Verstimmung eine doppelt so hohe Zweiphotonenresonanz. Die Form der Zweiphotonenresonanz bleibt dabei gleich. Dies ist jedoch nur der Fall, so lange die UV Verstimmung deutlich größer als die Isotopenaufspaltung des intermediären Niveaus ist.

4.1.2. Zweiphotonenresonanz mit nahverstimmten UV Laser

Das zuvor beschriebene Verhalten, dass die UV Verstimmung keinen Einfluss auf die Form der Zweiphotonenresonanz hat, ist nicht mehr der Fall wenn die UV Verstimmung in der Größenordnung der Isotopieaufspaltung ist. In diesem Fall ergeben sich zwei Typen von Resonanzen. Zum Einen wie im vorangehenden Abschnitt die Zweiphotonenresonanzen und zum Anderen die im Weiteren *doppelte Einphotonresonanzen* genannten Resonanzen, die beide im Folgenden näher beschrieben werden.

- **Zweiphotonenresonanzen**

Die Zweiphotonenresonanz bezeichnet die direkte Anregung vom 6^1S Niveau zu dem 7^1S Niveau über gleichzeitiger Absorption bei der Summenfrequenz der beiden eingestrahnten Laser. Das intermediäre 6^3P Niveau wird dabei nicht besetzt und trägt wie im vorangehenden Abschnitt bereits dargestellt nur untergeordnet bei. Damit treten Zweiphotonenresonanzen auf, wenn die Summenfrequenz der Laser gleich der Übergangsfrequenz des Zweiphotonenübergangs ist:

$$\omega_{UV} + \omega_{\text{blau}} = \omega_{6^1S-7^1S} \quad (4.1)$$

oder wenn wir die Verstimmungen der Laser zu den jeweiligen Übergängen betrachten:

$$\delta_{23} = -\delta_{12}. \quad (4.2)$$

Dieser Prozess ist in Abbildung 4.2 (a) dargestellt.

- **doppelte Einphotonresonanz**

Bei dem Prozess der doppelten Einphotonresonanz erfolgt die Anregung schrittweise über das intermediäre Niveau. Dabei wird die Besetzung im intermediären Niveau, welche durch die nahe Verstimmung des UV Lasers zum 6^1S-6^3P Übergang vorhanden ist, über einen resonanten Prozess durch den blauen Laser in das Zweiphotonenniveau 7^1S weiter angeregt. Dazu muss die Frequenz des blauen Lasers gerade die Frequenz des oberen Überganges vom 6^3P zum 7^1S Niveau haben:

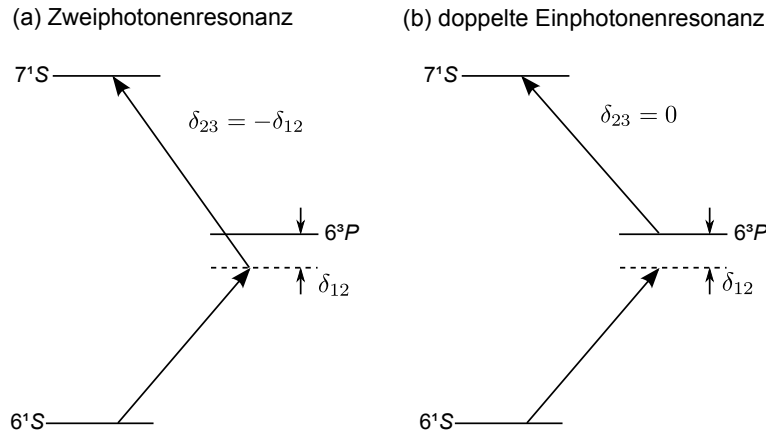


Abbildung 4.2: Zweiphotonenabsorptionsprozesse. (a) Zweiphotonenresonanz: Die Summe der eingestrahlten Frequenzen entspricht der Übergangsfrequenz des 6^1S-7^1S Überganges. (b) Doppelte Einphotonenresonanz: Nichtresonante Anregungen in das intermediäre 6^3P Niveau werden durch eine resonante 6^3P-7^1S Kopplung in das Zweiphotonenniveau angeregt.

$$\omega_{\text{blau}} = \omega_{6^3P-7^1S} \quad (4.3)$$

oder wieder in Verstimmungen der Laser ausgedrückt:

$$\delta_{23} = 0. \quad (4.4)$$

Dieser Prozess ist in Abbildung 4.2 (b) dargestellt.

Demnach ergibt sich für jedes Isotop eine weitere mögliche Resonanz. Neben der Zweiphotonenresonanz bei der die Summenfrequenz gleich der Zweiphotonenübergangsfrequenz ist nun auch die doppelte Einphotonenresonanz bei der die blaue Frequenz gerade gleich der 6^3P-7^1S Übergangsfrequenz ist. Für die ungeraden Isotope 199 und 201 sogar zwei bzw. drei weitere Resonanzen da diese Isotope wegen ihrem von Null verschiedenem Kernspin einer Hyperfeinaufspaltung unterliegen und damit das 6^3P Niveau nicht mehr entartet ist [HW03, MK07].

Darüber hinaus ist die Stärke des Zweiphotonenprozesses und des doppelten Einphotonenprozess von der Verstimmung des UV Lasers zum intermediären Niveau abhängig. Bei UV Verstimmungen in der Größenordnung der Isotopenverschiebung können diese Verstimmungen für verschiedene Isotope stark unterschiedlich sein und somit die Höhen der Resonanzen deutlich verschieden sein.

In Abbildung 4.3 ist eine Zweiphotonenresonanz beim Durchstimmen des blauen Lasers bei kleiner UV Verstimmung dargestellt. Es lässt sich leicht erkennen das sich ein deutlich anderes Bild ergibt als im fernresonanten Fall (vgl. Abb. 4.1). Neben den Peaks, die aus der Zweiphotonenresonanz entstehen, ergeben sich weitere Peaks die sich auf eine doppelte Einphotonenresonanz zurückführen lassen. Die Theoriekurve in

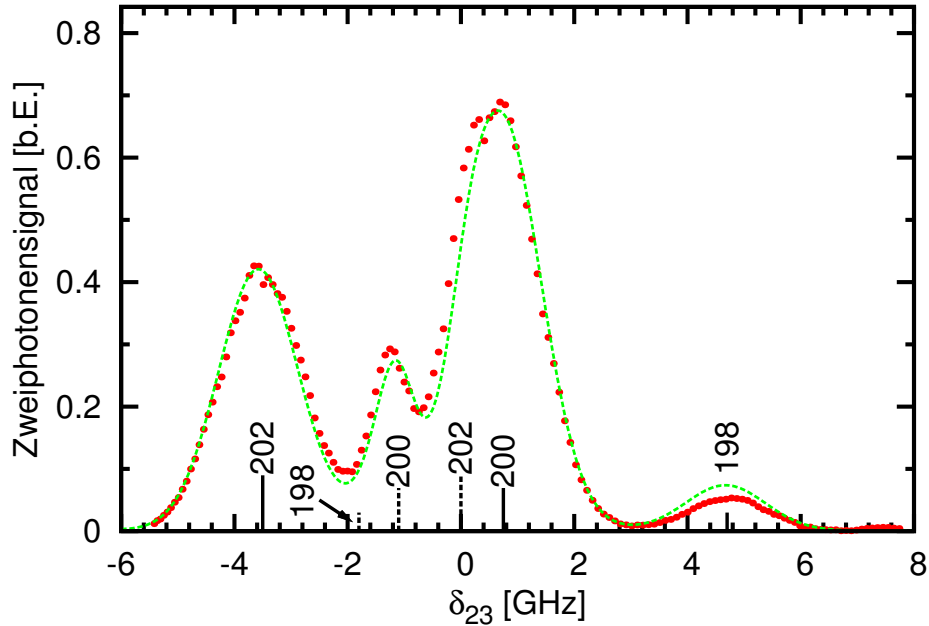


Abbildung 4.3: Zweiphotonenresonanz bei nahverstimten UV Laser. Aufgetragen ist das Zweiphotonensignal bei 1014 nm gegenüber der Verstimmung des blauen Lasers δ_{23} zur Zweiphotonenresonanz bei einer UV Verstimmung δ_{12} von 3,61 GHz. Position und Häufigkeit der verschiedenen Isotope sind mit senkrechten Strichen markiert, dabei sind durchgezogene Striche Positionen der Zweiphotonenresonanz und gestrichelte doppelte Einphotonresonanzen. Die Linie stellt eine Rechnung mit optischen Blochgleichungen dar.

Abbildung 4.3 ist mit Hilfe der vorgestellten Zweiphotonentheorie aus Kapitel 2.1.1 berechnet. Es kann eine gute Übereinstimmung von Theorie und Experiment beobachtet werden. Die nach Gleichungen (4.2) und (4.4) berechneten Peakpositionen sind in Abbildung 4.3 durch senkrechte Striche markiert. Dabei repräsentiert die Länge der Striche die Isotopenhäufigkeit im natürlich vorkommenden Quecksilber. Durchgezogene Linien stehen dabei für Zweiphotonenresonanzen und gestrichelte Linien für doppelte Einphotonresonanzen. Da im Gegensatz zu den Zweiphotonenscans aus dem vorhergehenden Abschnitt bei den nahresonanten Fällen das Spektrum sehr stark von den gewählten Verstimmungen und auch den Rabifrequenzen abhängt, werden diese Parameter zur Anpassung der Daten variabel gehalten. Zur Frequenzmessung der Fundamentalstrahlen steht zwar ein Wellenlängenmessgerät zur Verfügung, jedoch ist dessen absolute Genauigkeit mit (minimal) 60 MHz angegeben. Zusätzlich wird eine regelmäßige Kalibrierung auf einen Frequenzstandard empfohlen um diese absolute Genauigkeit zu erreichen. Für die hier präsentierten Messungen wurde keine extra Kalibrierung durchgeführt. Die Frequenzmessung erfolgt in unserem Aufbau stets im infraroten Frequenzbereich, das heißt jeder Fundamentalstrahl wird vor den Verdopplungen vermessen. Daraus ergibt sich für den UV Strahl eine vierfach (zwei Verdopplungen) und für den blauen Strahl eine zweifach schlechtere absolute Genauigkeit. Um einen Eindruck von der Frequenzsensitivität des Zweiphotonenspektrums im nahresonanten

Fall zu bekommen, ist in Abbildung 4.4 ein Zweiphotonenscan und Theoriekurven mit leicht veränderten UV Verstimmungen dargestellt. Zum Einen erkennt man, dass sich die Peaklagen der Zweiphotonenresonanzen gemäß der Veränderung der Verstimmung verschieben. Die Lage der doppelten Einphotonresonanz und Zweiphotonenresonanz ist für den Fall der besten Anpassung an die Daten eingezeichnet. Zum Anderen erkennt man, dass sich die relativen Peakhöhen bereits bei kleinen Veränderungen der Verstimmungen stark ändern und auch Peaks erscheinen können, die vorher nicht zu erkennen waren. Dies lässt sich bei der zur optimalen Verstimmung um -300 MHz verschobenen Linien erkennen. Hier verändert sich die Form des rechten Peaks: Anstelle des Peaks erscheint eine verbreiterte Schulter.

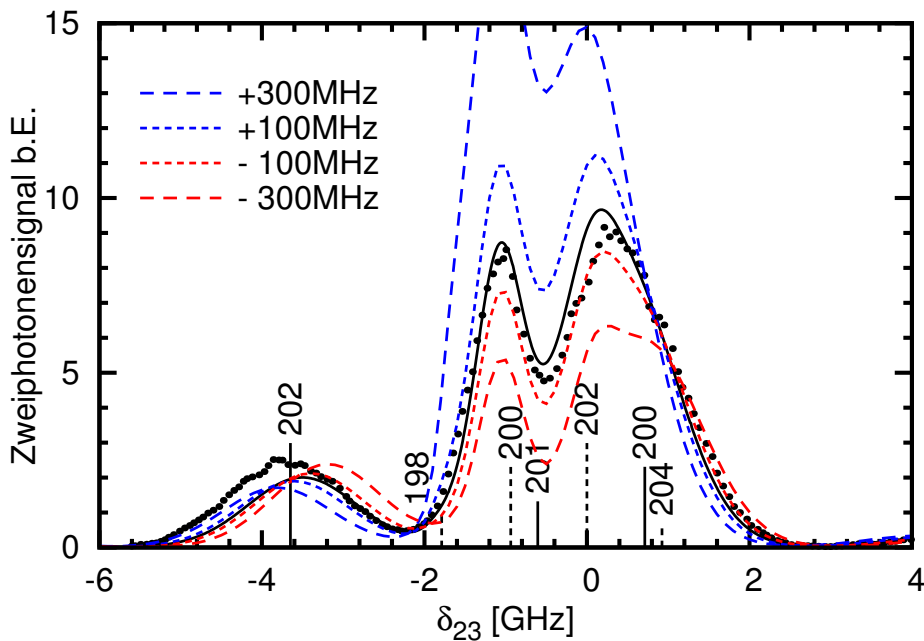


Abbildung 4.4: Einfluss kleiner Abweichungen in der UV Verstimmung. Spektrum der Zweiphotonenresonanz bei einer UV Verstimmung von 3,65 GHz. Die Anpassung an die Daten ergibt die durchgezogene Theoriekurve. Leichte Abweichungen in der UV Verstimmung ergeben die roten Kurven (bei rotverstimmt) bzw. die blauen Kurven (bei blauverstimmt). Positionen der Zweiphotonenresonanzen sind mit durchgezogenen senkrechten Strichen markiert, doppelte Einphotonresonanzen mit gestrichelten Linien.

4.1.3. Geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz

Ein Typ von Zweiphotonenresonanzen, der nur bei sehr geringen Rabifrequenzen zu beobachten ist, ist die geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz [Bey08, BKS⁺09]. Durch die Dopplerverschiebung kann ein Übergang eines bewegten Atoms resonant gegenüber einem, zum ruhenden Atom, verstimmt Laser sein. Für diese eine Geschwindigkeitsklasse kann sowohl die Zweiphotonenresonanzbedingung (4.2) als auch die doppelte Einphotonresonanzbedingung (4.4) gleichzeitig erfüllt sein. Betrachten wir die Situati-

on eines Dreiniveausystem und zwei Laserfelder mit Verstimmungen δ_{12} und δ_{23} . Durch die Dopplerverschiebung ergibt sich, dass die Geschwindigkeitsklasse mit

$$v = k_{12}\delta_{12} \quad (4.5)$$

zu dem UV Laser resonant ist. Ebenso lässt sich für den oberen Übergang die Beziehung

$$v = k_{23}\delta_{23} \quad (4.6)$$

herleiten. Bei einer gewählten Verstimmung des unteren Lasers δ_{12} ergibt sich dann bei einer Verstimmung von

$$\delta_{23} = \frac{k_{12}}{k_{23}}\delta_{12}, \quad (4.7)$$

dass die gleiche Geschwindigkeitsklasse beide Laser resonant wahrnimmt und somit die doppelte Einphotonresonanz mit der Zweiphotonenresonanz identisch ist. Dies ist ein Effekt, der durch die thermische Geschwindigkeitsverteilung begünstigt wird, jedoch nur eine spezifische Geschwindigkeitsklasse anspricht und somit nicht Dopplerverbreitert ist. In Abbildung 4.5 ist eine solche dopplerfreie Resonanz im Spektrum der Zweiphotonenresonanz zu erkennen. Es erscheint ein deutlich schmalerer Peak im Scanbereich bei ca. -7,4 GHz. Dieser Peak kann dem Isotop ^{201}Hg mit $F = 3/2$ zugeordnet werden. Er befindet sich damit in der Flanke der zum gleichen Isotop gehörenden doppelten Einphotonresonanz, was zu erwarten ist, da nur in der Nähe der Einphotonresonanz ein nicht verschwindender Anteil an Atomen durch Dopplerverschiebung den Laser resonant erfährt. Darüber hinaus sind mehrere weitere Peaks im Scanbereich zu sehen, die von Zweiphotonenresonanzen bzw. doppelten Einphotonresonanzen verschiedener Quecksilberisotopen herrühren. Um die Rabifrequenzen der beiden eingestrahlten Laser möglichst klein wählen zu können, aber trotzdem noch ein Fluoreszenzsignal detektieren zu können, wurden die Strahlen unfokussiert (Strahldurchmesser 2 mm) durch die Quecksilberdampfzelle geschickt. Dabei ergeben sich bei deutlich geringeren Intensitäten eine größere Menge an Quecksilberatomen, die angeregt werden können. Die Leistungen der Fundamentalstrahlen wurde zu 30 mW im UV und 3 mW im blauen vermessen.

Die geschwindigkeitsselektiven Doppelresonanzen treten nur bei kleinen Rabifrequenzen auf. Dies lässt sich gut verstehen, wenn man sich die Anregungswahrscheinlichkeiten gegenüber der Atomgeschwindigkeit für verschiedene Verstimmungen betrachtet. Betrachten wir den Fall von kleinen Rabifrequenzen von wenigen MHz. In Abbildung 4.6 sind die Anregungswahrscheinlichkeiten in das Zweiphotonenniveau gegenüber der Atomgeschwindigkeiten bei einer UV Verstimmung von $\delta_{12} = 1,65$ GHz für die Fälle $\delta_{23} = -1,65$ GHz (Zweiphotonenresonanz), $\delta_{23} = 0$ GHz (Einphotonresonanz) und den Fall $\delta_{23} = 1,03$ GHz (geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz) gezeigt. Schauen wir uns den Fall mit $\delta_{23} = -1,65$ GHz (grüne Linie in Abbildung 4.6) an. Hier sind

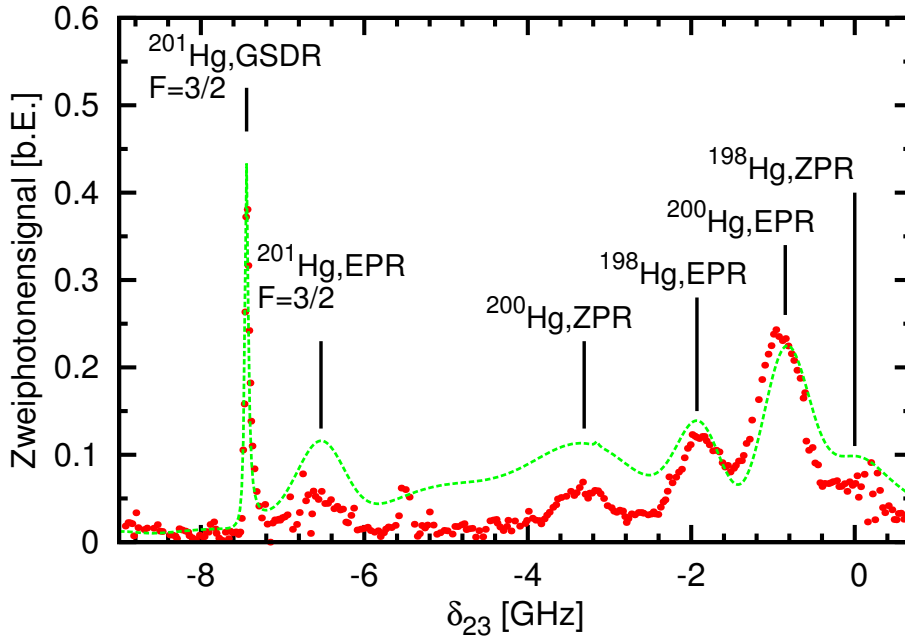


Abbildung 4.5: Geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz. Zweiphotonenresonanz bei einer UV Verstimmung von 7,9 GHz. Es ergibt sich ein dopplerfreier Peak bei -7,4 GHz. *EPR*: doppelte Einphotonresonanz, *ZPR*: Zweiphotonenresonanz, *GSDR*: geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz.

drei Peaks zu erkennen, die mit (a)-(c) markiert sind. Peak (a) und (c) sind sukzessive Anregungen [GC77]. Dabei ist der Peak (a), der bei ca. -400 m/s liegt, gerade bei $v = \delta_{12}/k_{12}$. Bei dieser Geschwindigkeit ist durch Dopplerverschiebung der UV Laser resonant zu dem unteren Übergang. Der Peak (b) bei ca. 700 m/s entspricht gerade dem resonanten Fall des blauen Lasers mit dem oberen Übergang und liegt demnach bei $v = \delta_{23}/k_{23}$. Der Peak (c) gehört zu der Zweiphotonenresonanz und erscheint bei der Bedingung $v = (\delta_{12} + \delta_{23})/(k_{12} + k_{23})$. Aus dieser Betrachtung ergibt sich, dass die Lage des Peaks (a) nur von der Verstimmung des UV Lasers abhängt und sich die beiden anderen Peaks durch die Verstimmung δ_{23} verschieben. Um von dieser Darstellung auf die Besetzung im oberen Niveau bei den eingestellten Verstimmungen zu kommen, muss diese Anregungswahrscheinlichkeit mit der Geschwindigkeitsverteilung der Atome im Grundniveau (Gaußverteilung in Abbildung 4.6) multipliziert und über alle Geschwindigkeiten integriert werden. Da die Gaußverteilung ein starkes Maximum bei 0 m/s aufweist, ergibt sich stets eine hohe Besetzung im oberen Niveau, wenn eine der Resonanzen Atome im Zentrum der Geschwindigkeitsverteilung anspricht, das heißt, wenn einer der Peaks durch Verändern von δ_{23} in Abbildung 4.6 bei 0 m/s auftaucht. So dominiert bei $\delta_{23} = -1,65$ GHz die Zweiphotonenresonanz, da dann der Peak der Zweiphotonenanregung bei 0 m/s liegt. Entsprechend gilt für $\delta_{23} = 0$ GHz die doppelte Einphotonresonanz. Der Fall $\delta_{23} = 1,03$ GHz ist etwas spezieller, denn dann Überlagern sich alle drei Peaks und es entsteht ein sehr hoher Peak bei -400 MHz. Ob-

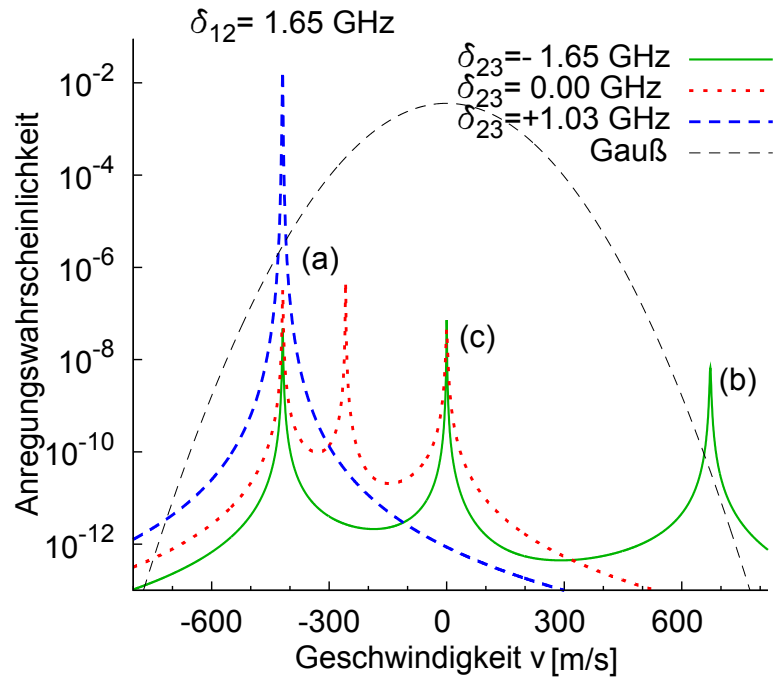


Abbildung 4.6: Geschwindigkeitsabhängige Anregungswahrscheinlichkeit bei niedrigen Rabifrequenzen. Anregungswahrscheinlichkeit ins obere Niveau gegenüber der Geschwindigkeit der Quecksilberatome bei niedrigen Rabifrequenzen ($\alpha = 10$ MHz, $\beta = 5$ MHz) und einer UV Verstimmung δ_{12} von 1,65 GHz. Es sind die Fälle für eine blaue Verstimmung δ_{23} von -1,65 GHz, 0 GHz und 1,03 GHz gezeigt. Die Peaks bei einer blauen Verstimmung von -1,65 GHz mit (a), (b), (c) markiert, ergeben sich durch doppelte Einphotonresonanz ((a) und (b)) und durch Zweiphotonenresonanz (c).

wohl dieser nicht in der Mitte der Gaußkurve liegt, ergibt sich, da dieser Peak mehrere Größenordnung höher ist als die einzelnen Peaks in den Fällen $\delta_{23} = -1,65$ GHz und $\delta_{23} = 0$ GHz, eine Resonanz. Schauen wir uns nun den Fall bei höheren Rabifrequenzen an. In Abbildung 4.7 ist die gleiche Situation mit deutlich höheren Rabifrequenzen (einige hundert MHz) dargestellt. Man erkennt, dass die Peaks (a) und (b) durch die starke Kopplung nun sättigungsverbreitert in diesem Graph sind. Der Peak für die Zweiphotonenresonanz ist weiterhin, da die Zweiphotonenkopplung deutlich geringer ist, nicht über die natürliche Linienbreite hinaus verbreitert. Der Peak durch die Überlagerung im Falle von $\delta_{23} = 1,03$ GHz fällt nun wesentlich weniger stark aus relativ zu dem Zweiphotonenpeak ($\delta_{23} = -1,65$ GHz). Er ist nur noch in der gleichen Größenordnung wie der Peak für die Zweiphotonenresonanz bei deutlich geringerer Atomdichte in diesem Geschwindigkeitsbereich und lässt sich so bei höheren Rabifrequenzen nicht mehr beobachten.

Es sollte abschließend erwähnt werden, dass diese geschwindigkeitsselektive Doppleresonanz stark verwandt ist mit dem Phänomen der Dunkelresonanzen [Orr79, SSB89, SSB⁺92]. Dunkelresonanzen werden in Λ -Systemen beobachtet, wenn zwei Niveaus (meist durch Hyperfeinaufspaltung) an ein oberes Niveau gekoppelt werden und die Besetzung im oberen Niveau betrachtet wird. Beim Einstrahlen nur einer Kopplung

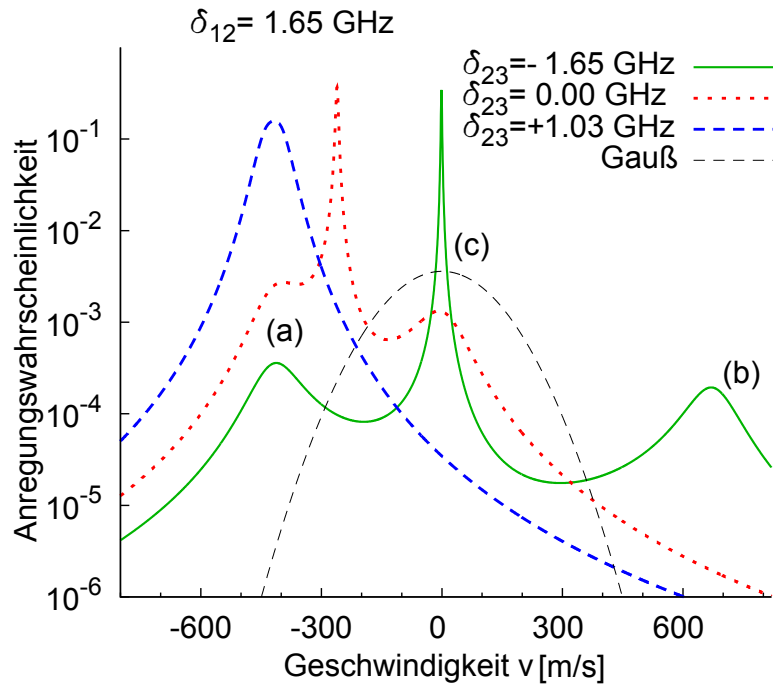


Abbildung 4.7: Geschwindigkeitsabhängige Anregungswahrscheinlichkeit bei hohen Rabifrequenzen. Anregungswahrscheinlichkeit ins obere Niveau gegenüber der Geschwindigkeit der Quecksilberatome bei hohen Rabifrequenzen ($\alpha = 800$ MHz, $\beta = 400$ MHz). Ansonsten wie Abbildung 4.6.

wird Besetzung im oberen Niveau beobachtet. Durch die zweite Kopplung erhält man eine Dunkelresonanz und es wird keine Besetzung im oberen Niveau beobachtet. Für die Dunkelresonanz ergibt sich die gleiche Bedingung wie für die geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz in Gleichung (4.7). Ein grundlegender Unterschied besteht in den k -Vektoren der Kopplungslaser: Im Falle der Dunkelresonanz mit einer Hyperfeinstruktur ist in guter Näherung $k_{12} = k_{23}$ und somit erfolgt keine Verschiebung der Resonanz bei unterschiedlichen Verstimmungen sondern die Dunkelresonanz tritt stets mittig in der Einphotonresonanz auf. Darüberhinaus ist das obere Niveau im Λ -System mit dem mittleren Niveau in einem Leitersystem gleichzusetzen. Bei der Berechnung der Besetzung im mittleren Niveau des Leitersystems ergibt sich ebenfalls eine Dunkelresonanz ebenso wie sich für den Fall des Λ -Systems eine Erhöhung der Besetzung in dem, dann über Zweiphotonenresonanz, gekoppelten unteren Niveau ergibt.

4.1.4. Verschiebung von Resonanzen durch ein intermediäres Niveau

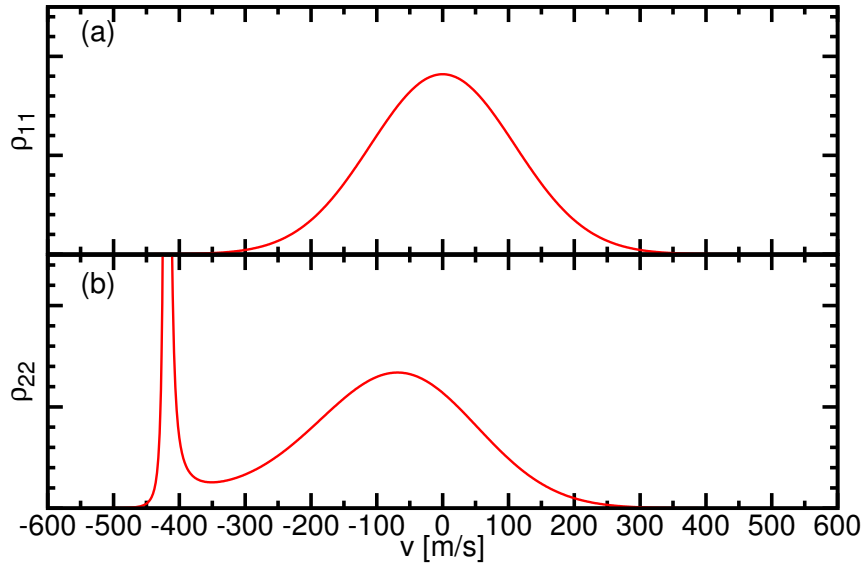


Abbildung 4.8: Geschwindigkeitsverteilung im Zweiniveausystem. (a) unteres Niveau: Die Geschwindigkeitsverteilung des unteren Niveaus wird Gaußverteilt angenommen mit einer Breite von 310 m/s (entspricht einer Quecksilbertemperatur von 20°C). (b) mittleres Niveau. Durch Einstrahlen eines Lasers mit einer Verstimmung von $\delta_{12} = 1.65$ GHz ergibt sich eine nichtsymmetrische Geschwindigkeitsverteilung im mittleren Niveau. Bei der Geschwindigkeitsklasse von ca. -400 m/s sehen die Atome den verstimmtten Laser durch Dopplerverschiebung resonant. Der Peak, der für die doppelte Einphotonresonanz verantwortlich ist, ist leicht gegenüber der 0 verschoben.

Durch das intermediäre Niveau kann es bei einer kleinen Verstimmung des UV Lasers zu einem weiteren Effekt kommen, der die Zweiphotonenresonanz verschiebt. Dieser soll hier erläutert werden. Die Positionen der einzelnen Peaks im Spektrum der Zweiphotonenresonanz, wie sie in Gleichung (4.2) und (4.4) angegeben sind, sind nur Näherungsweise, bei Vernachlässigung der thermischen Geschwindigkeitsverteilung der Quecksilberatome, richtig. Vor allem in den nahresonanten Fällen der Einphotonresonanz kommt es zu einer Verschiebung der beobachteten Peaks gegenüber den berechneten Positionen. Durch das einseitig verstimmtte Einstrahlen eines Koppellasers zu dem intermediären Niveau wird eine Asymmetrie eingeführt. Diese bevorzugt beim Anregen Geschwindigkeitsklassen der thermischen Wolke, deren Verstimmung durch die Dopplerverschiebung teilweise kompensiert wird. Nehmen wir als Beispiel Quecksilberdampf mit einer Temperatur von 20°C. Dies entspricht einer mittleren Geschwindigkeit der Quecksilberatome von 155 m/s. In Laserstrahlrichtung entspricht die Geschwindigkeitsverteilung einer eindimensionalen Boltzmannverteilung. Dies ist in Abbildung 4.8 (a) gezeigt. Dort ist die Geschwindigkeitsverteilung der Atome im Grundniveau ohne Einstrahlung eines Laserfeldes zu sehen. Betrachten wir als nächstes die Geschwindig-

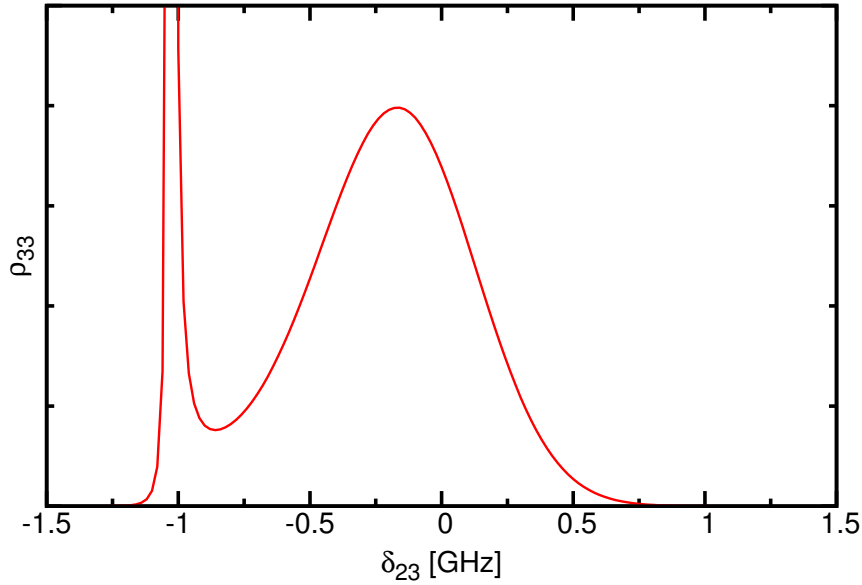


Abbildung 4.9: Zweiphotonenresonanz mit leicht verstimtem UV Laser. Erechnete Besetzung im Zweiphotonenniveau bei $\delta_{12} = 1.65$ GHz. Der schmale Peak bei $\delta_{23} = -1$ GHz ist die geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz. Die doppelte Einphotonresonanz (breiter Peak) ist leicht gegenüber $\delta_{23} = 0$ verschoben.

keitsverteilung, die sich nach einer Einphotonenabsorption im intermediären Niveau ergibt. Strahlen wir zum Beispiel einen Laser mit einer Verstimmung von 1,65 GHz ein, erhält man eine geschwindigkeitsabhängige Besetzung im intermediären Niveau, wie sie in Abbildung 4.8 (b) gezeigt ist. Man erhält ein schmales Maximum bei ca -400 m/s, welches genau der Geschwindigkeitsklasse entspricht die mit dem Laser resonant ist. Darüber hinaus erkennt man, dass das breite Maximum gegenüber 0 m/s leicht verschoben ist. Geschwindigkeitsklassen, die den Laser näher verstimmt erfahren werden mit einer höheren Wahrscheinlichkeit angeregt, wodurch sich die Asymmetrie ausbildet. Schauen wir uns nun die Anregung in das obere Niveau beim Frequenzscannen des zweiten Lasers bei weiterhin konstanter unterer Laserstimmung von 1,65 GHz an. Wenn man nur doppelte Einphotonresonante Anregungen betrachtet, erhält man ein Bild wie in 4.9 gezeigt. Dabei entspricht der schmale Peak bei ca. -1 GHz dem Peak der geschwindigkeitsselektiven Doppelresonanz aus dem vorhergehenden Kapitel und liegt, wie es nach Gleichung (4.5) zu erwarten ist, bei $\delta_{23} = k_{23}/k_{12} \times \delta_{12}$. Die breitere Verteilung in der Nähe von 0 GHz entspricht der doppelten Einphotonresonanz. Es ist zu erkennen, dass dieser Peak leicht von dem zu erwarteten Wert aus Gleichung (4.4) bei $\delta_{23} = 0$ abweicht.

Mit dieser Herangehensweise lässt sich nun allgemein die Verschiebung der einzelnen Peaks gegenüber der eingestellten Verstimmung des unteren Lasers angeben. In Abbildung 4.10 ist die Peaklage der Einphotonresonanzen (δ_{23}) gegenüber der gewählten Verstimmung zum intermediären Niveau δ_{12} gezeigt. Dabei bezeichnet GSDR die geschwindigkeitsselektive Doppelanregung. Im Bild erscheint sie als Gerade mit der Stei-

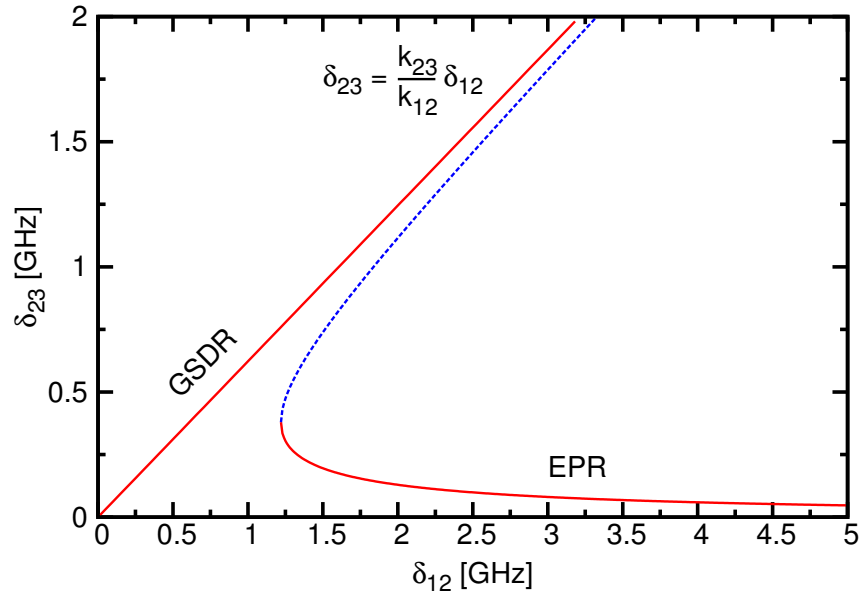


Abbildung 4.10: Peakverschiebung durch ein intermediäres Niveau. Peakpositionen der (geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz) GSDR und der (Einphotonresonanz) EPR gegenüber der Verstimmung zu einem intermediären Niveau. Die durchgezogene rote Linie stellen Maxima dar, die gestrichelte blaue Linie das darzwischenliegende Minimum. Bei ca. 1,25 GHz lassen sich die beiden Peaks nicht mehr trennen.

gung k_{23}/k_{12} . Die Einphotonresonanz EPR sollte nach Gleichung (4.4) bei $\delta_{23} = 0$ GHz auftreten, aber bei kleiner gewählten Verstimmungen δ_{12} verschiebt sich diese Resonanz. Die blaue gestrichelte Linie in Abbildung 4.10 gibt die Position, des zwischen den beiden Resonanzen liegenden, Minimums an. Bei δ_{12} können die beiden Resonanzen nicht mehr getrennt werden. Eine maximale Verschiebung von ca. 300 MHz tritt bei einer Verstimmung $\delta_{12} = 1,25$ GHz zum intermediären Niveau auf. Es lässt sich abschließend festhalten, dass durch ein intermediäres Niveau und der thermischen Geschwindigkeitsverteilung der Atome eine Verschiebung bei den doppelten Einphotonresonanzen auftritt. Diese Verschiebung hängt von der Wahl der Verstimmung zum intermediären Niveau ab und kann bei kleinen Verstimmungen durchaus die Größenordnung von der Verstimmung erreichen.

In diesem Kapitel wurden zur Veranschaulichung und zur Vereinfachung nur die Prozesse der doppelten Einphotonanregung betrachtet. Es sollte erwähnt werden, dass solch eine Verschiebung auch bei der Zweiphotonenresonanz auftritt. In Kapitel 4.1.1 wurde erwähnt, dass auch die Stärke der Zweiphotonenanregung durch die Verstimmung zum intermediären Niveau beeinflusst wird. Mit der gleichen Argumentation wie in dem Falle der Einphotonanregungen ergibt sich so eine Asymmetrie, die Geschwindigkeitsklassen bevorzugt, bei denen durch Dopplerverschiebung eine kleinere Verstimmung auftritt.

4.1.5. Einfluss der Hyperfeinstruktur auf die Zweiphotonenresonanz

Für die ungeraden Isotope ^{199}Hg und ^{201}Hg ist die Vereinfachung eines Dreiniveausystems gerade bei kleinen UV Verstimmungen nicht mehr gerechtfertigt. Da ungerade Isotope einen Kernspin tragen und damit das 6^3P Niveau eine Hyperfeinaufspaltung aufweist, ergeben sich für das ^{199}Hg Isotop ein Vier- und für das ^{201}Hg Isotop sogar ein Fünfniveausystem durch die zwei- bzw. dreifache Aufspaltung des intermediären Niveaus. Dies ist vor allem ein entscheidender Unterschied im Falle der nahverstimmtten Zweiphotonenresonanz. Bereits 1974 wurde die Unterdrückung der Zweiphotonenresonanz durch ein aufgespaltetes Zwischenniveau beobachtet [BL74, GYW⁺00]. Durch die unterschiedlichen Anregungspfade kann es zu destruktiver Interferenz bei der Anregung kommen und damit zu einer Unterdrückung der Zweiphotonenresonanz. Dies lässt sich auch im Quecksilbersystem beobachten, auch wenn nicht so ausgeprägt. In Abbildung 4.11 ist die Zweiphotonenresonanz bei einer UV Verstimmung von 3,61 GHz gezeigt. Die Zweiphotonenrechnung unter Berücksichtigung aller Isotope ist als durchgezogene Linie zu sehen. Es fällt auf, dass nur eine unzureichende Anpassung an das Spektrum möglich ist. Gerade bei $\delta_{23} = -1$ GHz und 4,5 GHz sind starke Abweichungen bei der besten Anpassung zu erkennen. Erst bei Vernachlässigung der ungeraden Isotope ergibt sich die gestrichelte Theoriekurve, die eine deutlich bessere Übereinstimmung liefert. Im eingebetteten Graph aus Abbildung 4.11 sind die Beiträge von geraden und ungeraden Isotopen in gestrichelt grün (gerade Isotope) und durchgezogen blau (ungerade Isotope) dargestellt. Gerade bei -1 GHz und 4,5 GHz, müssten die Zweiphotonenresonanzen der ungeraden Isotope liegen. Doppelte Einphotonresonanzen der ungeraden Isotope sind im Scanbereich nicht zu erkennen, nur die Zweiphotonenresonanzen bei $-0,5$ GHz (201) und 5 GHz (199) befinden sich im Scanbereich. Bei der Datenanpassung wurden beide Zweiphotonenresonanzen vernachlässigt und es ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit den Daten.

4.1.6. Kontinuierlicher Laserprozess durch Zweiphotonenanregung

Geht man über zu einer Anregung mit hohen Rabi-Frequenzen, also hohen fundamentalen Laserleistungen tritt noch ein anderer Effekt in der Zweiphotonenresonanz auf. In Abbildung 4.12 ist nochmals ein Energietermschema von Quecksilber gezeigt, diesmal mit den Zerfallsraten des 7^1S und 6^1P Niveaus. Das 7^1S Niveau hat eine Lebensdauer von 32,1 ns [BL89] und zerfällt mit einem Verzweungsverhältnis von 87% in das 6^1P Niveau. Das 6^1P Niveau hat wiederum eine Lebensdauer von 1,5 ns [ML00]. Beim Vergleich der Lebensdauern des 7^1S Niveaus mit der Lebensdauer des 6^1P Niveaus fällt auf, dass diese deutlich größer ist. Dadurch wird bei hohen Leistungen über die Zweiphotonenanregung eine Besetzungsinversion zwischen dem 7^1S und dem 6^1P induziert. Es sollte beachtet werden, dass die angegebenen Lebensdauern Vakuumlebensdauern

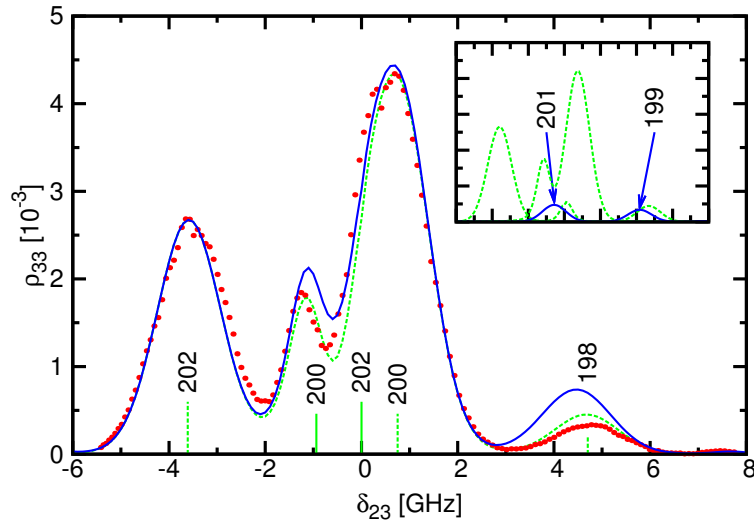


Abbildung 4.11: Einfluss der Hyperfeinstruktur auf die Zweiphotonenresonanz. Zweiphotonenscan bei einer UV Verstimmung von 3.61 GHz. Die blaue, durchgezogene Linie stellt die Rechnung mit allen Isotopen dar. Die grüne, gestrichelte Linie ist ohne ungerade Isotope berechnet. Die Positionen der doppelten Einphotonresonanzen (durchgehende Linien) und Zweiphotonenresonanzen (gestrichelte Linien) sind angegeben. Eingebetteter Graph: Blaue durchgezogene Linien sind die Zweiphotonenresonanzen der ungeraden Isotope, die gestrichelte Linie die Zweiphotonenresonanz der geraden Isotope.

sind und nur für einzelne isolierte Atome gelten. Der Einfluss von *radiation trapping*, also die Reabsorption der emittierten Strahlung in einem dichten Gas kann die effektive Lebensdauer des 6^1P Niveaus erhöhen [ML00]. Eine kurze Abschätzung dazu soll am Ende dieses Abschnittes folgen. Durch die Besetzungsinversion kann ein Laserprozess initiiert werden. Hierfür muss die Verstärkung im gepumpten Bereich des Mediums groß genug sein, so dass die Schwellenbedingung zum Laserprozess überschritten wird [KSKW10].

In Abbildung 4.13 ist gerade die Schwelle des Laserprozesses zu sehen. Es ist die IR Leistung gegenüber der UV Leistung aufgetragen. Für dieses Bild wurde bei konstanter blauen Leistung von 45 mW und einer Quecksilberdampftherperatur von 120°C (Dampfdichte $1.8 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$) die UV Leistung im Bereich von 0 bis 300 mW bei einer Verstimmung von $\delta_{12} = 25 \text{ GHz}$ variiert. Es ist deutlich ein nichtlineares Verhalten in der IR Leistung zu erkennen. In dem Bereich zwischen 5 mW und 20 mW UV Leistung steigt die IR Leistung stärker an als bei kleineren bzw. größeren UV Leistungen. Dies ist gerade der Übergang zwischen Fluoreszenz und Laserprozess. In dem UV Leistungsbereich bis 5 mW wird die IR Leistung in Form von inkohärentem Fluoreszenzlicht in den gesamten Raumwinkel emittiert. Bei hohen UV Leistungen erhält man zwei IR Strahlen entlang der Achse der Pumpstrahlen in und entgegen der Richtung der Pumpstrahlen. Durch die verschiedenen Isotopenhäufigkeiten ergeben sich für die einzelnen Isotope unterschiedliche Laserschwellen. Das Isotop ^{202}Hg ist mit 29,9% das im natürlichen Quecksilber am häufigsten vorkommende Isotop [ZSB89]. Durch die höhere

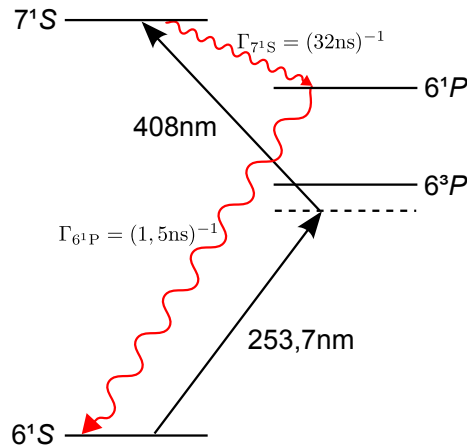


Abbildung 4.12: Dreineivausystem in Quecksilber. Das von dem 253,7 nm und 408 nm gepumpte 7^1S Zweiphotonenniveau zerfällt mit einer Rate von $1/32$ ns in das 6^1P Niveau welches eine deutliche größere Zerfallsrate von $1/1,5$ ns aufweist. Besetzungsinversion kann einen Laserprozess auf dem 7^1S - 6^1P Übergang initiieren.

Dichte der im oberen Laserniveau befindlichen Atome bei gleicher Pumpleistung ergibt sich somit die niedrigste Laserschwelle [ABJ00]. Dies lässt sich beobachten, wenn die IR Leistung bei verschiedenen Pumpleistungen einmal auf Zweiphotonenresonanz des ^{202}Hg und eines anderen Isotops (hier ^{204}Hg) verglichen wird. In Abbildung 4.13 ist die Leistung im Infraroten in den beiden Fällen gegenüber gestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich die Laserschwelle der beiden Isotope unterscheiden und das ^{202}Hg Isotop bereits bei geringeren Pumpleistungen die Laserschwelle überschreitet.

Dies lässt sich auch gut zeigen, wenn die IR Leistung während einem Zweiphotonenscan aufgezeichnet wird. In Abbildung 4.13 (a)-(c) ist je ein Zweiphotonenscan des blauen Lasers über das Zweiphotonenniveau bei unterschiedlichen Leistungen in den fundamentalen Lasern gezeigt. Bei niedrigen Pumpleistungen ist deutlich das, in Kapitel 4.1.1 besprochene, fernresonante Fluoreszenzspektrum zu erkennen (siehe Abbildung 4.13 (a)). Hier beobachtet man genau das berechnete Spektrum der Zweiphotonenresonanz. Anders sieht es aus, wenn die Leistung der Pumpstrahlen erhöht wird. Bei den Scans in den Graphen (b) und (c) wurde bei höheren Leistungen die gleiche Zweiphotonenresonanz aufgenommen. Es ergibt sich ein deutlich anderes Verhalten. In (b) ist nur noch ein deutlich schmalerer Peak bei dem Isotop ^{202}Hg zu erkennen und auch die Leistung im Infraroten bei 1014 nm ist überproportional gestiegen im Vergleich zu (a), so dass Peaks von anderen Isotopen nicht mehr im Spektrum auftauchen. In (c) sind wieder vier Peaks zu sehen, die aber gegenüber (a) schmaler sind und ein leicht anderes Verhältnis in den relativen Höhen aufweisen. Wir haben hier gerade den Übergang von Fluoreszenz (a) über die Schwelle des Laserprozesses für ein Isotop (b) bis hin zum Lasen aller Isotope (c) vollzogen.

Um einen Laserprozess in einem Medium ohne Resonator, der die Laseremissionsrichtung definiert, zu erzeugen, wird eine ausgezeichnete Emissionsrichtung benötigt. Es gibt in der Literatur viele Beispiele für solche Laserprozesse ohne Resonator. So fin-

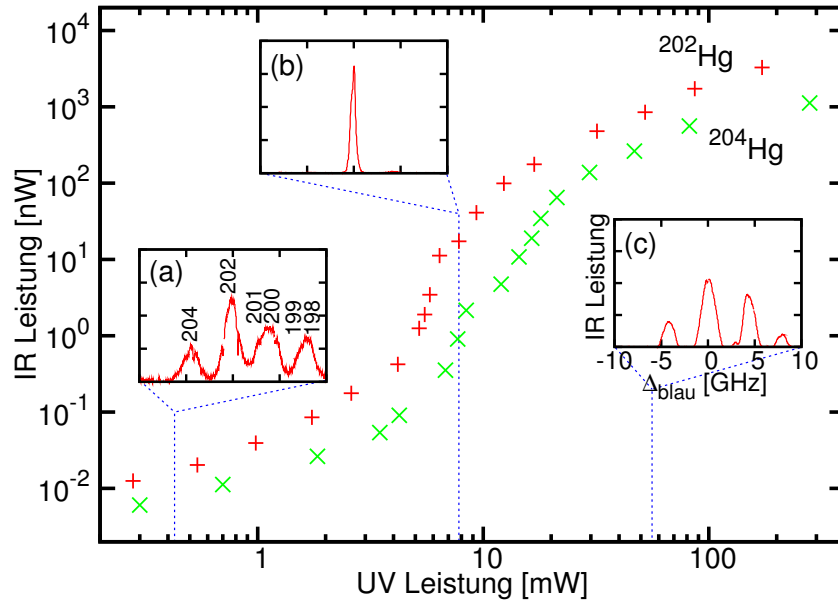


Abbildung 4.13: Zweiphotonengepumpter Laser in Quecksilber. IR Leistung emittiert in Vorwärtsrichtung gegenüber der Pumpleistung im UV für die Isotope ^{202}Hg und ^{204}Hg . Die inliegenden Graphen zeigen Zeiphotonen scans des blauen Lasers bei (a) Fluoreszenz, (b) der Laserschwelle und (c) im Laserbetrieb. Die blaue Leistung ist konstant 45 mW.

det man solche unter anderem in der Kosmologie bei interstellaren Masern [RM81], in superradianten XUV Quellen [KAB⁺10] oder auch bei freien Elektronen Lasern (FEL) [DEM⁺77]. Auch wurde bereits auf dem 7^3S-6^3S Übergang in Quecksilber ein Laserübergang beobachtet, ebenfalls durch zweifache Anregung [OMR⁺94] mit gepulsten Pumplasern. Solch ein resonant zweiphotonenangeregter Laserübergang wurde erstmals 1989 in Wasserstoff auf dem $3S-2P$ Übergang beobachtet [Gol89] und kann als Plasmediagnostikum eingesetzt werden, wie es von [ABJ00, AB01] vorgeschlagen wird. In der Literatur wird dieser Prozess mit TALISE für *two-photon absorption laser induced stimulated emission* bezeichnet. Bisher konnte er aber nur bei gepulsten Pumplasern beobachtet werden, was mit der hohen erforderlichen Anregungsrate in das Zweiphotonenniveau verbunden ist. Durch die klein gewählte UV Laserstimmung konnte hier erreicht werden die Zweiphotonenanregung auch mit kontinuierlichen Lasern in den Bereich zu steigern, dass der TALISE Prozess einsetzt.

Neben den freien Elektronen Lasern, bei denen die Emissionsrichtung durch den Lorentzboost gegeben ist, wird bei den anderen Systemen, in denen Lasertätigkeit ohne Resonator auftritt, die Emissionsrichtung durch die Geometrie des Pumpvolumens bestimmt. In unserem Fall, wo beide Pumpstrahlen überlagert, stark fokussiert in den Quecksilberdampf geführt werden, ergibt sich ein Pumpvolumen, wie es in Abbildung 4.14 dargestellt ist. Bei perfekter Überlagerung des UV und des blauen Strahls und mit dem im Experiment bestimmten Werten für die Größe der Strahlteile beider Strahlen und der Divergenz sieht die Überlagerung der Strahlen wie die äußeren gepunkteten (UV) und gestrichelten (blau) Linien aus. Nehmen wir an, dass die Besetzung im

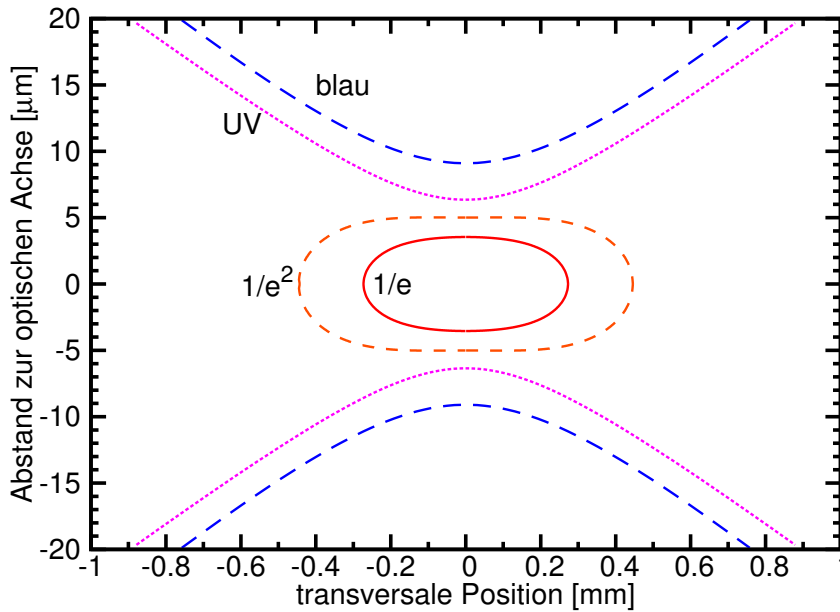


Abbildung 4.14: Pumpvolumen. Strahlpropagation des UV (rosa Punkte) und blauen Strahls (blaue Striche) in der Nähe des Fokus und daraus resultierendes Pumpvolumen. Der innere durchgezogene rote Bereich stellt dabei den Bereich dar, in dem die Zweiphotonenanregung zum Wert im Zentrum der Überlagerung auf $1/e$ abgefallen ist und der gestrichelte etwas größere Bereich den Bereich, in dem die Anregung noch größer ist als $1/e^2$ zur Anregung im Zentrum. Man beachte die beiden unterschiedlichen Skalen.

oberen Niveau proportional zur Intensität jedes Pumpstrahls ist, ergibt sich das im Zentrum von Abbildung 4.14 dargestellte Pumpvolumen. Dabei ist der kleinere rote mit durchgezogenen Linien markierte Bereich, der Bereich in dem die Besetzung noch nicht unterhalb von $1/e$ des Maximalwertes abgefallen ist und der etwas größere Bereich markiert die $1/e^2$ Größe des Pumpvolumens. Es lässt sich gut erkennen, dass das Pumpvolumen annähernd stabförmig mit einem Längen zu Durchmesser Verhältnis von ca. $0,9 \text{ mm}/10 \mu\text{m}=90$ und damit die Grundvoraussetzung einer ausgezeichneten Pumpgeometrie vorliegt.

Wie in Abschnitt 4.1.2 vorgestellt gibt es zwei unterschiedliche Möglichkeiten Population in das 7^1S Zweiphotonenniveau zu pumpen. Zum Einen, eine resonante Zweiphotonenanregung, wobei die Summenfrequenz der Pumpstrahlen gleich der Übergangsfrequenz ist. Dies wurde für Abbildung 4.13 eingestellt. Zum Anderen kann aber auch über die doppelte Einphotonenanregung mit einem resonanten Übergang aus dem intermediären Niveau in das Zweiphotonenniveau angeregt werden. Die beiden Prozesse weisen ein unterschiedliches Verhalten gegen Änderungen des Puffergasdruckes auf. In Abbildung 4.15 sind diese beiden Methoden gegenübergestellt und die IR Leistung gegenüber dem Puffergasdruck bestimmt. Bei einer UV Verstimmung von -25 GHz und einer Quecksilbertemperatur von 120°C und Leistungen von 200 mW UV und 245 mW blau ergibt sich bei niedrigen He Puffergasdrücken eine höhere Pumprate für die zweiphotonenresonante Anregung. Daraus resultiert eine höhere IR Leistung bei kleinen

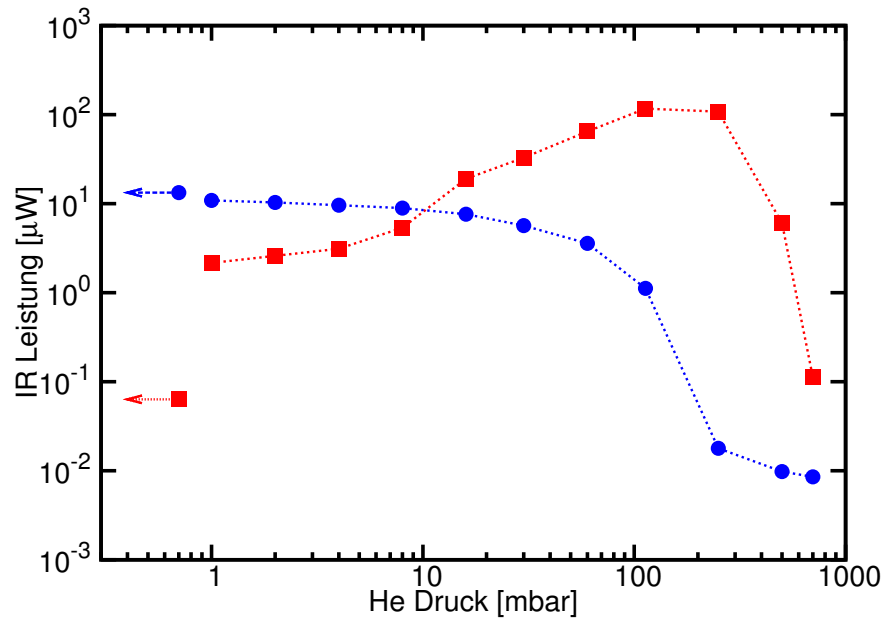


Abbildung 4.15: IR Leistung in Abhängigkeit des He Puffergasdrucks. Blaue Kreise: Summenfrequenz von UV und blauen Laser auf Zweiphotonenresonanz. Rote Boxen: Doppelte Einphotonresonanz mit dem blauen Laser resonant mit dem 6^3P-7^1S Übergang. Punkte mit Pfeil wurden bei kleinstem möglichem Puffergasdruck gemessen ($< 10^{-3}$ mbar).

Drücken.

Der Puffergasdruck wirkt sich auf die zwei verschiedenen Anregungsmöglichkeiten unterschiedlich aus. Durch die zusätzliche Druckverbreiterung durch die Fremdatome im Pumpvolumen folgt eine höhere Anregung in das intermediäre Niveau durch den nahverstimmt UV Laser. Diese begünstigt die doppelte Einphotonresonanz, da in diesem Fall die höhere Besetzung im intermediären Niveau direkt eine höhere Besetzung im oberen Laserniveau erzielt wird. Daraus resultiert ein Anstieg bei der doppelten Einphotonenanregung bei Steigerung des Druckes bis zu wenigen hundert mbar. Darüberhinaus ist die Einphotonenabsorption bei der UV Wellenlänge so groß, dass nicht mehr über die volle Länge des Pumpvolumens effizient gepumpt werden kann, wodurch sich effektiv die Länge des Pumpvolumens ändert und keine ausgezeichnete Achse für Laseremission mehr vorhanden ist. Die IR Leistung bricht demnach bei hohen Heliumdrücken zusammen.

Für die Zweiphotonenanregung ergibt sich gerade durch die Absorption bei der UV Wellenlänge eine Verminderung der Zweiphotonenresonanz. Die Besetzung im intermediären Niveau kann durch den verstimmt blauen Laser nicht weiter angeregt werden und die absorbierte Leistung im UV steht nicht mehr zur Zweiphotonenanregung zur Verfügung. Demnach nimmt die IR Leistung im zweiphotonenresonanten Schema bei Erhöhung des Puffergasdruckes ab. Durch die Optimierung des Puffergasdruckes auf 100 bis 250 mbar konnte mit der doppelten Einphotonenanregung eine maximale IR Leistung von $115 \mu\text{W}$ bei Pumpleistungen von 200 mW (UV) und 245 mW (blau) erzielt werden.

Wie bereits erwähnt, sollte die effektive Lebensdauer des 6^1P Niveaus durch Reabsorption (*radiation trapping*) erhöht sein. Menningen und Lawler [ML00] geben für die 185 nm Linie (6^1S-6^1P) eine analytische Formel für das Verhältnis der effektiven Lebensdauer zur Vakuumlebensdauer $\tau_{\text{eff}}/\tau_{\text{vac}} = (A_t\tau_\nu)$ an:

$$A_t\tau_\nu = \frac{\sqrt{(A_t\tau_\nu)_{\text{rcm}}^2 + (A_t\tau_\nu)_{\text{dm}}^2}}{1 + 4P_{\text{rc}} \left[\frac{2,7(A_t\tau_\nu)_{\text{dm}}}{(A_t\tau_\nu)_{\text{rcm}}} + \frac{(A_t\tau_\nu)_{\text{rcm}}}{2,7(A_t\tau_\nu)_{\text{dm}}} + \sqrt{\frac{1900}{H_r}} \right]^{-2}}. \quad (4.8)$$

Sie folgen dabei einem Monte-Carlo Ansatz von Lawler *et al* [LC98]. Hier ist $H_r = h/\lambda$ eine dimensionslose Größe, welche die Übergangswellenlänge λ und den Radius der Hg Zelle h beinhaltet. Die Wahrscheinlichkeit P_{rc} , wenigstens einen dephasierenden Hg-Hg Stoß während der Vakuumlebensdauer zu erhalten, ist gegeben durch:

$$P_{\text{rc}} = \left(1 + \frac{65,71g_l}{N_0\lambda^3g_u} \right)^{-1}. \quad (4.9)$$

Wobei $g_u = 3$, $g_l = 1$ die obere und untere Entartung bezeichnet und N_0 die Quecksilberdichte. Gleichung (4.8) ist eine Zusammensetzung aus der Verlängerung der Lebensdauer für eine rein dopplerverbreiterte Linie $(A_t\tau_\nu)_{\text{dm}}$ und einer rein lorentzverbreiterten Linie $(A_t\tau_\nu)_{\text{rcm}}$. Die einzelnen Beiträge sind gegeben durch [vT76, Hol51]:

$$(A_t\tau_\nu)_{\text{dm}} = \frac{1,575}{1,575 + Z_m \sqrt{\ln(1 + Z_m/\sqrt{\pi})}} \quad (4.10)$$

$$(A_t\tau_\nu)_{\text{rcm}} = \frac{0,196}{\sqrt{H_r}} P_{\text{rc}}^{0,23} \quad (4.11)$$

mit

$$Z_m = Z \left[0,168 + 0,832 \frac{Z^{0,4}}{130 + Z^{0,4}} \right], \quad (4.12)$$

$$Z = \frac{N_0\lambda^4 H_r}{4\pi c\tau_{\text{vac}} \sqrt{2k_B T/Mc^2}} \frac{g_u}{2g_l}. \quad (4.13)$$

dabei ist T die Temperatur des Quecksilberdampfes und M die Atommasse. Dieser Ansatz lieferte gute Übereinstimmungen für Quecksilberzellengrößen zwischen 3 cm und 0,1 cm mit maximalen Abweichungen von 13%. Für den bei uns vorliegenden Fall nehmen wir für den Radius den Radius des Pumpvolumens an. Man erhält dann bei einer Temperatur von 120°C eine effektive Lebensdauer von 16,7 ns. Trotz dieser effektiv verlängerten Lebensdauer durch Reabsorption ist eine Inversion möglich. Das Hinzufügen von Puffergas erhöht die Stoßrate innerhalb des Pumpvolumens. Dies resultiert in eine Stoßverbreiterung des 6^1P Niveaus. Nimmt man eine ähnliche Stoßverbreiterung an, wie sie sich für das 7^1S Niveau einstellt (siehe dazu Kapitel 4.2.3), erhält man eine Abhängigkeit der effektiven Lebensdauer des 6^1P Niveaus vom Puffergasdruck, wie sie in Abbildung 4.16 zu sehen ist. Durch Stöße mit dem Puffergas wird das untere

Laserniveau schneller entvölkert und die effektive Lebensdauer verringert sich bis sie für große Puffergasdrücke sogar kleiner werden kann als die Vakuumlebensdauer. Für die Berechnung wurde eine Umskalierung der Dichte N_0 und des Pumpvolumenradius $h' = hN_0/N'_0$, wie in [LCL00] vorgenommen.

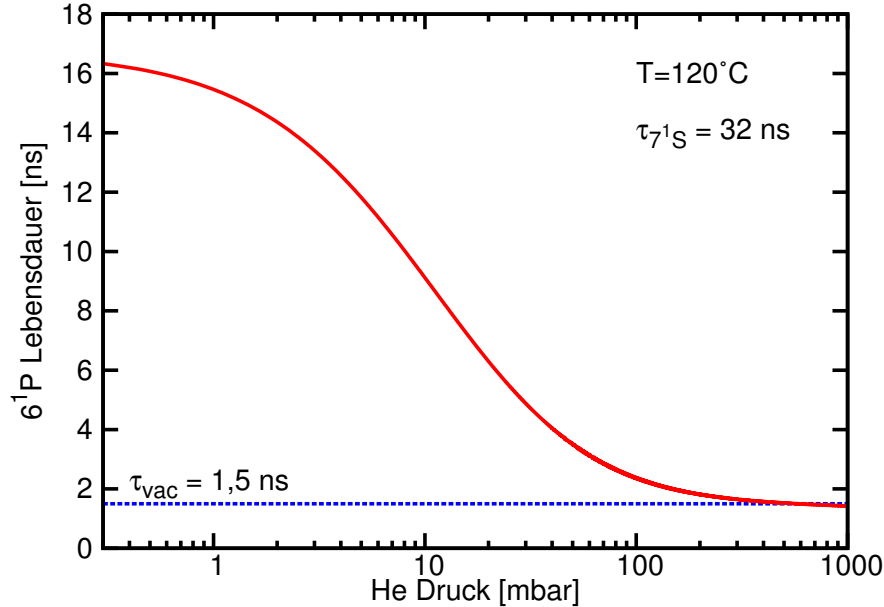


Abbildung 4.16: Effektive Lebensdauer des 6^1P Niveaus gegenüber Puffergasdruck. Effektive Lebensdauer des unteren Laserniveaus bei Veränderung des Heliumdruckes in der Quecksilberzelle bei einer Quecksilbertemperatur von 120°C . Die Vakuumlebensdauer ist mit $1,5\text{ ns}$ angegeben.

Um die Kohärenz des emittierten Lichtes, und damit eindeutig kohärente Emission nachzuweisen, wurde ein Michelson-Interferometer gemäß Abbildung 4.17 (a) in den, aus der Vakuumapparatur herausreflektierten, Strahl eingebaut. Für die Kohärenzlänge ergibt sich bedingt durch die Zerfallsraten [ST91]:

$$l_k = c(\Gamma_{7^1S} + \Gamma_{6^1P})^{-1} = 42\text{ cm}. \quad (4.14)$$

Im linken Teil der Abbildung 4.17 (b) ist das Strahlprofil des emittierten Strahls ohne Interferometer gezeigt. Zu erkennen ist eine nahezu gaußförmige Intensitätsverteilung mit einem dunklen Ring mit Radius $0,7\text{ mm}$, der sich durch die Transmission durch die Apparatur ergibt. Im rechten Teil der Abbildung 4.17(b) ist das Strahlprofil an einem Ausgang des Interferometers gezeigt. Man erhält ein deutliches voll durchmoduliertes Interferenzbild, was auf Kohärenz hinweist. Dabei wurde eine Armlänge des Interferometers von 20 cm gewählt. Damit konnte eindeutig die Kohärenz der emittierten Strahlung gezeigt werden.

Abschließend kann zusammengefasst werden, dass der 6^1S-7^1S Zweiphotonenprozess in Quecksilber gut verstanden ist. Mit der in Kapitel 2.1 vorgestellten Zweiphotonentheorie, basierend auf optische Blochgleichungen für ein Dreiniveausystem, konnten viele Ergebnisse, die in diesem Kapitel vorgestellt wurden erklärt werden. Angefangen

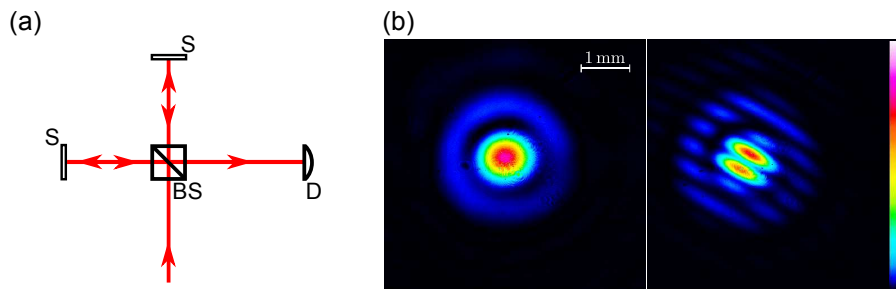


Abbildung 4.17: Kohärenztest der IR Strahlung. (a) Schema eines Michelsoninterferometers. *S*: Spiegel, *BS*: Strahlteiler, *D*: Detektor. (b) Strahlprofil der emittierten IR Strahlung hinter der Hg Zelle ohne (links) und mit (rechts) Interferometer.

von der Zweiphotonenresonanz bei fern- und nahverstimmtten UV Laser, die geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz, bis hin zu Verschiebungen der Resonanzen durch das intermediäre Niveau konnten mit Hilfe der optischen Blochgleichungen gut wiedergegeben werden. Für die Unterdrückung der Zweiphotonenresonanz bei hyperfeinaufgespalteten Zwischenniveau müssten die optischen Blochgleichungen auf ein Vier- bzw. Fünfniveausystem erweitert werden, würden aber diesen Effekt ebenfalls wiedergeben. Einzig der TALISE Effekt gibt dieser Formalismus nicht wieder. Er kann aber durch Ratengleichungen wie es in [AB01] getan wurde, beschrieben werden.

4.2. Vierwellenmischen in Quecksilber

In dem nun folgendem Kapitel werden die Ergebnisse zum Vierwellenmischen präsentiert. Es wird zunächst die Phasenanpassung des Vierwellenmischprozesses demonstriert und der Einfluss der Zweiphotonenresonanz gezeigt. Durch die Möglichkeit die UV Wellenlänge beliebig um die 6^1S-6^3P Resonanz zu verstimmen, konnte erstmals der Einfluss einer zusätzlichen Einphotonresonanz auf den Vierwellenmischprozess untersucht werden. Durch eine nahe Einphotonresonanz resultiert vorallem eine deutlich verringerte Phasenanpassungstemperatur was die Möglichkeit eröffnet, das bis dahin notwendige Puffergas zu verringern oder sogar ganz auf Puffergas zu verzichten. Die Theorie in Kapitel 2.2 geht von perfekten Gaußstrahlen aus, was im Experiment, vorallem beim UV Strahl, nicht der Fall ist. Es wird gesondert darauf eingegangen, welchen Effekt das Strahlprofil eines Fundamentallasers auf den Vierwellenmischprozess hat. Im letzten Teil dieses Abschnittes wird auf die Möglichkeit, neben der Einphotonresonanz einer Fundamentalwellenlänge ebenfalls auch eine Einphotonresonanz der Summenfrequenz einzustellen, eingegangen. Damit kann ein deutlicher Leistungsgewinn der Ausgangsleistung bei der Vierwellenmischfrequenz erzielt werden, auch wenn nicht mehr bei der Lyman- α Wellenlänge. Dies ist ein gutes Beispiel für die Stärke des hier vorgestellten Lasersystems.

4.2.1. Phasen Anpassung

Wie im Kapitel 2.2.2 dargestellt wurde, unterliegt ein Vierwellenmischprozess einem Phasen Anpassungskriterium. Bei fokussierten Fundamentalstrahlen erhält man die Bedingung $b\Delta k = -4$. Es wurde bereits festgestellt, dass dies nur möglich ist, wenn Δk negativ ist. Da Δk proportional zur Dichte des Mediums ist, lässt sich dann die Phasen Anpassung mittels der Quecksilberdichte einstellen. Experimentell wird dies mit der Temperatur der Quecksilberdampfzelle realisiert. In Abbildung 4.18 ist die Leistung bei Lyman- α gegenüber der Temperatur der Quecksilberdampfzelle aufgetragen. Man erhält ein deutliches Maximum bei 182°C bei einer UV Verstimmung von 400 GHz. Bei [SKM⁺09] und [Mar09] lag die berechnete optimale Temperatur um 40°C neben dem experimentellen Maximum. Durch eine genauere Vermessung der konfokalen Parameter mit Hilfe der *knife-edge* Methode (siehe Kapitel 3.2.1) konnte diese Diskrepanz bei unserem Experiment auf wenige Grad reduziert werden. Ebenso wurde die Temperatur der Quecksilberdampfzelle sehr langsam (0,008°C/s) von hohen Temperaturen zu niedrigen Temperaturen durchgeföhren um eine Thermalisierung des Quecksilberdampfes zu ermöglichen. In Abbildung 4.18 ist der theoretische Verlauf der Phasen Anpassungskurve eingezeichnet, der mit Hilfe der einzelnen fundamentalen Verstimmungen und den b -Parametern bestimmt wurde. Durch den Integralgleichungsformalismus, wie er in [Mar09, Sch09] genauer beschrieben wird, lässt sich der Phasen Anpassungsverlauf bei verschiedenen b -Parametern bestimmen. Um die Theoriekurve über die Datenpunkte zu legen, war lediglich eine Verschiebung um 6°C zu kleineren Werten nötig. Mit den gemessenen b -Parametern ergibt sich so eine nur um wenige Grad falsche Phasen Anpassungstemperatur. Dies lässt sich mit dem schlechten Wärmekontakt von Quecksilber auf Edelstahl begründen und wurde bei anderen Experimenten ebenfalls festgestellt [SA86]. Die Quecksilberdampfzelletemperatur weicht also um 6°C von der Temperatur an der Außenwand der Quecksilberzelle ab.

4.2.2. Vierwellenmischen mit einer Zweiphotonenresonanz

Für eine kontinuierliche Laserquelle durch Vierwellenmischen ist eine Zweiphotonenresonanz elementar wichtig. Aus Gleichung (2.37) ist ersichtlich, dass jede ausgenutzte Resonanz die nichtlineare Suszeptibilität stark erhöht. Die Zweiphotonenresonanz hat dabei im Vergleich zu Einphotonenresonanzen zwei deutliche Vorteile. Zum Einen würde eine Einphotonenresonanz mit einer erhöhten Absorption einhergehen, was bei einer Zweiphotonenresonanz deutlich unterdrückt ist.

Zum Anderen hat die blaue Wellenlänge nur einen sehr geringen Einfluss auf die Phasen Anpassung, da diese von dem UV Laser durch die kleine Verstimmung zu einer Einphotonenresonanz dominiert wird. Beide Effekte erleichtern das Ausnutzen einer Zweiphotonenresonanz. In Abbildung 4.19 (a) ist die Leistung bei Lyman- α beim Durchfahren der blauen Frequenz über die Zweiphotonenresonanz gezeigt. Es resultiert eine deutliche Leistungssteigerung, wenn die Summenfrequenz aus dem UV Laser und dem blauen

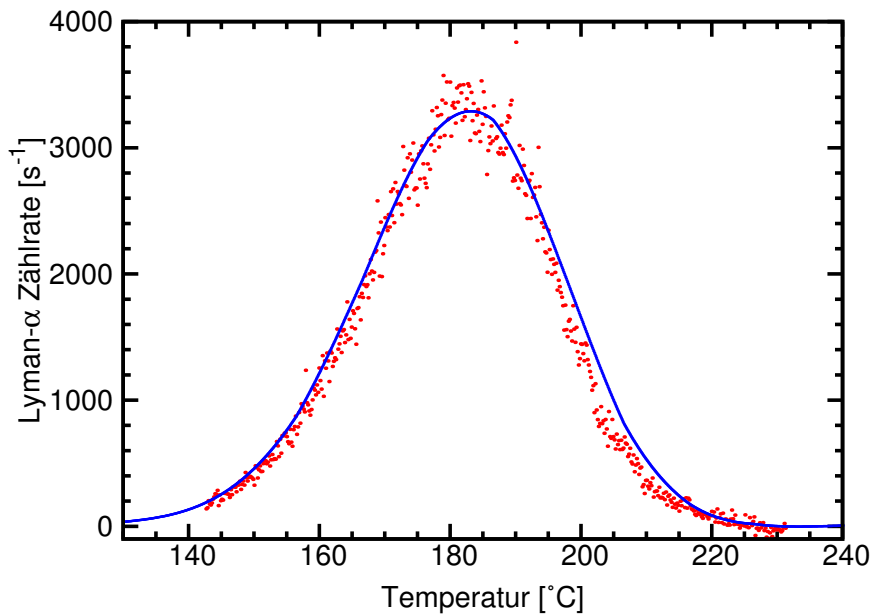


Abbildung 4.18: Phasenanpassung des Vierwellenmischprozesses. Lyman- α Zählrate aufgetragen gegenüber der Temperatur der Quecksilberdampfzelle. Die theoretische Kurve (blau) wurde um 6°C zu kleineren Werten verschoben um eine Anpassung an die Daten zu erreichen.

Laser die Zweiphotonenresonanzbedingung eines Isotops von Quecksilber erfüllt. Vergleicht man die Zweiphotonenresonanz im Lyman- α -Signal mit dem Fluoreszenzsignal (Abbildung 4.19 (b)) des Zweiphotonniveaus (also mit der Zweiphotonenanregung), fällt auf, dass die äußeren Peaks im Lyman- α Signal leicht nach außen verschoben sind. Dies resultiert aus der Kohärenz des Vierwellenmischprozess und der Inkohärenz der Zweiphotonenfluoreszenz. Wie im Abschnitt 2.1 erklärt wurde, erhält man die Fluoreszenz der Zweiphotonenresonanz als Summe der Fluoreszenzen der einzelnen Isotope. Es lässt sich also das Fluoreszenzsignal für jedes Isotop einzeln berechnen und anschließend aufsummieren. Bei einem kohärenten Prozess, wie im Falle des Vierwellenmischens, muss die Betrachtung verfeinert werden. Durch die eingestrahlt Lichtfelder werden Dipolschwingungen im Medium erzeugt. Aus dieser nichtlinearen Polarisierung resultiert das Feld bei der Summenfrequenz. Wichtig um nun den Fall eines Isotopengemisches zu betrachten ist es, die Phase dieser Dipolschwingungen zu beachten. Dabei ist die Verstimmung zu der Zweiphotonenresonanz ausschlaggebend. Gerade beim Vergleich des Vierwellenmischens mit rotverstimmt bzw. blauverstimmt Laserfrequenzen zu dieser Resonanz erhält man einen Phasenversatz von π . Wird demnach eine Laserfrequenz gewählt, die zwischen der Resonanzbedingung zweier Isotope liegt, so schwingen die Polarisierungen der Isotope außer Phase und destruktive Interferenz schwächt die resultierende Leistung ab. Bei rot- bzw. blauverstimmt Laserfrequenzen zu allen Isotopen schwingt die Polarisierung in Phase und die einzelnen Beiträge zur gesamten Polarisierung interferieren konstruktiv. Durch die Begünstigung der äußeren Flanken der beiden äußeren Peaks verschieben sich die Maxima.

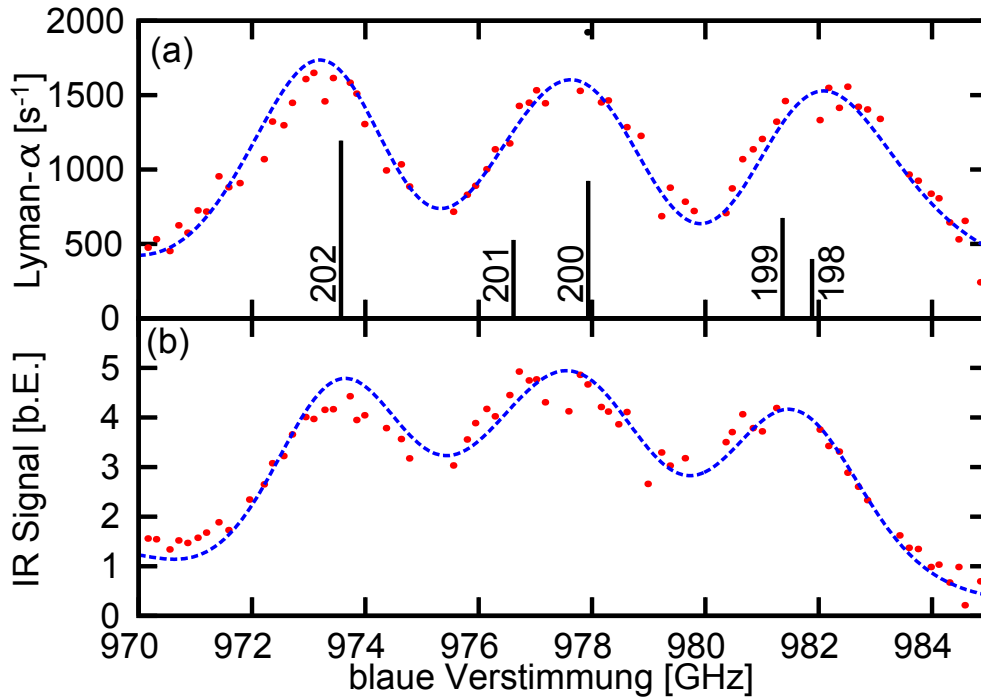


Abbildung 4.19: Zweiphotonenresonanz im Lyman- α Signal. (a) Zählrate bei der Lyman- α Wellenlänge beim Scannen der blauen Frequenz über die Zweiphotonenresonanz. (b) Gleichzeitig aufgenommenes IR Signal aus dem Zerfall des 7^1S Niveaus. Die UV Verstimmung beträgt 978 GHz. Die Kurven sind angepasste Theoriekurven. Vertikale Balken markieren die Position der Zweiphotonenresonanz der einzelnen Isotope, dabei deutet die Länge die relative Häufigkeit an.

In Abschnitt 4.1 wurde erläutert, welche weiteren Effekte bei der Zweiphotonenresonanz entstehen können. Durch hohe fundamentale Leistungsdichten und einer nahen Einphotonenresonanz des UV Lasers zum 6^1S-6^3P Übergang kann ein Laserprozess zwischen dem 7^1S und 6^1P Niveau einsetzen. In [SAH88] werden verschiedene Prozesse diskutiert, die einen Einfluss auf den Vierwellenmischprozess haben können, darunter auch ASE (*amplified spontaneous emission*). Dieser ist beim Einstrahlen der Fundamentallaser ein Konkurrenzprozess zu dem Vierwellenmischen, da eine erhöhte Absorption bei den fundamentalen Wellenlängen entstehen kann. In Abbildung 4.20 wurde die IR Leistung bei 1014 nm und die Lyman- α Leistung bei verschiedenen fundamentalen Leistungen gemessen. Dazu wurden die blaue und UV Wellenlänge so gewählt, dass sie das Maximum der Zweiphotonenresonanz (^{202}Hg) treffen. Die Laserleistungen im grünen sind 189 mW und im blauen 98 mW. Die Pumpleistung für den TALISE-Prozess wurde durch die UV Leistung variiert. Die UV Laserfrequenz ist dabei 150 GHz rotverstimmt zu dem Einphotonenübergang und die Phasen Anpassungstemperatur beträgt 153°C . Dies entspricht einer Quecksilberdichte von $7,1 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$. Man beobachtet weiterhin lineares Verhalten zwischen der VUV Leistung und der UV Leistung in Übereinstimmung mit Gleichung 2.35, obwohl in diesem Bereich der TALISE Prozess seinen Schwellenwert überschreitet und ein deutliches nichtlineares Verhalten in der IR Leis-

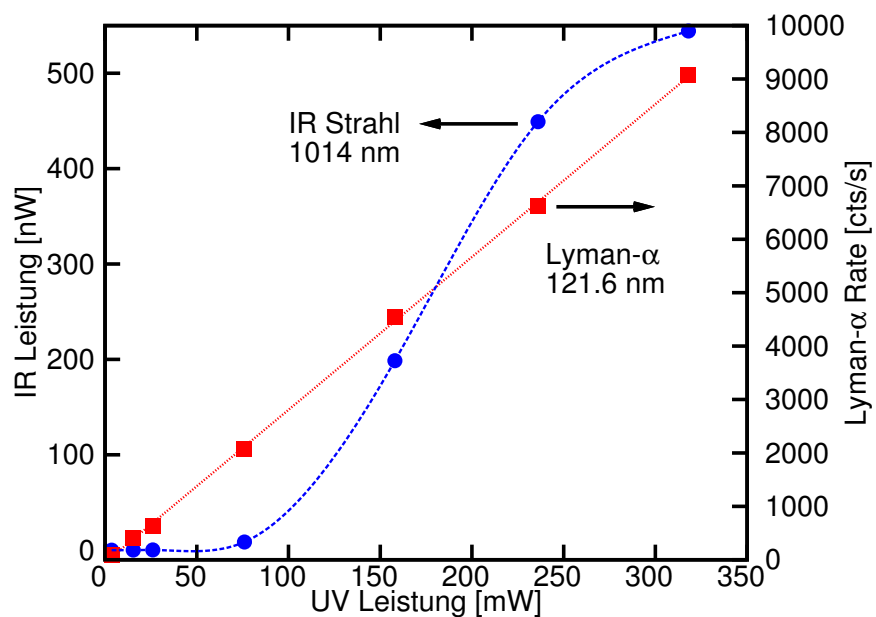


Abbildung 4.20: Lyman- α in Anwesenheit von ASE. IR Leistung (blaue Kreise) und Lyman- α Rate (rote Rechtecke) in Abhängigkeit von der UV Pumpleistung. Gemessen bei einer Zelltemperatur von 153°C , einer UV Verstimmung von 150 GHz, einer grünen Leistung von 189 mW, einer blauen Leistung von 98 mW und einem Puffergasdruck von 0 mbar.

zung zu erkennen ist. Man kann also festhalten, dass in diesem Leistungsbereich der Vierwellenmischprozess noch nicht durch einen ASE Konkurrenzprozess beeinträchtigt wird.

4.2.3. Einfluss der 6^3P Resonanz

Die kleine Verstimmung der UV Wellenlänge zu der 6^1S – 6^3P Resonanz hat auf den Vierwellenmischprozess verschiedenen Einflüsse die in diesem Abschnitt näher erläutert werden sollen. Betrachten wir nochmals den Einfluss des UV Lasers auf die Phasenfehl-anpassung Δk wie er in Kapitel 2.2.4 besprochen wurde. Da der gesamte Wellenvektorunterschied proportional zur Dichte ist, lässt sich auch ein Wellenvektorunterschied pro Atomdichte definieren:

$$\Delta k_a = \frac{\Delta k}{N}. \quad (4.15)$$

Bei kleinen Verstimmung des UV Lasers wird die Phasenanpassung durch die starke Dispersion im UV von dieser dominiert. Vernachlässigt man nun zunächst den Einfluss der anderen Wellenlängen auf den Wellenvektorunterschied, erhält man aus der linearen Suszeptibilität [Boy08] für Δk_a :

$$\begin{aligned} \Delta k_a &= -\frac{1}{2Nc}\omega_4 \Re \{ \chi^{(1)}(\omega_4) \} \\ &= -\frac{1}{3c\epsilon_0 \hbar} \sum_v \omega_{gv} \rho_{gv}^2 \frac{\omega_4}{\omega_{gv}^2 - \omega_4^2} \end{aligned} \quad (4.16)$$

Dabei wurde zur Vereinfachung auf Verbreiterungseffekte verzichtet. Man erkennt direkt, dass Phasenanpassung nur bei einem rotverstimmtten UV Laser möglich ist, da nur in diesem Fall $\Delta k_a < 0$ ist. Darüberhinaus wird Δk_a für kleine Verstimmungen größer. Um weiterhin die Phasenanpassungsbedingung $bN\Delta k_a = -4$ zu erfüllen, erfolgt demnach bei kleineren Verstimmungen die Phasenanpassung bei kleineren Dichten. Dies lässt sich in Abbildung 4.21 (a) erkennen. Es sind Temperaturscans bei verschiedenen UV Verstimmungen gezeigt. Es ist deutlich zu sehen, dass kleinere Verstimmungen auch niedrigeren Temperaturen entsprechen. In Abbildung 4.21 (b) sind die gemessenen Phasenanpassungstemperaturen gegenüber der UV Verstimmung abgebildet. Der theoretisch berechnete Verlauf folgt $bN\Delta k_a = -4$ und liefert eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Die Fehlerbalken geben den Bereich an, in dem das Signal deutlich gegenüber Rauschen abgefallen ist. Einzelne Punkte wurden dabei an mehreren verschiedenen Tagen gemessen. Dabei wurden leicht unterschiedliche Phasenanpassungstemperaturen gemessen, mit Abweichungen von $< 5^\circ\text{C}$. Wo dies der Fall war, wurde der Mittelwert der gemessenen Temperaturen als Phasenanpassungstemperatur verwendet.

Neben dem Einfluss auf die Phasenanpassung erhält man noch einen Einfluss auf die nichtlineare Suszeptibilität. Der Teil der nichtlinearen Suszeptibilität, der von der UV Verstimmung abhängt, ist gegeben durch χ_{12} (vgl. Kapitel 2.2):

$$\chi_{12} = \sum_m \left(\frac{p_{nm}p_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_1} + \frac{p_{nm}p_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_2} \right). \quad (4.17)$$

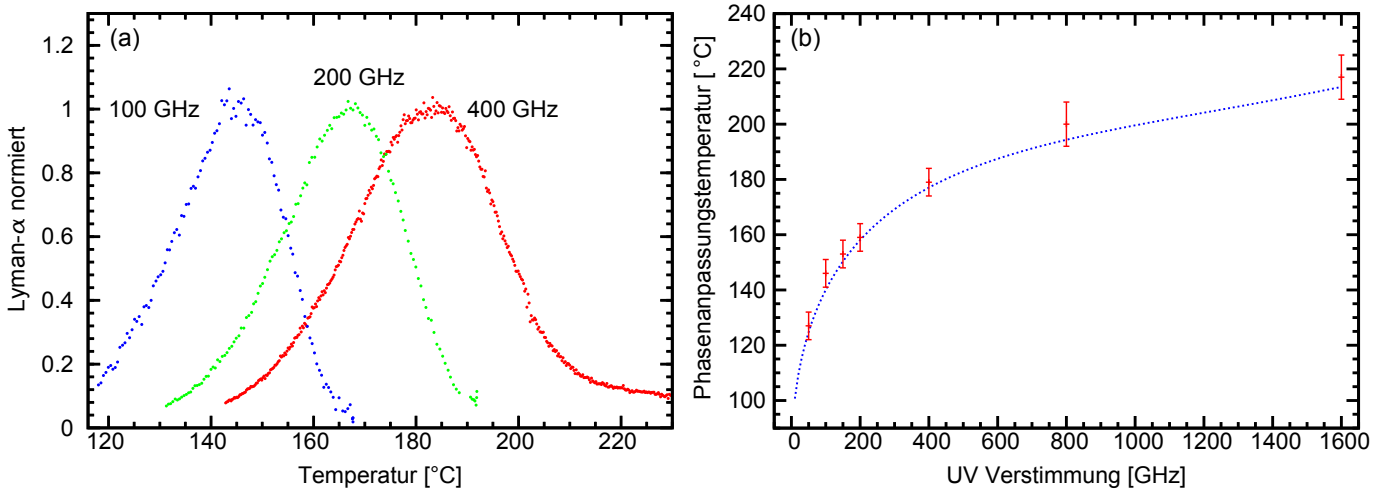


Abbildung 4.21: Einfluss der 6^3P Resonanz auf die Phasen Anpassung. Links: Normierte Lyman- α Zählrate gegenüber der Zellentemperatur bei verschiedenen UV Verstimmungen zur 6^3P Resonanz. Rechts: Optimale Phasen Anpassungstemperatur gegenüber der UV Verstimmung.

Bei kleinen UV Verstimmungen kann der Einfluss der blauen Frequenz vernachlässigt werden und (4.17) reduziert sich auf:

$$\chi_{12} \approx \sum_m \frac{p_{nm}p_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_1}. \quad (4.18)$$

Auch hier wird eine starke Abhängigkeit in der Nähe der Resonanz erwartet. Die Leistung durch Vierwellenmischen ist gemäß Gleichung (2.35) proportional zu $(\chi_{12}/\Delta k_a)^2$ und damit in erster Näherung mit Gleichung (4.16):

$$P_4 \propto \left(\frac{\chi_{12}}{\Delta k_a} \right)^2 = \left(\frac{\omega_{6^3P}^2 - \omega_1^2}{\omega_{6^3P} - \omega_1} \right)^2 = (2\omega_{6^3P} + \Delta\omega)^2 \approx const. \quad (4.19)$$

Da der Frequenzabstand $\Delta\omega$ klein im Vergleich zu der Übergangsfrequenz ist, ergibt sich rechnerisch zunächst kein signifikanter Einfluss auf die VUV Leistung durch die UV Verstimmung. Die geringeren Phasen Anpassungstemperaturen verursachen eine geringere Dopplerverbreiterung der Zweiphotonenresonanz. Dadurch wird trotzdem ein positiver Effekt erwartet. Eine kleinere Verbreiterung der Zweiphotonenresonanz ermöglicht eine höhere Resonanz. Die Höhe der Resonanz ist gerade proportional zu $1/\sqrt{T}$ und würde eine Leistungssteigerung von lediglich 7%, bei einer Temperaturänderung von 218°C auf 153°C , erklären.

In Abbildung 4.22 ist die Lyman- α Zählrate gegenüber der UV Verstimmungen aufgetragen. Die Zählrate wurde dabei auf die fundamentalen Leistungen normiert. Es wurde einmal die Zählrate bei einer Fokusposition in der Mitte der Zelle (rot durchgezogen) und einmal weit vorne in der Zelle (blau gepunktet) gemessen. Bei beiden Datensätzen kann eine Abhängigkeit der Lyman- α Zählrate von der UV Verstimmung festgestellt werden. Die Maxima liegen bei einer UV Verstimmung von 150 GHz. Die Steigerung

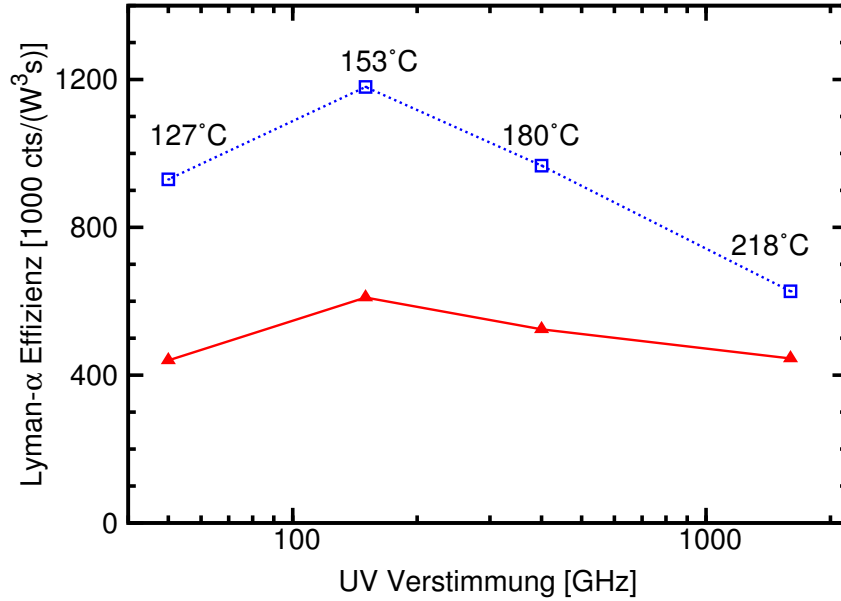


Abbildung 4.22: Einfluss der 6^3P Resonanz auf die Lyman- α Leistung. Normierte Lyman- α Zählrate bei verschiedenen UV Verstimmungen einmal beim Frequenzmischen im Zentrum der Zelle (rote durchgezogene Linie) und einmal möglichst weit vorne in der Zelle (blaue gepunktete Linie). Die Temperaturen an den Datenpunkten geben die Phasenangepasungstemperatur für die jeweilige Verstimmung an.

von fernresonanten Verstimmungen (1600 GHz) zu den Maxima ergibt 33% bzw. 64% beim Vierwellenmischen im Zentrum bzw. vorne in der Zelle. Diese Steigerungen lassen sich durch die Reduzierung der Phasenangepasungstemperatur nicht erklären.

Durch die nahe Einphotonresonanz des UV Lasers zur 6^1S-6^3P Resonanz kommt es zur Absorption bei der UV Wellenlänge. Demnach ist es günstig den Ort des Vierwellenmischens weit vorne in die Zelle zu legen um einen kurzen Absorptionsweg zu haben. Gerade bei kleinen UV Verstimmungen erlangt man auf diese Weise eine Leistungssteigerung um einen Faktor 2 (vgl. rote und grüne Linie bei 50 und 150 GHz). Bei einer Verstimmung von 1600 GHz konnte zwar keine Absorption bei der UV Wellenlänge gemessen werden, trotzdem erhält man hier ein ca. 40% höheres Signal. Da die beiden Datensätze an verschiedenen Tagen gemessen wurden, muss dieser Unterschied auf Tag zu Tag Schwankungen zurückgeführt werden.

Ein weiterer Interpretationsansatz der zunehmenden Effizienz mit kleinerer UV Verstimmung ist die kleinere Absorption der erzeugten Strahlung durch Hg_2 Quecksilberdimere [SAH88]. Hg_2 besitzt mehrere Absorptionspeaks um 119 nm [LLL⁺84], was Absorption bei der Lyman- α Wellenlänge erklären könnte. Der Partialdruck der Quecksilberdimere kann angegeben werden mit [SAH88, Hil82]:

$$p_{\text{Hg}_2} = \frac{p_{\text{Hg}}^2}{\text{Pa}} \frac{2}{3} \cdot 10^{-9} e^{(1300\text{K}/T)}. \quad (4.20)$$

Dabei sind die Partialdrücke p_{Hg_2} der Quecksilberdimere und p_{Hg} der Quecksilberatome in Pascal und die Temperatur in Kelvin anzugeben. Die Dichte der Quecksil-

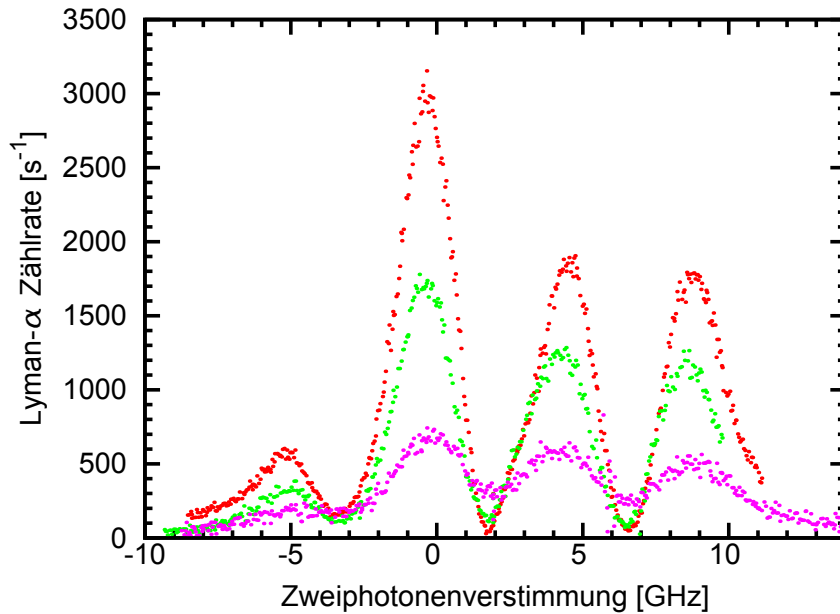


Abbildung 4.23: Einfluss von Puffergas auf die Zweiphotonenresonanz im Lyman- α . Gemessene Lyman- α Zählrate bei einem Scan über die Zweiphotonenresonanz bei verschiedenen Puffergasdrücken (rot = 0 mbar, grün = 20 mbar, lila = 100 mbar). $\Delta_{UV} = 50$ GHz, $T = 130^\circ\text{C}$.

berdimere ist in dem verwendeten Temperaturbereich 4 bis 5 Größenordnungen kleiner als die Quecksilberdichte. Durch die Temperaturabhängigkeit der Quecksilberdimerbildung erhält man für kleine Verstimmungen (150 GHz) eine Dichte von $4 \cdot 10^{17}/\text{m}^3$, wohingegen bei großen Verstimmungen eine deutlich größere Dichte von $2 \cdot 10^{19}/\text{m}^3$ zu erwarten ist. Dies würde einen Unterschied in der Dimerdichte von einem Faktor 50 entsprechen. Wenn allerdings die geringen Dichten wirklich eine merkliche Absorption bei der Lyman- α Wellenlänge verursachen würden, müsste man einen deutlich größeren Leistungsanstieg als gemessen (alleine durch die Verringerung der Dichte der Quecksilberdimere) erwarten.

Weder die Verringerung der Dopplerbreite als auch Lyman- α Absorption durch Hg_2 liefern zufriedenstellende Erklärungen für die Effizienzsteigerung beim Vierwellenmischen mit einer nahen Einphotonresonanz. Es lässt sich festhalten, dass zwar ein Anstieg der Leistung bei Verringerung der UV Verstimmung zu erwarten ist, aber die Höhe des Einflusses nicht vollständig verstanden ist.

Durch die geringeren Phasenanstempertemperaturen lässt sich die Quecksilberzelle deutlich leichter betreiben. Bei hohen Temperaturen ist Puffergas nötig um die Optiken vor Quecksilberbeschlag zu schützen, wohingegen bei Temperaturen unterhalb von 150°C auch ohne Puffergas ein stabiler Betrieb der Quecksilberdampfzelle über mehrere Tage möglich ist.

Mit dem gleichen Argument wie bei der Dopplerverbreiterung lässt sich durch eine Verringerung der Druckverbreiterung ein Gewinn in der Leistung erzielen. In Abbildung 4.23 sind verschiedene Scans über die Zweiphotonenresonanz bei verschiedenen

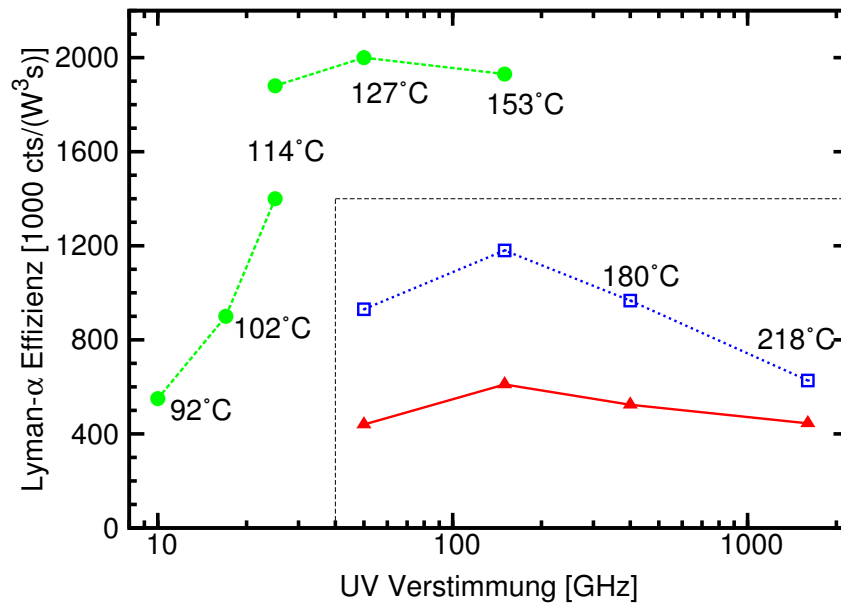


Abbildung 4.24: Einfluss der 6^3P Resonanz auf die Lyman- α Leistung. Normierte Lyman- α Zählrate bei verschiedenen UV Verstimmungen wie in Abbildung 4.22. Der Kasten zeigt den Ausschnitt wie er in Abbildung 4.22 gewählt wurde. Zusätzlich sind zwei Datensätze ohne Verwendung von Puffergas eingezeichnet (grüne Punkte). Die Temperaturen an den Datenpunkten geben die Phasen Anpassungstemperatur für die jeweilige Verstimmung an.

Puffergasdrücken gezeigt. Die Effizienzsteigerung durch Druckreduktion des Puffergases ist deutlich erkennbar. Die Messungen wurden alle am selben Tag durchgeführt, bei einer UV Verstimmung von 50 GHz und einer Temperatur von 130°C. Puffergas wurde nach und nach zugegeben. Auf diese Weise erhält man eine Leistungssteigerung um den Faktor 4,5 von 100 mbar auf 0 mbar Puffergasdruck.

Durch eine geringere Druckverbreiterung wird auch die Absorption bei der UV Wellenlänge geringer und das Vierwellenmischen kann bei kleineren UV Verstimmungen durchgeführt werden. In Abbildung 4.24 sind zusätzlich zu den Daten aus Abbildung 4.22 zwei Datensätze bei kleinen UV Verstimmungen und ohne Puffergas eingezeichnet. Es konnte bis zu UV Verstimmungen von 10 GHz Lyman- α Strahlung produziert werden. Verglichen mit den Werten unter Zugabe von Puffergas und in der Mitte der Zelle ist die Effizienz sogar höher. Beide Datensätze wurden an verschiedenen Tagen aufgenommen, wodurch sich der Wert bei 25 GHz wiederum nicht reproduzieren ließ. Die höchste Effizienz mit 2×10^6 cts/W³s wurde bei einer UV Verstimmung von 50 GHz ohne Puffergasbeigabe gemessen. Die Datensätze ohne Puffergas wurden jeweils mit Lyman- α Erzeugung im vorderen Bereich der Zelle gemessen.

Die maximal erreichte Lyman- α Leistung mit diesem System kann mit 0,3 nW angegeben werden [SKM⁺09]. Dabei wurden fundamentale Leistungen von 140 mW UV, 350 mW blau und 200 mW grün bei einer Effizienz von $1,1 \times 10^6$ cts/W³s verwendet. Die Leistung ergibt sich aus der Lyman- α Zählrate und der Messeffizienz, die mit 6×10^{-5} abgeschätzt werden kann [Mar09]. Die Messeffizienz setzt sich zusammen aus der ge-

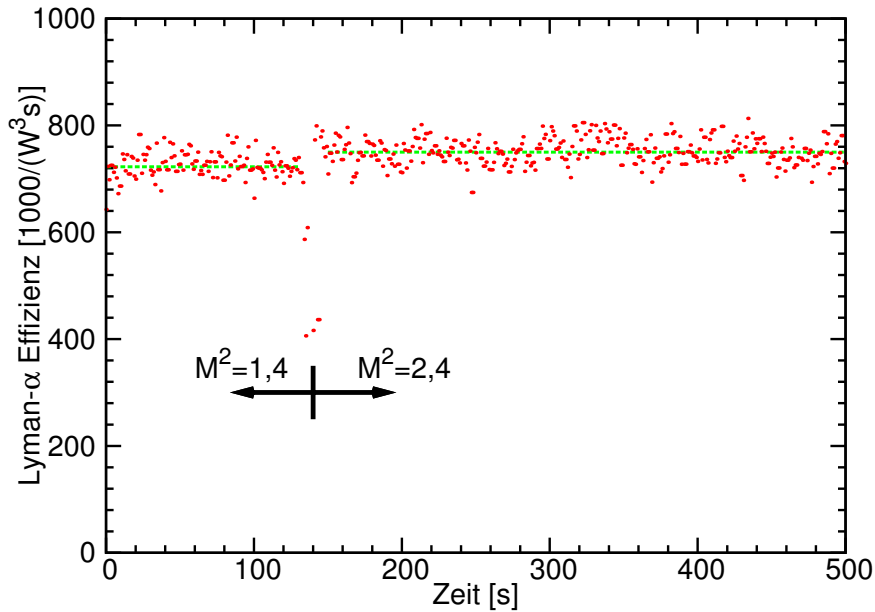


Abbildung 4.25: Abhängigkeit der Lyman- α Leistung vom UV Strahlprofil. Lyman- α Zählrate zeitlich aufgenommen, bei 140 s wurde das Pinhole zur Strahlbereinigung aus dem Strahlengang entfernt. Damit ändert sich die Beugungsmaßzahl M^2 des UV Strahls von 1,4 auf 2,4 mit gleichzeitiger Leistungssteigerung um 30%. Die beiden Geraden stellen den Mittelwert der Effizienz für die beiden Fälle mit und ohne Strahlbereinigung dar und zeigen eine Veränderung von 4%.

messenen Transmission durch die MgF_2 Linse (68%), der gemessenen Transmission der drei Lyman- α Filter (insgesamt $1,04 \times 10^{-3}$), der berechnete Wert der Transmission an dem Metallspiegel ($\approx 70\%$) und die vom Hersteller angegebene Detektionseffizienz des Photomultipliers (12%).

Bei voller Ausnutzung der verfügbaren Laserleistungen von 750 mW UV, 650 mW blau und 4,1 W grün bei optimal erzielter Effizienz von 2×10^6 cts/ W^3s könnte eine Lyman- α Leistung von 110 nW erreicht werden. Zum Kühlen von Antiwasserstoff kann abgeschätzt werden, dass wenige nW bei Lyman- α ausreichen um Kühlzeiten von wenigen Minuten zu erhalten [WPEH01]. Damit ist die hier präsentierte Quelle durchaus in der Lage zur Kühlung von Antiwasserstoff eingesetzt zu werden. Trotzdem ist es wünschenswert möglichst viel Leistung bei der Lyman- α Wellenlänge zur Verfügung zu haben um die hohen Verluste durch Optiken bei der Strahlführung zur Antiwasserstofffalle zu kompensieren.

4.2.4. Einfluss des Strahlprofils der Fundamentalstrahlen

Bei unserem Vierwellenmischprozess werden Laserstrahlen mit teilweise stark von einem Gaußstrahl abweichenden Profilen verwendet (siehe Abbildungen 3.5, 3.7, 3.10). Die Theorie aus Kapitel 2.2 geht jedoch von perfekten Gaußstrahlen aus.

Den Einfluss der unterschiedlichen b -Parameter und damit verbunden der Phasen Anpassung wurde bereits in Abschnitt 4.2.1 besprochen. Es bleibt jedoch die Frage offen,

ob sich höhere Moden an dem Vierwellenmischprozess beteiligen. Die Beugungsmaßzahl (oder auch der M^2 Wert), wie sie durch die knife-edge Methode vermessen wurde (vergleiche Kapitel 3.2.1), gibt einen Hinweis wie gaußähnlich ein Laserstrahl ist. Der UV Strahl mit einem M^2 Wert von 2,4 ist der Strahl, der den höchsten nicht-Gaußanteil aufweist. Jedoch lässt sich auf die Strahlqualität mit Hilfe einer Apertur Einfluß nehmen. Fokussiert man einen Laserstrahl, lassen sich mit Hilfe einer Apertur im Fokus höhere Moden herausfiltern. Damit lässt sich die Beugungsmaßzahl deutlich verringern. Dies wurde realisiert um den Einfluss des Strahlprofils des UV Lasers zu testen. Durch diese Methode konnte die Beugungsmaßzahl auf 1,4 verringert werden. In Abbildung 4.25 wird jedoch deutlich, dass sich dies auf den Vierwellenmischprozess kaum auswirkt. Die Leistung bei der Lyman- α Wellenlänge ist gegen die Zeit aufgetragen. Während der Messung wurde die Apertur bei $t = 140$ s aus dem Strahlengang entfernt und damit von $M^2 = 1,4$ auf $M^2 = 2,4$ umgeschaltet. Die mittlere Leistung ändert sich nur um 4% obwohl die Apertur lediglich eine Transmission von 70% aufweist. Also werden durch die Apertur höhere Moden unterdrückt, die ca. 30% der Leistung ausmachen. Es lässt sich festhalten, dass die höheren Moden bei dem Vierwellenmischprozess kaum Einfluss auf die Leistung haben [KBD⁺10].

Bei einem $M^2 > 2$ lässt sich eine untere Abschätzung für die Leistung in der TEM₀₀ Mode machen. In Abbildung 4.26 ist das errechnete M^2 für die Überlagerung aus einem TEM₀₀ Strahl (*Transversalelektromagnetische Welle* ohne Knotenstellen im Strahlquerschnitt) mit verschiedenen TEM _{m_0} Strahlen (m Knotenstellen), bei verschiedenem Anteil der Leistung der höheren Strahlmode an der Gesamtleistung gezeigt. Zunächst kann man festhalten, dass sich der M^2 Wert für einen reinen TEM _{m_0} Strahl durch $M^2 = 2m + 1$ berechnen lässt [SS98]. Ein größerer Anteil einer höheren Mode an einem Strahl liefert immer ein höheres M^2 . Auch ist die Beugungsmaßzahl für eine Überlagerung aus TEM₀₀ und einem TEM _{m_0} stets größer je höher die Mode m gewählt wird. Ein aus TEM Moden zusammengesetzter Strahl hat somit das kleinste M^2 für eine Überlagerung aus TEM₀₀ und TEM₁₀. Somit kann abgeschätzt werden, welche Leistung mindestens in der TEM₀₀ enthalten sein muss, damit sich im ungünstigsten Fall das gemessene M^2 ergibt. Diese Abschätzung ist jedoch nur für Beugungsmaßzahlen größer 2 korrekt, lässt sich aber so auf den UV Strahl mit dem gemessenen $M^2 = 2,4$ anwenden. In Abbildung 4.26 kann nun direkt eine untere Grenze für die Leistung in der Grundmode bei $M^2 = 2,4$ abgelesen werden. Für den UV Strahl erhält man so, dass die TEM₀₀ Mode mindestens 40% der Leistung ausmachen muss.

Wie in Abschnitt 3.2.1 festgehalten wurde, ist die Phasenanpassungsbedingung $b\Delta k = -4$ durch die Gouy-Phase zu erklären. Ein TEM₀₀ Strahl, also ein Strahl in der Grundmode erhält einen Phasenversatz von π beim Durchlaufen eines Fokusses. Für einen allgemeinen Strahl höherer Ordnung TEM _{mn} lässt sich der resultierende Phasenversatz wie folgt beschreiben:

$$\phi = (2(m + n) + 1)\pi. \quad (4.21)$$

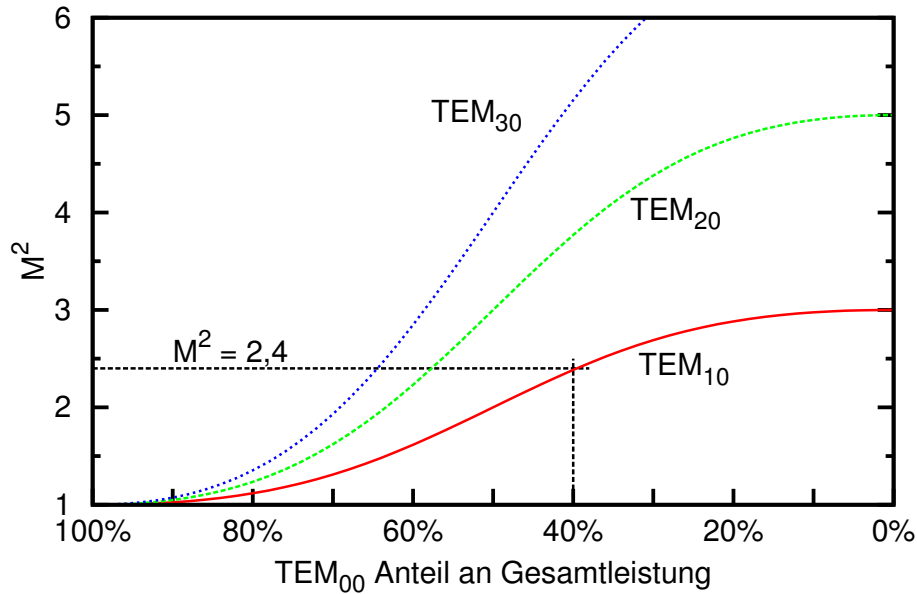


Abbildung 4.26: Theoretisches M^2 für Überlagerungen aus verschiedenen Moden. Berechnete Beugungsmaßzahlen für Überlagerungen aus einem TEM_{00} und einem TEM_{m0} Strahl bei verschiedenem Anteil der Leistung in der höheren TEM Mode an der Gesamtleistung.

Es ließe sich also erklären, dass höhere Moden durch fehlende Phasen Anpassung nicht am Vierwellenmischprozess teilnehmen, da ihre Phasen Anpassung von der Grundmode unterschiedlich ist. Somit ließe sich durch geeignete Strahlformung z.B. durch adaptive Optiken die Effizienz des Vierwellenmischens noch steigern. Für Strahlen mit einem $M^2 < 2$ lässt sich als Abschätzung ein Anteil von mindestens 50% in der Grundmode angeben. Nehmen wir diesen Fall für alle drei Strahlen zur groben Abschätzung an, kämen wir auf eine maximal mögliche Leistungssteigerung von $2^3 = 8$.

In Abbildung 4.27 ist die Lyman- α Leistung gegenüber der Zelltemperatur gezeigt. Dabei wurde einmal die Phasen Anpassungskurve mit bereinigtem Strahl (rot) und einmal ohne weitere Bereinigung (grün) aufgenommen. Es zeigt sich nur eine sehr geringe Änderung in der Phasen Anpassungstemperatur. Beide Scans wurden am selben Tag mit gleichen Justagebedingungen aufgenommen.

Es lässt sich zusammenfassend feststellen, dass höhere Modenanteile in den fundamentalen Strahlen den Vierwellenmischprozess wenig beeinflussen.

4.2.5. Dreifach einphotonresonantes Vierwellenmischen

In diesem Abschnitt wird eine weitere Möglichkeit beschrieben Vierwellenmischen sehr effizient zu betreiben. Dabei wird die Summenfrequenz in die Nähe einer Resonanz in Quecksilber gelegt. Damit wird nicht mehr Strahlung bei Lyman- α , sondern in diesem speziellen Fall Strahlung bei einer Wellenlänge von 120,3 nm erzeugt. Dies kann sehr effizient geschehen und demonstriert die Stärke des hier vorgestellten Systems.

Durch die Möglichkeit, die Frequenz des UV Lasers beliebig nahverstimmt zu der 6^1S-

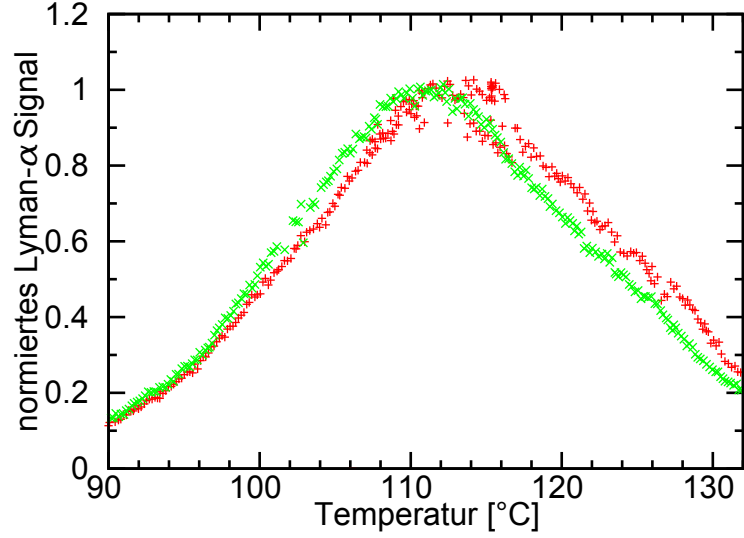


Abbildung 4.27: Einfluss des Strahlprofils auf die Phasen Anpassung. Lyman- α Leistung gegenüber der Zelltemperatur mit (rote +) und ohne (grüne x) bereinigten UV Strahl.

6^3P Resonanz von Quecksilber zu wählen, lässt sich der Einfluss dieser Resonanz auf den Vierwellenmischprozess untersuchen. Dies wurde in [Sch09] bereits besprochen. Durch das Ausnutzen dieser Resonanz ergibt sich bei der Lyman- α Wellenlänge ein bis zu fünffach effizienteres Vierwellenmischen bei deutlich reduzierter Quecksilbertemperatur im Vergleich zu einem weitverstimmt UV Laser im gleichen Vierwellenmischprozess [Pah02, PFH⁺05].

Zwar ist die nichtlineare Suszeptibilität durch die kleine Verstimmung enorm vergrößert, jedoch muss die Dichte des Quecksilberdampfes verringert werden. Diese beiden Effekte wirken sich also gegenläufig auf den Vierwellenmischprozess aus und somit fällt der Nutzen einer Einphotonenresonanz eher gering aus. Durch die geringere Temperatur des Quecksilberdampfes verkleinert sich die Dopplerverbreiterung der Zweiphotonenresonanz und es kann auf die Verwendung von Puffergas verzichtet werden, wodurch sich auch die Druckverbreiterung verringert. Es werden hier nun zunächst die Gründe für diesen geringen Anstieg der Leistung bei Lyman- α erklärt und dann die Erweiterung des Vierwellenmischschemas auf ein dreifach Einphotonenresonantes Schema und die daraus entstehenden Vorteile besprochen.

Betrachten wir zunächst die nichtlineare Suszeptibilität $\chi_a^{(3)}$ und den Wellenvektordifferenz Δk_a , jeweils auf die Atomdichte normiert, und konzentrieren uns nur auf den Einfluss der beiden Einphotonenresonanzen. Man erhält:

$$\chi_a^{(3)} = \frac{1}{6\epsilon_0\hbar^3} \sum_{m\nu v} \frac{1}{\omega_{ng} - (\omega_1 + \omega_2)} \frac{p_{nm}p_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_1} \frac{p_{nv}p_{vg}}{\omega_{gv} - \omega_4}, \quad (4.22)$$

$$\Delta k_a = \frac{e^2}{2cm_e\epsilon_0} \sum_v \left(\omega_4 \frac{f_{gv}}{\omega_{gv}^2 - \omega_4^2} - \omega_1 \frac{f_{gv}}{\omega_{gv}^2 - \omega_1^2} \right). \quad (4.23)$$

Dabei ist über alle erreichbaren Niveaus zu summieren. In Abbildung 4.28 sind in Teil (a)

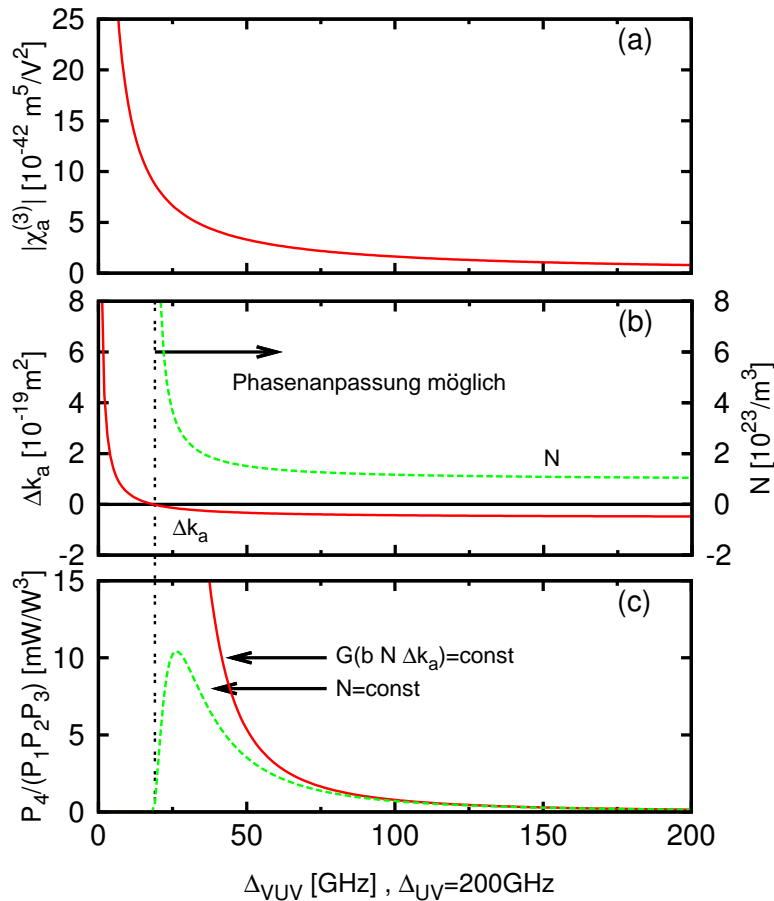


Abbildung 4.28: Rechnung zum dreifach einphotonresonanten Vierwellenmischen. (a) nichtlineare Suszeptibilität, (b) Wellenvektorunterschied und (c) Effizienz des Vierwellenmischens gegenüber der Verstimmung der Summenfrequenz Δ_{VUV} zu dem 12^1P Niveau bei einer UV Verstimmung von $\Delta_{UV} = 200$ GHz.

und (b) diese beiden Größen, im Falle einer UV Verstimmung von 200 GHz gegenüber der Summenfrequenz in der Nähe der 12^1P Resonanz dargestellt (rote Kurven). Deutlich ist der Anstieg in der nichtlinearen Suszeptibilität zu sehen, wie er auch schon im Falle einer Einphotonenresonanz im UV in Kapitel 2.2.5 zustande kam. Ein entscheidender Unterschied fällt bei dem Wellenvektorunterschied auf. Er verändert sich erst in der Nähe der Resonanz. Der Einfluss auf die Phasenanpassung ist somit geringer als bei der Einphotonenresonanz. Die grüne gestrichelte Linie in Abb. 4.28(b) zeigt die zur optimalen Phasenanpassung benötigte Quecksilberdichte. Von hohen Frequenzen kommend, ändert sie sich bis 50 GHz wenig und bei noch kleineren Verstimmungen zeigt sich durch den Vorzeichenwechsel im Wellenvektorunterschied bei ca 20 GHz eine Divergenz, die den Bereich in dem Phasenanpassung möglich ist, begrenzt. In Teil (c) von Abbildung 4.28 ist die berechnete Effizienz bei der Summenfrequenz dargestellt. Dabei stellt die rote durchgezogene Linie die Effizienz bei stets optimal eingestellter Phasenanpassung dar, also in dem Falle in dem die Quecksilberdichte gemäß Abbildung 4.28(b) variiert wird. Da es technisch nicht realisierbar ist, die Dichte unbegrenzt zu steigern, ist es ebenfalls interessant, die Effizienz bei konstanter Quecksilberdichte zu

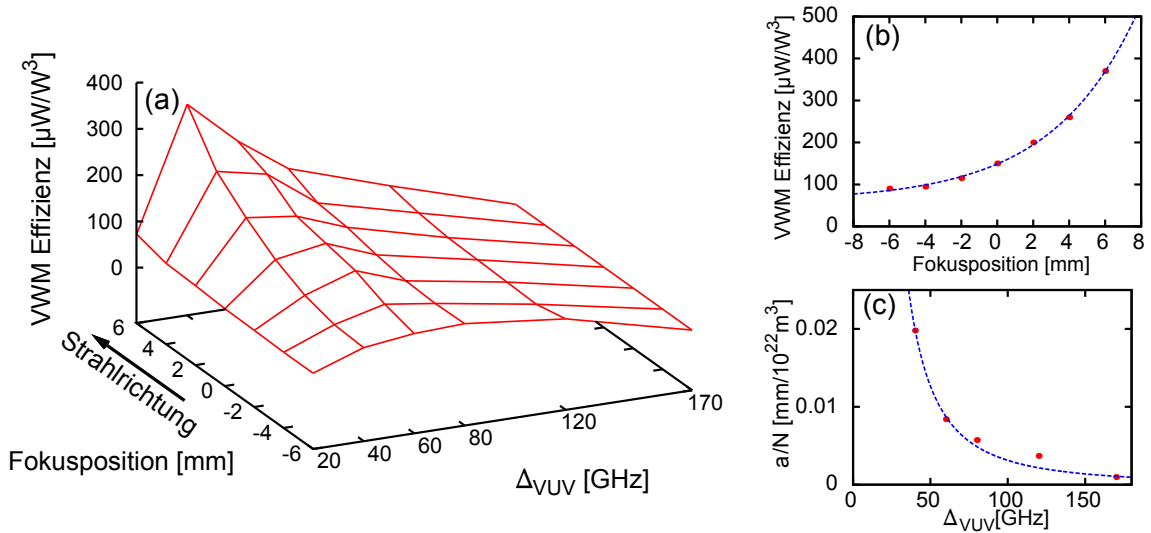


Abbildung 4.29: Einfluss der Fokusposition und der VUV Verstimmung auf die Vierwellenmischeffizienz. (a) Kleinere Verstimmungen der VUV Frequenz resultieren in einer größeren Effizienz bis Absorption bei der VUV Frequenz dominant wird. Bei kleinen Verstimmungen ist der Einfluss der Fokusposition größer. (b) VWM Effizienz gegenüber der Fokusposition bei einer VUV Verstimmung von 40 GHz mit exponentiellem Fit (blau). (c) Absorptionsquerschnitte der VUV Frequenz in Abhängigkeit der Verstimmung. Die blaue Linie ist die Anpassung eines Voigtprofils an die Datenpunkte.

betrachten. Diese ist als grüne gestrichelte Linie in Abbildung 4.28(c) zu sehen. Der Vorzeichenwechsel im Wellenvektorunterschied resultiert direkt aus der Gleichung für Δk_a an dem Punkt, an dem die Dispersion bei der Summenfrequenz gleich der Dispersion bei der UV Frequenz ist. Es lässt sich festhalten, dass der Einbruch bei der Effizienz durch den Einfluss der Summenfrequenz auf die Phasenanpassung bedingt ist. Ein weiterer experimenteller Aspekt verhindert die bedingungslose Ausnutzung der Einphotonresonanz im VUV. Aufgrund der nahen Resonanz findet bei der Summenfrequenz ebenfalls Absorption statt, welche die Effizienz begrenzt. Um den Einfluss der Absorption möglichst gering zu halten, werden die Foki der Fundamentalstrahlen weit nach hinten im Quecksilberbereich gelegt um den noch zu durchlaufenden Bereich mit Quecksilber für den erzeugten Strahl zu verkürzen.

Um diese beiden Einflüsse zu trennen, wurde die Effizienz des Vierwellenmischens bei unterschiedlichen Verstimmungen und Fokuspositionen in der Quecksilberzelle gemessen. Die Daten sind der Abbildung 4.29 (a) zu entnehmen. Es ist zu erkennen, dass es unabhängig von der gewählten Verstimmung der VUV Frequenz stets effizienter ist, die Fokusposition weit hinten in die Zelle zu legen. Die erzeugte Leistung kann dann nur noch in einem kurzen Quecksilberbereich absorbiert werden. Bei Variation der Verstimmung erhält man für jeder Fokusposition ein Maximum. Dessen Ausprägung und Lage ist durch die Fokusposition bestimmt. Weiter hinten in der Zelle verschiebt es sich zu kleineren Verstimmungen.

Die Daten wurden aufgenommen, indem bei einer Einstellung aus gewählten Verstimm-

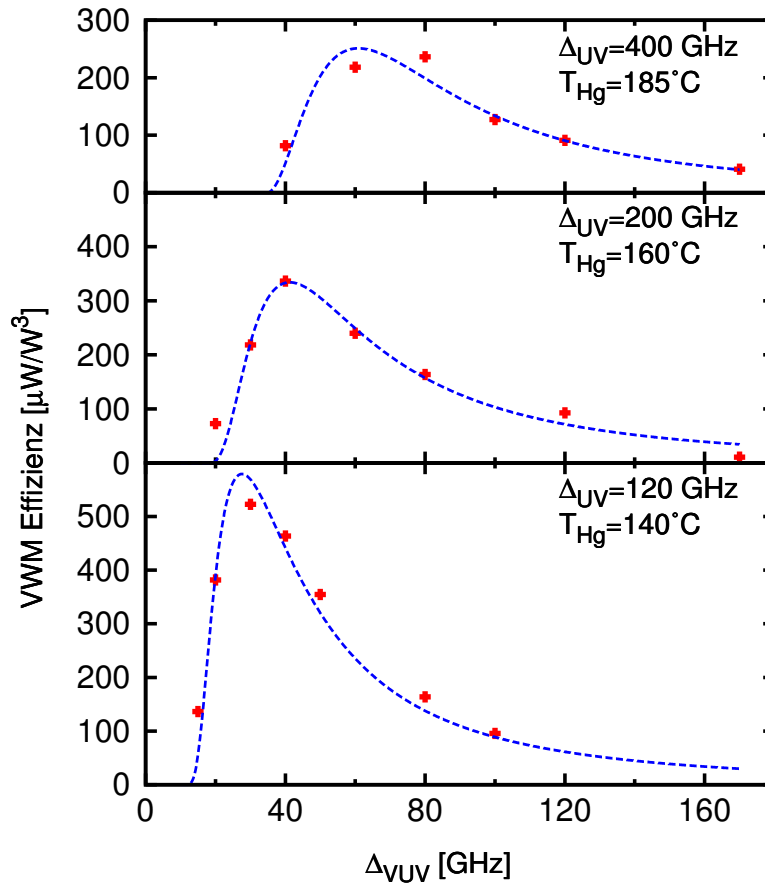


Abbildung 4.30: Ausnutzen der 12^1P Resonanz bei verschiedenen UV Verstimmungen. Gemessene VWM Effizienzen in Abhängigkeit der VUV Verstimmung zum 12^1P Niveau bei verschiedenen UV Verstimmungen und entsprechenden Phasen Anpassungstemperaturen. Die blauen Linien stellen angepasste Theoriekurven dar.

mungen die Fokusslinse vor der Quecksilberzelle verschoben und bei jeder Position der transversale Überlapp der Fundamentalstrahlen optimiert wurde. Solch eine Messreihe ist in Abbildung 4.29 (b) gezeigt. Es folgt einem exponentiellem Verhalten, aus dem die Absorptionslänge extrahiert werden kann. In Abbildung 4.29 (b) ist neben den Daten auch ein exponentieller Fit in blau eingezeichnet. Normiert man die so ermittelten Absorptionslängen auf die Quecksilberdichte erhält man den Absorptionsquerschnitt bei verschiedenen Verstimmungen zu dem 12^1P Niveau (siehe Abbildung 4.29 (c)). Durch Anpassung eines Voigtprofils mit einer Dopplerbite von 4 GHz (entspricht der Dopplerverbreiterung bei 120°C) und einer Lorentzbreite von 1,5 GHz lassen sich die dazwischenliegenden Werte interpolieren. Die Flanke des Profils ist in Abbildung 4.29 (c) als blaue Kurve zu sehen.

Betrachten wir nun den Einfluss der UV Verstimmung auf die Effizienz des Vierwellenmischens. In Abbildung 4.30 ist die Effizienzmessung in Abhängigkeit der VUV Verstimmung für drei verschiedene UV Verstimmungen dargestellt. Die Effizienz wurde bei einer festen UV Verstimmung und der für eine weite VUV Verstimmung (> 1 THz) bekannte Phasen Anpassungstemperatur bei verschiedenen VUV Verstimmungen in der

Tabelle 4.1: Übersicht über die Größen l (absorbierende Hg-Länge) und G (Verlustterm) für verschiedene UV Verstimmungen Δ_{UV} .

Δ_{UV} [GHz]	l [mm]	G
400	6	0,193
200	6	0,174
120	4,5	0,195
50	20	0,214

Nähe der 12^1P Resonanz gemessen. Es ist deutlich zu erkennen, dass für kleinere UV Verstimmung auch kleinere VUV Verstimmungen gewählt werden können ohne das ein Einbruch in der Effizienz beobachtet wird. Darüber hinaus lassen sich deutlich höhere Effizienzen bei kleinen UV Verstimmungen erzielen. So ist es möglich, die Effizienz auf Werte über $500 \mu\text{W}/\text{W}^3$ zu erhöhen, was im Vergleich zu früheren kontinuierlichen Laserquellen in diesem Wellenlängenbereich einer Steigerung von drei Größenordnungen entspricht [PFH⁺05].

Um die Theoriekurven zu erhalten müssen neben der Rechnung, wie sie in Abbildung 4.28 gezeigt wurde, auch die noch vorhandene Absorption außerhalb des Quecksilberbereichs und weitere Verlustterme integriert werden. Da nicht bekannt ist, wie ausgedehnt die Quecksilberdampfzone in der Zelle tatsächlich ist, wird für den Fit eine variable Strecke mit der Länge l hinzugefügt, in dem die gleiche Quecksilberdichte wie in der Quecksilberzelle angenommen wird. Dadurch reduziert sich die Effizienz für erzeugte Wellenlängen nahe der Resonanz. Zusätzlich wird zum Anpassen der Theorie an die Daten ein konstanter Faktor G eingeführt, der durch Effekte der nicht optimalen Überlagerung der Fundamentalstrahlen und der geringeren Leistungsanteile in der TEM_{00} Mode der Fundamentalstrahlen zustandekommt. Dieses Verfahren wurde auf jede Messreihe angewendet. In Tabelle 4.1 sind die Werte für l und G für die verschiedenen Messreihen angegeben. Es kann eine gute Übereinstimmung für beide Werte bei UV Verstimmungen größer 120 GHz gefunden werden. Man kann somit davon ausgehen, dass eine Quecksilbermenge aus dem Zellenbereich herausdiffundiert, die in der Absorption ungefähr einer Länge von 6 mm bei gleicher Dichte entspricht und zum anderen, dass durch schlechte Überlagerung und durch die nicht perfekten Gaußstrahlen eine Leistungsreduktion auf ca. 20% entsteht (bei einer VUV Verstimmung größer 120 GHz). Dieser Wert stimmt mit allen Messungen gut überein.

Aus Tabelle 4.1 ist zu erkennen, dass der Wert l bei einer UV Verstimmung von 50 GHz stark von den anderen abweicht. Um den Unterschied zu verdeutlichen wurde in Abbildung 4.31 die Messung bei einer UV Verstimmung von 50 GHz mit dem Fit mit Absorptionslänge $l = 20$ mm gezeigt (blaue gestrichelte Linie). Dazu ist die Theoriekurve für eine Absorptionslänge von $l = 6$ mm in grün zu sehen. Man erkennt, dass bei einer UV Verstimmung von 50 GHz eigentlich eine deutlich höhere Effizienz zu erwartet wäre und auch der Einbruch erst bei kleineren VUV Verstimmungen sein müsste. Ein

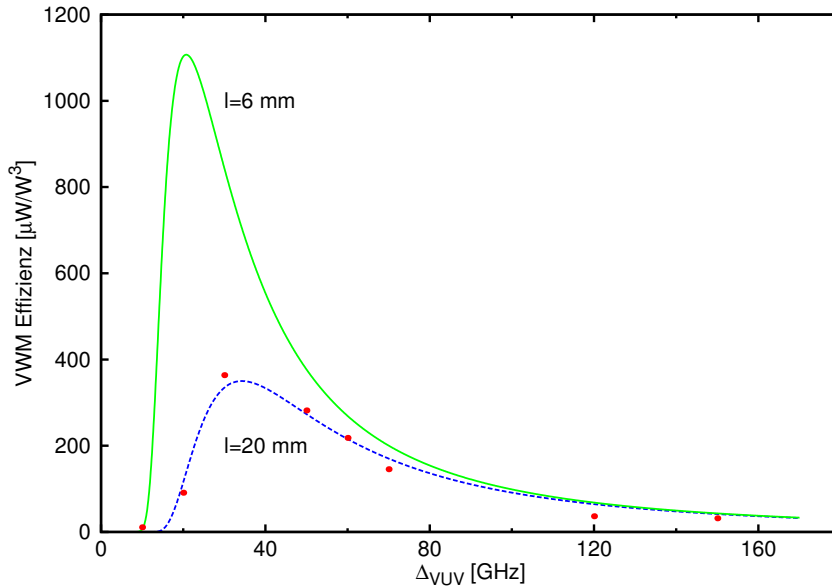


Abbildung 4.31: Vierwellenmischeffizienz bei einer UV Verstimmung von 50 GHz. In blau mit gestrichelter Linie ist die Effizienz bei einer absorbierenden Länge von $l = 20$ mm gezeigt, die durch Anfitzen an die Datenpunkte entstand. In durchgezogen grün ist die Effizienz bei einer absorbierenden Länge von $l = 6$ mm gezeigt, wie sie sich aus den Fits an die Messreihen bei 400 und 200 GHz ergab.

Erklärungsansatz ist die Annahme, dass die Absorption für kleine VUV Verstimmungen unterschätzt wird. In Abbildung 4.29 (a) ist zu erkennen, dass nur Absorptionen für VUV Verstimmungen größer 40 GHz sinnvoll mit dieser Methode gemessen werden können, da bei kleineren Verstimmungen die Absorption zu stark ist, um den exponentiellen Verlauf zu erkennen. Für kleinere Verstimmungen müssen die Werte extrapoliert werden. Durch die Annahme eines Voigtprofils zum Extrapolieren der Absorptionseffizienten wird jedoch die Isotopieaufspaltung vernachlässigt. In Abbildung 4.32 sind mehrere Messreihen um die ^{121}P Resonanz aufgetragen bei einer UV Verstimmung von 50 GHz. Um Absorption noch weiter zu unterdrücken, wurde bei geringerer Temperatur (110°C) als die optimale Phasenanstimmungstemperatur (130°C) gemessen. In einem weiten Bereich von ca. -11 GHz bis $6,5$ GHz kann keine VUV Leistung gemessen werden. Hier scheint entweder die Absorption zu stark zu sein oder die Phasenanstimmung ist nicht richtig gewählt. Interessant ist der Bereich bei ca. 13 GHz. Die VUV Leistung ist in diesem Bereich deutlich geringer, wohingegen links und rechts davon höhere VUV Leistung beobachtet werden kann. Mit der gleichen Argumentation, dass dies nur durch Absorption oder durch falsche Phasenanstimmung begründet ist, muss die ^{121}P Resonanz eines Isotops des Quecksilbers sich bei 13 GHz befinden. Dadurch lässt sich nun die unterschätzte Absorption bei den Messungen mit einer UV Verstimmung von 50 GHz erklären. Gerade kleine Verstimmungen nahe der 13 GHz werden durch diese Resonanz stark absorbiert. In Abbildung 4.32 ist auch zu sehen, dass Vierwellenmischen auch auf der anderen Seite der ^{121}P Resonanz betrieben werden kann und

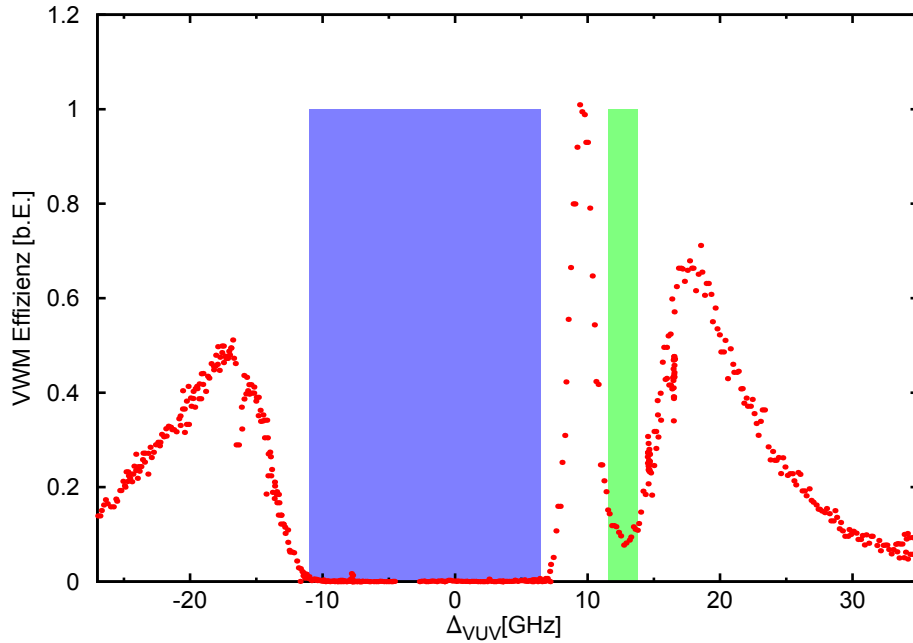


Abbildung 4.32: Vierwellenmischen in der Nähe der 12^1P Resonanz. Verschiedene Messungen der Effizienz um das 12^1P Niveau bei einer UV Verstimmung von 50 GHz. In dem blau hinterlegten Bereich zwischen -11 bis 6,5 GHz wird keine VUV Leistung beobachtet. Aber auch im grün hinterlegten Bereich zwischen 12 und 14 GHz ist das Vierwellenmischen deutlich unterdrückt. Um den Einfluss von Absorption etwas zu verkleinern wurde bei einer niedrigeren Temperatur (110°C) als die optimale Phasenanpassungstemperatur (130°C) gemessen. Die Daten wurden auf Leistungen der Fundamentallaser und auf die Peakeffizienz bei 10 GHz normiert.

so auch in einem weiten Bereich effizientes Vierwellenmischen durch Ausnutzen einer dreifach Einphotonresonanz möglich ist.

Ein weiterer effizienzbegrenzender Faktor, begründet durch die nahe Einphotonresonanz, zeigt sich beim experimentellen Nachmessen der Gleichung (2.35). Nach Gleichung 2.35 ist die Leistung bei der Summenfrequenz proportional zu jeder fundamentalen Leistung. Messen wir jedoch die Leistung in Abhängigkeit der fundamentalen Leistung erhält man ein etwas anderes Bild. In Abbildung 4.33 ist die Leistung bei der VUV Wellenlänge gegenüber dem Produkt der Fundamentalleistungen dargestellt. Bei kleinen VUV Leistungen bis zu $3\ \mu\text{W}$ zeigt sich ein lineares Verhalten mit einer Steigung von $343\ \mu\text{W}/\text{W}^3$. Bei höheren Fundamentalleistungen knickt die Kurve ab und die Effizienz wird geringer. Der Vierwellenmischprozess sättigt, da durch die hohe Absorption weniger Quecksilber im Grundniveau zur Verfügung steht. Mit den maximal eingestrahlten Leistungen von 182 mW (UV), 245 mW (blau) und 525 mW (grün) und Verstimmungen von $\Delta_{UV} = 120\ \text{GHz}$ und $\Delta_{VUV} = 40\ \text{GHz}$ ergab sich so eine maximale Leistung bei 120 nm von $6\ \mu\text{W}$, was einer 30-fachen Leistungssteigerung zu vorherigen cw Laserquellen im VUV darstellt [PFH⁺05].

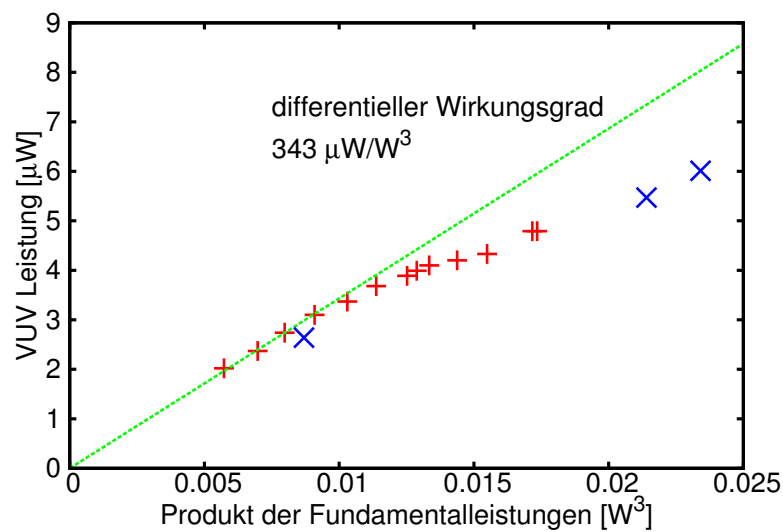


Abbildung 4.33: Sättigungseffekt des Vierwellenmischprozesses. VUV Leistung gegenüber dem Produkt der fundamentalen Leistungen. Ein Fit an die Datenpunkte bis $0,01 \text{ W}^3$ ergibt einen differentiellen Wirkungsgrad von $343 \mu\text{W}/\text{W}^3$. Datenpunkte mit roten + wurden bei niedrigen UV Leistungen (146 mW) gemessen, Punkte mit blauen X wurden bei hohen UV Leistungen (182 mW) gemessen. Die blaue Leistung war konstant bei 245 mW . ($\Delta_{UV} = 120 \text{ GHz}$, $\Delta_{VUV} = 40 \text{ GHz}$, $T = 140^\circ\text{C}$)

5. Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Doktorarbeit wurde eine kontinuierliche Laserquelle bei der Lyman- α ($1S-2P$) Übergangswellenlänge (121,56 nm) in (Anti-)Wasserstoff auf Basis von Festkörperlaser aufgebaut. Ein besonderes Augenmerk wurde dabei auf das Ausnutzen einer Zweiphotonenresonanz (6^1S-7^1S) in Quecksilber gelegt. Dies erhöht die Lyman- α Vierwellenmischeffizienz stark. Im Zuge der Untersuchung der Zweiphotonenresonanz wurden weitere Effekte neben dem Vierwellenmischen beobachtet. So konnte eine geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz, die stark mit Dunkelresonanzen verwandt ist, und das Anschwingen eines Laserprozess, der durch Zweiphotonenanregung gepumpt wird, untersucht werden. Dabei ist die geschwindigkeitsselektive Doppelresonanz zum ersten Mal nachgewiesen worden. Der Laserprozess, in der Literatur auch TALISE genannt, konnte zum ersten Mal mit kontinuierlichen Laser realisiert werden. Die Zweiphotonentheorie, wie sie hier hergeleitet wurde, gibt alle Zweiphotonenprozesse, bis auf TALISE, gut wieder und kann als Werkzeug für weitere Effekte wie z.B. elektromagnetisch induzierte Transparenz in der Zweiphotonenresonanz genutzt werden. Zusammenfassend kann gesagt werden, dass nun ein sehr gutes Verständnis der Zweiphotonenresonanz vorhanden ist, was für den effizienten Betrieb einer kontinuierlichen VUV Quelle bei Lyman- α wichtig ist.

Darüberhinaus konnte für das Vierwellenmischen durch das Ausnutzen einer Einphotonresonanz (6^1S-6^3P) bei einer Wellenlänge von 253,7 nm eine Leistungssteigerung um den Faktor 5 erzielt werden. Durch die Einphotonresonanz kann der Vierwellenmischprozess bei kleinen Temperaturen phasenangepasst werden. Die Leistungssteigerung setzt sich aus zwei Effekten zusammen. Durch die kleinere Temperatur verringert sich die Dopplerverbreiterung und es kann zusätzlich auf das Hinzufügen von Puffergas verzichtet werden, woraus eine Verringerung der Stoßverbreiterung folgt. Die kleineren Phasenangepasstemperaturen werden die Konstruktion von Quecksilberdampfzellen in Zukunft vereinfachen. Auch konnte so zum ersten Mal ein kompletter Scan über die Phasenangepasstkurve des Vierwellenmischprozesses bei Lyman- α durchgeführt werden. Es konnte gezeigt werden, dass ein zusätzlicher ASE (*amplified spontaneous emission*) Prozess den Vierwellenmischprozess nicht limitiert und keine Sättigung in der Lyman- α Leistung beobachtet werden konnte. Eine Erhöhung der fundamentalen Leistungen sollte demnach in vollem Umfang in einer höheren Leistung bei Lyman- α resultieren. Man konnte feststellen, dass höhere Modenanteile nicht am Vierwellenmischen beteiligt sind und auch keinen Einfluss auf die Phasenangepasstung haben. Demnach wäre eine zusätzliche Leistungssteigerung möglich, wenn die Strahlprofile der Funda-

mentalstrahlen verbessert werden.

Ebenso konnte mit Hilfe der Einphotonresonanz des UV Lasers das Ausnutzen einer Einphotonresonanz im VUV bei der Vierwellenmischfrequenz untersucht werden. Durch die Möglichkeit, die Dispersion bei den beiden Wellenlängen gegeneinander auszuspielen, lassen sich so durch dreifach einphotonresonantes Vierwellenmischen die höchsten jemals erzielten kontinuierlichen VUV Leistungen im Bereich von 120 nm erreichen. Dabei konnte eine Steigerung der Effizienz um den Faktor 10^3 beobachtet werden. Die Theorie des Vierwellenmischens wurde auf das dreifach einphotonresonante Schema erweitert und lieferte sehr gute Übereinstimmung mit dem Experiment. Darüber hinaus wurde eine alternative Berechnung für die nichtlineare Suszeptibilität auf Basis von Petch [PKKM96] entwickelt um den Prozess der elektromagnetisch induzierten Transparenz im Vierwellenmischen in Zukunft theoretisch beschreiben zu können.

6. Ausblick

Im Laufe dieser Doktorarbeit ergaben sich eine Vielzahl neuer Möglichkeiten, der Leistungssteigerung durch Vierwellenmischen. Davon sind einige bereits über die pure Idee hinausgegangen und erste Erfolge konnten erzielt werden. Der erste Aspekt, der hier diskutiert werden soll, ist die Erhöhung der fundamentalen Leistungen. Da jede fundamentale Leistung linear in die Leistung bei der Summenfrequenz eingeht, ist es recht naheliegend diese möglichst zu erhöhen.

Die UV Leistung ist limitiert durch die Degradation des BBO-Kristalls bei hohen fundamentalen Leistungen. Hier könnte auf ein anderes nichtlineares Medium ausgewichen werden. Es bietet sich z.B. ein CLBO Kristall ($\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$) an. Mit diesem wurde bereits eine UV-Leistung von 5 W bei 266 nm realisiert, bei einer Konversionseffizienz von 62% [SAO04]. Trotz des etwas geringeren nichtlinearen Koeffizienten (CLBO: $d_{\text{eff}} = 0,79 \text{ pm/V}$; BBO: $d_{\text{eff}} = 1,75 \text{ pm/V}$) erhält man durch den deutlich geringeren *walk-off* Winkel (CLBO: $\rho = 32,2 \text{ mrad}$; BBO: $\rho = 85,3 \text{ mrad}$) eine vergleichbare Konversionseffizienz im Einfachdurchgang. Darüber Hinaus würde man durch den kleinen *walk-off* Winkel ein besseres Strahlprofil erwarten, was eine höhere Effizienz beim Vierwellenmischen bedeutet.

Der fundamentale infrarote Scheibenlaser bei 1014 nm auf Basis von Yb:YAG ist anfällig auf resonatorinterne Verluste und auf Degradierung der Scheibe. Durch die geringe Verstärkung bei 1014 nm können bereits geringe Änderungen den Betrieb einschränken oder zum Erliegen bringen. Hier ließe sich durch die Wahl eines alternativen Scheibenmaterials Vorteile erzielen. Vielversprechend ist dabei Yb: Lu_2O_3 . Es besitzt einen geringfügig (ca. 30%) größeren Emissionsquerschnitt bei 1014 nm und die Konkurrenz zu dem Hauptverstärkungspeak ist um einen Faktor 2 geringer als bei Yb:YAG. Es wurden mit diesem Material bereits Lasertätigkeiten erzielt, die sehr vielversprechend sind [PKPH07, PKPH08].

Die blaue Leistung könnte verhältnismäßig einfach durch die Verwendung einer höheren Pumpleistung für den Ti:Sa Laser erhöht werden. Unsere kommerzielle Pumpquelle mit einer Leistung von 10,5 W ist ebenfalls mit einer Ausgangsleistung von 18 W erhältlich. Damit wäre eine infrarote Leistung von 3,5 W möglich, was bei gleicher Konversionseffizienz einer blauen Leistung von 1,2 W entsprechen würde.

Das größte Potenzial liegt in der Steigerung der grünen Leistung. Wie bereits in Kapitel 3.1.3 angesprochen, wird das jetzige kommerzielle Faserlasersystem deutlich unterhalb der Sollleistung von 9 W betrieben, um die Verstärkereinheiten vor Zerstörung durch Rückreflexe zu schützen. Im Rahmen einer Diplomarbeit wurde ein selbstgebautes Fa-

serverstärkersystem konstruiert, welches stabile Leistungen von 3 W erreicht [Ste09]. Durch eine zweite Verstärkerstufe konnten nun Leistungen bis zu 30 W erzielt werden. Bei solch hohen Leistungen können Konversionseffizienzen von größer 75% bei bereits recht schwachen Überhöhungen um einen Faktor 10 erreicht werden [MWD10]. Hier wäre also eine grüne Leistung von bis zu 23 W denkbar. Bei einer stärkeren Pumpquelle könnten durchaus Leistungen von 100 W im Grünen erzielt werden.

Insgesamt könnte durch die genannten Verbesserungen eine Steigerung der Leistung bei der Summenfrequenz von bis 2 bis 3 Größenordnungen erreicht werden.

Eine Alternative zu der Steigerung der fundamentalen Leistungen ist die Überhöhung der Strahlen in Resonatoren. Vierwellenmischen in einem Überhöhungsresonator konnte bereits beobachtet werden [NW90]. Auch konnte bereits ein Dreifarbenresonator für die Fundamentalen aufgebaut werden [Web09]. Es stellte sich heraus, dass die Konstruktion einer passenden Quecksilberzelle, die in den gemeinsamen Fokus der überlappenden Überhöhungsresonatoren platziert wird, eine technische Herausforderung ist [Nei09, Ric10]. Jedoch konnten bereits erste Experimente zur Zweiphotonenresonanz im Überhöhungsresonator beobachtet werden. Nimmt man die erzielten Überhöhungen und Einkoppeleffizienzen aus [Web09] so wäre eine Produktionssteigerung um einen Faktor 42000 möglich. Die erschwerte Auskopplung der Lyman- α Strahlung aus dem Resonator über den Reflex an einem der Zellenfenster würde immerhin noch eine nutzbare Steigerung von ca. 2000 bedeuten. Bisherige Versuche, Vierwellenmischen im Resonator zu betreiben scheiterten bisher an dem großen Justageaufwand. Schließlich müssen drei Resonatoren auf drei Strahlen justiert werden, wobei durch die Überlappung die einzelnen Resonatoren nicht unabhängig voneinander justiert werden können. Darüber hinaus unterliegen die fundamentalen Strahlen Lageschwankungen. Diese sind vor allem darin begründet, dass Lasersysteme und Dreifarbenresonator auf unterschiedlichen optischen Tischen platziert sind. Dadurch muss die Einkopplung der Strahlen in den Dreifarbenresonator täglich neu justiert werden. Durch die Installation einer Strahlagestabilisierung wird eine deutlich einfachere Handhabung erwartet.

Um die Verluste durch das Auskoppeln der Summenfrequenz aus dem Resonator zu vermeiden, könnten die Fundamentalen auch in einem kleinen Winkel überlagert werden und so die Austrittsrichtung der Summenfrequenz aus den Fundamentalphotonen herausgelegt werden. Dann könnte der Vierwellenmischprozess winkelphasenangepasst werden. Das bedeutet, die fundamentalen Strahlen werden nicht kollinear, sondern mit einem definierten Winkel zueinander überlagert. Der Wellenvektorunterschied, wie er in Kapitel 2.2.4 berechnet wurde, muss nun vektoriell berechnet werden. Durch den Winkel lässt sich somit gezielt die Phasenanpassungsbedingung $b\Delta k = -4$ für fokussierte Gaußstrahlen einstellen. Dies hat drei entscheidende Vorteile. Erstens kann die Quecksilberdichte und die Phasenanpassung getrennt eingestellt werden und somit eine Phasenanpassung bei hohen Dichten erzielt werden. Zweitens kann der Winkel so eingestellt werden, dass die Austrittsrichtung für die Summenfrequenz nicht mit einer der Fundamentalen zusammenfällt und damit die Auskoppelverluste wegfallen. Und

drittens könnten drei vollkommen getrennte Resonatoren für die fundamentalen Strahlen mit weniger optischen Elementen aufgebaut werden. All diese Vorteile würden sich direkt in einer Leistungssteigerung bemerkbar machen. Einzig die schwieriger zu konstruierende Quecksilberzelle würde eine Herausforderung darstellen.

Eine weitere Alternative den Vierwellenmischprozess effizienter zu gestalten, ist die Verlängerung des Überlappungsbereichs der Fundamentalen. Dies lässt sich mittels einer Hohlleiter ermöglichen, die durch Totalreflexion bei flachem Einfall an einer Oberfläche sowohl die drei Fundamentalen als auch die Summenfrequenz führen kann. Somit lässt sich die Verknüpfung zwischen der Intensität im Fokus und der Konfokallänge lösen. Bei der Frequenzmischung an freien Strahlen ergibt sich durch die Wahl eines kleineren Fokuses, und damit höherer Intensität, ein kürzerer Konfokalparameter, also ein kürzerer Überlappungsbereich. Bei einer Hohlleiter können durch die Wahl des Kerndurchmessers und der Länge beide Parameter getrennt variiert werden. Durch die Einschließung der Mode in der Hohlleiter liegen beim Vierwellenmischprozess ebene Wellen vor und die Phasenanpassungsbedingung ändert sich zu $\Delta k = 0$. Einfluss auf die Dispersion hat neben dem Quecksilber nun auch die Hohlleiter. Man kann also mit Hilfe der Hohlleiter und der Quecksilberdichte die Phasenanpassung einstellen.

Gerade für den Fall der Hohlleiter ist es auch interessant, anstelle des phasenangepassten Vierwellenmischprozess auf eine konventionelle Phasenanpassung gänzlich zu verzichten. Daraus resultiert, dass nach der Dephasierungslänge die entstehende Leistung im Vierwellenmischprozess destruktiv mit der bereits entstandenen Leistung interferiert. Lässt sich aber der Vierwellenmischprozess periodisch mit der Periodizität der Dephasierungslänge an- bzw. abschalten, spricht man von Quasi-Phasenanpassung. Dann findet nur an den Stellen der Vierwellenmischprozess statt, an denen die Summenfrequenz konstruktiv miteinander interferieren kann. Das definierte An-/Abschalten könnte im Falle von Vierwellenmischen in Quecksilber durch die Zweiphotonenresonanz gesteuert werden. Durch ein Anlegen von Magnetfeldern in moderaten Größen von 1 T kann die Zweiphotonenresonanz in der Größenordnung von wenigen GHz verschoben werden [MK07]. Die Breite der Zweiphotonenresonanz liegt ebenfalls bei wenigen GHz. Man kann also durch eine Verschiebung der Zweiphotonenresonanz kontrolliert den Vierwellenmischprozess stoppen. Durch eine räumliche Periodizität des Magnetfeldes könnte man also definiert den Vierwellenmischprozess durch das Ausnutzen der Zweiphotonenresonanz an- und ausschalten und damit den Vierwellenmischprozess quasi-phasen anpassen. Daraus resultiert wieder die Freiheit, die Dichte des Quecksilbers unabhängig von der Phasenanpassung einzustellen. Da die Dichte des Quecksilbers quadratisch in die Vierwellenmischleistung eingeht, könnte durch Vierwellenmischen bei zehnfach höherer Dichte eine 100-fach höhere Leistung erzielt werden. Die tatsächliche Steigerung wäre jedoch deutlich niedriger, da durch die Periodizität der Überlappungsbereiche nur halb so groß ist und die Steigerung stark von der Struktur der Periodizität abhängt.

Auch der Prozess der elektromagnetisch induzierten Transparenz wie er in Kapitel

2.2.5 besprochen wurde, könnte in einer Hohlaser effektiv genutzt werden. In [Hen05] wurde argumentiert, dass die Verweildauer der Quecksilberatome im Fokus der Fundamentalstrahlen zu kurz wäre um EIT im Atom aufzubauen. Durch den Einschluss in einer Hohlaser kann perfekter Überlapp der Strahlen erreicht und die Verweildauer der Quecksilberatome deutlich verlängert werden. Damit könnte die Effizienz des Vierwellenmischprozess durch die elektromagnetisch induzierte Transparenz gesteigert werden.

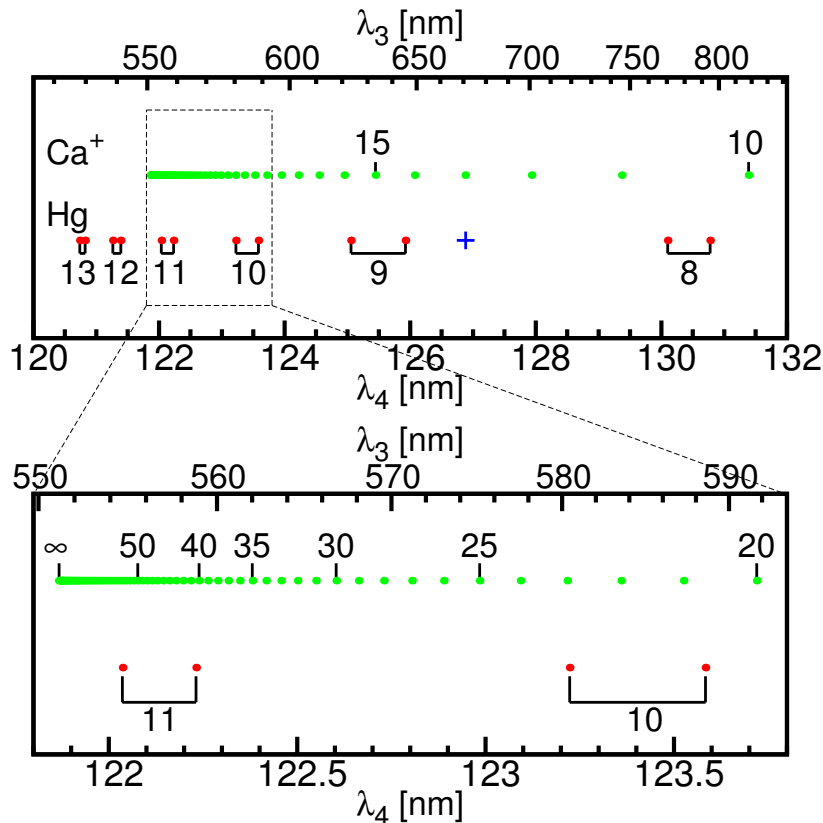


Abbildung 6.1: Lage der Energieniveaus von Hg und Ca^+ . Die $3^2D_{5/2}-n^1P$ Anregungswellenlängen von Ca^+ Ionen (grün) und die Quecksilberresonanzen (rot) sind gegenüber der Wellenlänge der Summenfrequenz λ_4 (120 bis 132 nm) und der zum Vierwellenmischen benötigten Wellenlänge des dritten Lasers λ_3 dargestellt. Die Hauptquantenzahlen sind zur Orientierung teilweise angegeben. Das $(^2D_{5/2})6p^1P$ Niveau in Quecksilber ist mit einem blauen Kreuz markiert. Die Ionisationsgrenze von Ca^+ liegt bei 121,867 nm. Der untere Graph stellt einen Ausschnitt (121,8 bis 123,8 nm) aus dem oberen Bild dar.

Neben der Kühlung von Antiwasserstoff ist eine VUV Laserquelle auch für die Anregung von Rydbergionen erforderlich. Wir wollen nun kurz einen Ausblick auf die Rydberganregung von Calciumionen, wie sie in der Einleitung bereits angesprochen wurde, werfen. Durch die geringen Übergangsmatrixelemente, verursacht durch ein kleines Überlappintegral zwischen dem $D_{5/2}$ Zuständen und den nP Rydbergzuständen, sind hohe Lasersintensitäten wünschenswert. Gerade dabei wäre das Ausnutzen einer dreifachen Einphotonresonanz enorm hilfreich. Letzteres ist an das Termschema von Quecksilber

gebunden. In Abbildung 6.1 ist in rot die Lage der Hg Energieniveaus in dem relevanten Bereich zur Ca^+ Anregung gezeigt. Die Hauptquantenzahl der Triplet und Singulett P -Zustände ist angegeben, dabei liegen die Singulettzustände energetisch höher als die Tripletzustände, also bei niedrigeren Wellenlängen. Zusätzlich ist die benötigte Wellenlänge für die dritte Fundamentale bei zweiphotonresonantem Vierwellenmischen angegeben. Man erkennt, dass ein sehr großer Wellenlängenbereich von der dritten Fundamentalen abgedeckt werden muss um den relevanten Bereich von 10 nm im VUV zu erschließen. In Abbildung 6.1 sind ebenso die $3^2D_{5/2}-n^1P$ Anregungswellenlängen von Ca^+ Ionen in grün eingezeichnet. Die Energieniveaus wurden dafür mit Hilfe der Quantendefekttheorie berechnet [Dje91]. Interessant sind nun Rydberganregungen, die mit Quecksilberniveaus zusammenfallen, da hier durch die dreifach Einphotonresonanz erhöhte VUV Leistungen zur Verfügung stehen. Fängt man mit niedrigen Rydbergzuständen an, würde dieses Kriterium gut für das $13P$ Niveau zutreffen. Hierfür wäre eine Wellenlänge von 670 nm nötig. Zwar gibt es in diesem Wellenlängenbereich Laserdioden, jedoch nur mit sehr geringer Leistung und noch keine Trapezverstärker. Durch die Verdopplung eines Nd:GdVO₄ konnten bei 670 nm bereits Laserleistung von 2,4 W erreicht werden [AGR⁺04]. Zu höheren Rydberniveaus gehend, ist der $23P$ Zustand in Ca^+ der nächste interessante bei einer Wellenlänge von 580 nm. Hier sind leider bisher nur wenige Laserquellen aufgebaut worden. Einfach ist jedoch der Bereich in der Nähe der $11P$ Resonanz in Quecksilber. Hier sind wir in einem Wellenlängenbereich, der durch Frequenzverdopplung eines in einer Yb-dotierten Faser verstärkten Lasers zu erschließen ist. Solch ein Faserlaserverstärkersystem ist verfügbar und könnte mit einem alternativen Laseroszillator schnell umgerüstet werden.

Es sollte erwähnt werden, dass Vierwellenmischen in dem kompletten Bereich zur Rydberganregung von Ca^+ genutzt werden kann. Auch wenn keine dreifach Einphotonresonanz genutzt wird, erzielt man in einem weiten Wellenlängenbereich höhere Effizienzen als bei der Lyman- α Wellenlänge. In Abbildung 6.2 ist die Effizienz, wie sie sich mit der Rechnung zur dreifach Einphotonresonanz ergibt, in dem kompletten relevanten Bereich gezeigt. Dabei wurde mit einer UV Verstimmung von 120 GHz und einer Temperatur von 148°C gerechnet. Die Absorption wurde vernachlässigt. Es zeigt sich, dass die Effizienz des Vierwellenmischens bei vielen Wellenlängen zur Rydberganregung der Ca^+ Ionen deutlich effizienter ist als bei der Lyman- α Wellenlänge (121,56 nm). Demnach hat man mit dem aufgebauten Lasersystem einen sehr guten Zugang zu den verschiedenen Rydbergniveaus von Ca^+ Ionen.

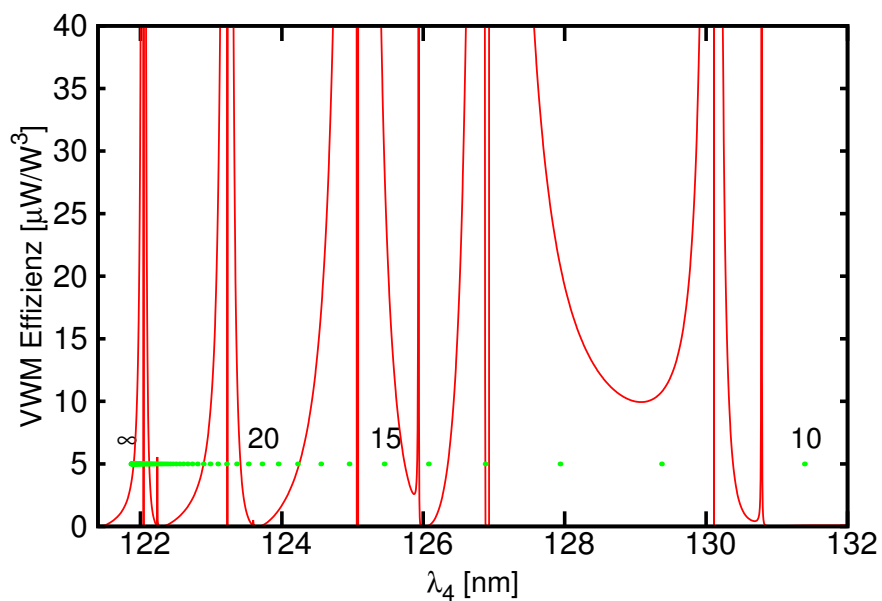


Abbildung 6.2: Berechnete Effizienz des Vierwellenmischens in Quecksilber im relevanten Bereich für Rydberganregung. In rot ist die Effizienz des Vierwellenmischprozess gegenüber der Wellenlänge dargestellt. In grün die Lage der Rydberganregungen von Ca^+ Ionen. Berechnet bei einer Quecksilbertemperatur von 148°C und einer UV Verstimmung von 120 GHz.

A. Zusammenstellung der benötigten Quecksilberdaten

Um die im Kapitel 2 vorgestellten Berechnungen durchführen zu können, werden viele Daten von Quecksilber benötigt, die im Folgenden zusammengestellt sind.

Übergangsfrequenzen und Oszillatorstärken

Zur Berechnung der Phasenfehlpassung Δk aus Kapitel 2.2.4 werden die Übergangsfrequenzen der vom Grundzustand aus erreichbaren Zustände und die entsprechenden Oszillatorstärken benötigt. Sie werden in der Tabelle A.1 zusammengestellt. Die Werte für die Lage der Energieniveaus wurden [Moo71] entnommen. Es handelt sich hierbei um die Schwerpunkte der Energieniveaus, die durch Isotopieverschiebung und die Hyperfeinstruktur aufgespalten sind. Die Oszillatorenstärken bis $n = 13$ wurden von Smith und Alford [AS87, SA86] gemessen. Dort wurde auch festgestellt, dass das Kontinuum durch das $(^2D_{3/2})6p'1P$ Niveau dominiert wird und es daher ausreicht dieses mit einzurechnen, um das Kontinuum zu berücksichtigen. Zur Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ aus Kapitel 2.2.3 und 2.2.5 werden zusätzlich die Oszillatorstärken der vom 7^1S Zustand aus erreichbaren Zustände benötigt. Diese werden ebenfalls in Tabelle A.1 angegeben. Außerdem ist das relative Vorzeichen des Produkts der Matrixelemente, wie sie in Gleichung 2.38 vorkommen, angegeben.

Tabelle A.1: Energieniveaus, Oszillatorstärken und relative Vorzeichen der Dipolmatrixelementprodukte von Quecksilber. Die Lage der Energieniveaus ist in Kreisfrequenzen vom 6^1S Grundzustand aus gegeben.

Zustand	Kreisfrequenz ω [THz]	$f_{6^1S-n^{2S+1}P}$	$f_{7^1S-n^{2S+1}P}$	Vorzeichen
6^1S	0			
6^3P	7423,8705	0,024	0,0022	–
6^1P	10184,6744	1,15	0,15	–
7^1P	12041,8535			
7^3P	13121,873	$< 10^{-5}$	0,11	+
7^1P	13429,522	0,020	1,24	+
8^3P	14403,7311	0,0014	$1,2 \times 10^{-4}$	+
8^1P	14478,3608	0,010	0,029	–
$(^2D_{5/2})6p'^1P$	14845,6	0,15	0,018	+
9^3P	14958,5942	0,0055	$5,0 \times 10^{-5}$	–
9^1P	15062,45	0,070	0,029	+
10^3P	15241,8842	0,0018	$2,6 \times 10^{-7}$	+
10^1P	15286,5132	0,0155	0,0097	+
11^3P	15410,5068	0,0011	$1,6 \times 10^{-6}$	+
11^1P	15435,1013	0,0050	0,0050	+
12^3P	15517,33	0,0008	$7,5 \times 10^{-6}$	+
12^1P	15533,354	0,0023	0,0025	+
13^3P	15590,21	0,0005	$1,7 \times 10^{-5}$	+
13^1P	15601,144	0,0011	0,0015	+
$(^2D_{3/2})6p'^1P$	16719,3	0,53	0,061	+

Hyperfeinstruktur- und Isotopieverschiebungen der 6^1S-6^3P Resonanz

Zur Berechnung der Zweiphotonenresonanz im Vierwellenmischen nach Gleichung 2.42 und für die Zweiphotonenrechnung aus Kapitel 2.1 wird die Häufigkeit der Quecksilberisotope und die Isotopieaufspaltung des 6^1S-7^1S Zweiphotonenübergangs benötigt. Diese Daten werden in Tabelle A.2 gegeben. Die Häufigkeit der Quecksilberisotope wurde [ZSB89] entnommen. Quecksilber natürlichen Isotopengemischs enthält sieben stabile Isotope. Das ^{196}Hg Isotop ist mit 0,15 % so selten, dass es in den Rechnungen vernachlässigt wurde. Die Aufspaltung des 6^1S-7^1S Zwei-Photonen-Übergangs wurde [GV75, GLV77] entnommen.

Bei immer kleineren UV-Verstimmungen zur 6^1S-6^3P Resonanz wird die Isotopie- und Hyperfeinstrukturaufspaltung dieses Übergangs wichtiger. Dazu werden in Tabelle A.2 die benötigten Werte gegeben. Die Werte der Isotopieverschiebungen und die der Hyperfeinaufspaltung des 6^1S-6^3P Übergangs stammen aus [Sch63]. Um die Hyperfeinkomponenten richtig mit einzurechnen, muss der Berechnung der partiellen Suszeptibilität χ_{12} nach Gleichung 2.38 das Produkt der Matrixelemente mit dem Gewichtungsfaktor G gewichtet werden. Dieser Faktor gibt, an wie stark die Entartung der Hyperfeinkomponente zur Entartung des gesamten 6^3P Niveaus ist. Die Entartung der Hyperfeinkomponenten wird in der Tabelle angegeben. In der Berechnung der linearen Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ müssen die Oszillatorstärken der Hyperfeinkomponenten ebenfalls mit diesem Gewichtungsfaktor multipliziert werden, wenn die Isotopie- und Hyperfeinstrukturaufspaltung mit eingerechnet werden soll.

Tabelle A.2: Hyperfeinstruktur- und Isotopieverschiebungen des 7^1S Niveaus und des 6^3P Niveaus sowie Häufigkeit der Quecksilberisotope. Bei den ungeraden Isotopen werden die Hyperfeinkomponenten (HFK) des 6^3P Niveaus, die sich im Gesamtdrehimpuls F unterscheiden, angegeben. Der Entartungsfaktor $G = 2F + 1$ gibt die Entartung der Hyperfeinkomponente an.

Isotop	Häufigkeit [%]	$\Delta_{6^1S-7^1S}$ [GHz]	HFK	G	$\Delta_{6^1S-6^3P}$ [GHz]
^{198}Hg	9,968	8,314			10,1
^{199}Hg	16,873	7,791	$F = 1/2$	2	-5,307
			$F = 3/2$	4	16,829
^{200}Hg	23,096	4,362			5,3
^{201}Hg	13,181	3,045	$F = 1/2$	2	16,974
			$F = 3/2$	4	9,426
			$F = 5/2$	6	-4,557
^{202}Hg	29,863	0			0
^{204}Hg	6,865	-4,297			-5,21

Temperaturabhängigkeit der Quecksilberdampfdichte

Um aus der berechneten Teilchenzahldichte bei Phasenanpassung, die Phasenanpassungstemperatur zu bekommen, wird der Zusammenhang von Teilchenzahldichte und Temperatur in Quecksilber benötigt. Eine Tabelle des Dampfdrucks von Quecksilber in Abhängigkeit von der Temperatur findet sich in [WAW97] und ist hier in Tabelle A.3 wiedergegeben. Um bei beliebigen Temperaturen die Teilchenzahldichte berechnen zu können, wurde in den Mathematica Programmen, die im nächsten Abschnitt gezeigt werden, der Verlauf der Werte interpoliert. Mit der idealen Gasgleichung kann aus dem nun bekannten Druck die Teilchenzahldichte berechnet werden:

$$N = \frac{100p[\text{mbar}]}{k_B T} \quad (\text{A.1})$$

Der Faktor 100 dient zur Umrechnung von mbar in Pascal.

Tabelle A.3: Dampfdruck von Quecksilber in Abhängigkeit von der Temperatur.

T [°C]	p [mbar]	T [°C]	p [mbar]
-40	$2,39 \times 10^{-6}$	140	2,43
-38,87	$2,77 \times 10^{-6}$	160	5,50
-30	$8,94 \times 10^{-6}$	180	$1,16 \times 10^1$
-20	$2,93 \times 10^{-5}$	200	$2,28 \times 10^1$
-10	$8,98 \times 10^{-5}$	220	$4,16 \times 10^1$
0	$2,53 \times 10^{-4}$	240	$7,54 \times 10^1$
10	$6,63 \times 10^{-4}$	260	$1,28 \times 10^2$
20	$1,63 \times 10^{-3}$	280	$2,09 \times 10^2$
40	$8,16 \times 10^{-3}$	300	$3,29 \times 10^2$
60	$3,37 \times 10^{-2}$	320	$5,02 \times 10^2$
80	$1,18 \times 10^{-1}$	340	$7,44 \times 10^2$
100	$3,62 \times 10^{-1}$	350	$8,96 \times 10^2$
120	$9,84 \times 10^{-1}$	356,58	$1,01325 \times 10^3$

B. Optische Blochgleichungen für ein Vierniveausystem

Im Folgenden sollen die optischen Blochgleichungen für ein Vierniveausystem der Vollständigkeit halber angegeben werden. Die Berechnung folgt ganz analog zu der Dreineiveaurechnung durch Erweiterung zu einem Vierniveausystem. Die verwendete Notation wird in Abbildung 2.9 verdeutlicht. Auch hier wurden schnell oszillierende Terme durch die RWA vernachlässigt und nur nahverstimmte Übergänge betrachtet. Dann folgt für die OBE:

$$\overline{\dot{\rho}_{aa}} = i\frac{\alpha}{4}(\rho_{ba} - \rho_{ab}) \quad (\text{B.1})$$

$$\overline{\dot{\rho}_{bb}} = i\frac{\beta}{4}(\rho_{cb} - \rho_{bc}) + i\frac{\alpha}{4}(\rho_{ab} - \rho_{ba}) \quad (\text{B.2})$$

$$\overline{\dot{\rho}_{cc}} = i\frac{\gamma}{4}(\rho_{dc} - \rho_{cd}) + i\frac{\beta}{4}(\rho_{bc} - \rho_{cb}) \quad (\text{B.3})$$

$$\overline{\dot{\rho}_{dd}} = i\frac{\gamma}{4}(\rho_{cd} - \rho_{dc}) \quad (\text{B.4})$$

$$\overline{\dot{\rho}_{ab}} = -i\delta_{ab}\rho_{ab} + i\frac{\alpha}{4}(\rho_{bb} - \rho_{aa}) - i\frac{\beta}{4}\rho_{ac} \quad (\text{B.5})$$

$$\overline{\dot{\rho}_{ac}} = -i(\delta_{ab} + \delta_{bc})\rho_{ac} + i\frac{\alpha}{4}\rho_{bc} - i\frac{\gamma}{4}\rho_{ad} - i\beta\rho_{ab} \quad (\text{B.6})$$

$$\overline{\dot{\rho}_{ad}} = -i(\delta_{ab} + \delta_{bc} + \delta_{cd})\rho_{ad} + i\frac{\alpha}{4}\rho_{bd} - i\frac{\gamma}{4}\rho_{ac} \quad (\text{B.7})$$

$$\overline{\dot{\rho}_{bc}} = -i\delta_{bc}\rho_{bc} + i\frac{\beta}{4}(\rho_{cc} - \rho_{bb}) + i\frac{\alpha}{4}\rho_{ac} - i\frac{\gamma}{4}\rho_{bd} \quad (\text{B.8})$$

$$\overline{\dot{\rho}_{bd}} = -i(\delta_{bc} + \delta_{cd})\rho_{bd} + i\frac{\beta}{4}\rho_{cd} + i\frac{\alpha}{4}\rho_{ad} - i\frac{\gamma}{4}\rho_{bc} \quad (\text{B.9})$$

$$\overline{\dot{\rho}_{cd}} = -i\delta_{cd}\rho_{cd} + i\frac{\gamma}{4}(\rho_{dd} - \rho_{cc}) + i\frac{\beta}{4}\rho_{bd} \quad (\text{B.10})$$

In den gegebenen Gleichungen sind noch keine Dämpfungsterme enthalten, dies soll mit den Querbalken verdeutlicht werden. Diese ergeben sich nicht aus dem Dichtematrixformalismus. Sie müssen phänomenologisch in die Gleichungen eingeführt werden. dabei werden den Diagonalelementen der Dichtematrix, die Besetzungen der Niveaus darstellen, gemäß der Relaxation der Besetzungen hinzugefügt:

$$\dot{\rho}_{aa} = \overline{\dot{\rho}_{aa}} + \Gamma_{ba}\rho_{bb} \quad (\text{B.11})$$

$$\dot{\rho}_{bb} = \overline{\dot{\rho}_{bb}} - \Gamma_{ba}\rho_{bb} + \Gamma_{cb}\rho_{cc} \quad (\text{B.12})$$

$$\dot{\rho}_{cc} = \overline{\dot{\rho}_{cc}} - \Gamma_{cb}\rho_{cc} + \Gamma_{dc}\rho_{dd} \quad (\text{B.13})$$

$$\dot{\rho}_{dd} = \overline{\dot{\rho}_{dd}} - \Gamma_{dc}\rho_{dd} \quad (\text{B.14})$$

Darüberhinaus können so weitere homogene Dämpfungsprozesse, wie z.B. Druckverbreiterung, hinzugefügt werden. Bei den Kohärenztermen, den Nebendiagonalelementen, wird angenommen, dass sie gemäß der Summe aller beteiligten Niveaus dephasieren [Boy08]. Hier können dann auch nicht besetzungändernde jedoch dephasierende Stoßverbreiterungen getrennt hinzugefügt werden.

C. Mathematica Programme

Mathematica-Programm 1:

Berechnung der nichtlinearen Suzeptibilität und der Leistung bei der Summenfrequenz aus Kapitel 2.2.3. ΔUV die Verstimmung des UV Lasers zur 6^3P Resonanz in GHz. ΔVUV ist die Verstimmung zu der Lyman- α Frequenz oder für die Berechnungen in Kapitel 4.2.5 zur 12^1P Resonanz in GHz. $I_4[\Delta VUV, \Delta UV]$ ist die Leistung bei der Summenfrequenz berechnet nach Gleichung 2.35 bei optimaler Phasenanpassungstemperatur. Dafür ist die Dichte von Quecksilber abhängig von der VUV Verstimmung. In Kapitel 4.2.5 wurde festgestellt, dass es bedingt durch Absorption effizienter ist die Phasenanpassung nicht mit der VUV Verstimmung zu ändern. Für diesen Fall ist $I_4 T_{const}[\Delta VUV, \Delta UV]$, hier wird die Leistung bei der Phasenanpassungstemperatur wie sie gemäß der UV Verstimmung bei der Lyman- α Wellenlänge vorhanden ist, berechnet. Die Abhängigkeit der Phasenanpassungstemperatur von der UV Verstimmung wird aus einer Liste mit Messwerten interpoliert. Da das Programm für die Berechnung zur Leistung die Phasenanpassung $F_{sqr}[\Delta VUV, \Delta UV]$, Phasenfehlpassung $dk[\Delta VUV, \Delta UV]$ und die nichtlineare Suszeptibilität $\chi[\Delta VUV, \Delta UV]$ benötigt, können all diese Größen auch mit diesem Programm berechnet werden. Das Programm ist so wie es hier steht kompilierbar, kann also direkt in ein Mathematicanotebook kopiert und ausgeführt werden.

```
Remove["Global*"]
(*Allgemeine Konstanten*)
c = 2.99792458*10^8; (* Lichtgeschwindigkeit *)
m = 202*1.66*10^(-27); (* Masse Quecksilber *)
me = 9.109*10^-31; (*Masse Elektron*)
k = 1.38*10^(-23); (* Boltzmannkonstante *)
Ry = 2 Pi*3.289841960*10^15; (* Rydbergkonstante in Kreisfrequenz *)
e = 1.602*10^-19; (*Elektron Ladung*)
a0 = 5.292*10^-11; (*Bohrradius*)
hquer = 1.054*10^-34; (*Planck Konstante*)
h = 6.6261*10^(-34); (* Planck-Konstante *)
eps0 = 8.854187817*10^-12; (*Vakuum Permittivität*)
Faktor1 = 1; (*schaltet die höheren Niveaus an (1) und aus (0)*)
Faktor2 = 1; (*schaltet die Isotopieverschiebung (1) an und aus (0)*)

(*Phasenanpassungstemperatur*)
templiste = {{50, 128}, {75, 137.2}, {100, 144}, {125, 149.4}, {150,
153.8}, {200, 161}, {250, 166.8}, {300, 171.5}, {400, 179}, {500,
185}, {600, 190}, {700, 194}, {800, 197.7}, {900, 200.9}, {1000,
203.9}, {1100, 206.6}, {1200, 208.9}, {1300, 211}, {1400,
213}, {1500, 214.8}, {1600, 216.4}, {16170, 254}};
functemp = Interpolation[templiste];

(*experimentelle Größen*)
```

```

Clear[DeltaVUV]
Clear[DeltaUV]
(*DeltaUV=400;(*GHz*)*)
(*DeltaVUV=6000.27;*)
Temp[DeltaUV_] := functemp[DeltaUV];
(*homogene Linienbreite Zwei-Photonen Resonanz in Kreisfrequenz*)
Gammahom7S = 2*Pi*1.25*10^9;
(*Übergangsfrequenz 7^1S Niveau Kreisfrequenz [s^-1] *)
omega7S = 1.2041853512225122'*^16;
(* Kreisfrequenz erster Laser ; DeltaUV gibt die Verstimmung in \
[GHz] zum 6^3P Niveau*)
omega1[DeltaUV_] := 7.423870537626774'*^15 - 2 Pi*DeltaUV*10^9;
(* Kreisfrequenz zweiter Laser *)
omega2[DeltaUV_] := omega7S - omega1[DeltaUV];
(* Kreisfrequenz Erzeugte DeltaVUV gibt Verstimmung an zu ...*)
(*12^1P*)omega4[DeltaVUV_] :=
1.5533353702913564'*^16 - 2 Pi*DeltaVUV*10^9;
(* oder *)
(*lymanalpha*)
omega4[DeltaVUV_] := 1.5495652906456506'*^16 - 2 Pi*DeltaVUV*10^9;
(* Kreisfrequenz dritter Laser *)
omega3[DeltaVUV_] := omega4[DeltaVUV] - omega7S;

b = 0.8*10^-3; (* mittlerer konfokaler Parameter in [m]*)
L = 15*10^-3; (* Länge Zelle in [m] *)
dk = -4/b ;(*ideale Phasenfehlpassung*)
I1 = 1; (*Leistung erster Laser in W *)
I2 = 1; (*Leistung zweiter Laser in W *)
I3 = 1; (*Leistung dritter Laser in W *)

(* Quecksilber Konstanten*)
(*Verschiebung der 6^1S-6^3P Resonanz von ^198Hg zum ^202Hg*)
Delta6S6P198 = Faktor2*2 Pi*10.1*10^9;
Delta6S6P199F1 = Faktor2*2 Pi*(-5.307)*10^9;(*"*)
Delta6S6P199F3 = Faktor2*2 Pi*16.829*10^9;(*"*)
Delta6S6P200 = Faktor2*2 Pi*5.3*10^9;(*"*)
Delta6S6P201F1 = Faktor2*2 Pi*16.974*10^9;(*"*)
Delta6S6P201F3 = Faktor2*2 Pi*9.426*10^9;(*"*)
Delta6S6P201F5 = Faktor2*2 Pi*(-4.557)*10^9;(*"*)
Delta6S6P202 = 0;(*"*)
Delta6S6P204 = Faktor2*2 Pi*(-5.21)*10^9;(*"*)

(*Gewichtungsfaktoren: für die 6^1S-6^3P Resonanz der ungeraden \
Isotope*)
G6SnP = {1, 1/3, 2/3, 1, 1/6, 2/6, 3/6, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1};

(*Gewichtungsfaktoren mal die Häufigkeit für die 6^1S-6^3P Resonanz \
der Isotope, um in der Phasenpassung die Aufspaltung der 6^1S-6^3P \
Resonanz berücksichtigen zu können *)
H6SnP = {0.09968, 0.16873*1/3, 0.16873*2/3, 0.23096, 0.13181*1/6,
0.13181*2/6, 0.13181*3/6, 0.29863, 0.06865, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1};

(*Oszillatorstärken*)
osc6SnP = {0.024, 0.024, 0.024, 0.024, 0.024, 0.024, 0.024, 0.024,
0.024, 1.15, 0.00001, 0.02, 0.0014, 0.01, 0.15, 0.0055, 0.07,
0.0018, 0.0155, 0.0011, 0.005, 0.0008, 0.0023,
0.0005, 0.0011, 0.53};

osc7SnP = { 3*0.0022, 3*0.0022, 3*0.0022, 3*0.0022, 3*0.0022,
3*0.0022, 3*0.0022, 3*0.0022, 3*0.0022, 3*0.15, 0.11, 1.24,

```

```

1.2*10^-4, 0.029, 0.018, 5*10^-5, 0.029, 2.6*10^-7, 0.0097,
1.6*10^-6, 0.005, 7.5*10^-6, 0.0025, 1.7*10^-5, 0.0015, 0.061};

(*rel. Vorzeichen des Produkts der Matrixelemente*)
sign7SnP = {-1, -1, -1, -1, -1, -1, -1, -1, -1, -1, 1, 1, 1, -1,
1, -1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1};

(*Energieniveaus in Kreisfrequenzen omega [Hz], die ersten 9 Niveaus \
sind die aufgespaltenen 6^3P Niveaus*)
levels = {7.423870537626774'*^15 + Delta6S6P198,
7.423870537626774'*^15 + Delta6S6P199F1,
7.423870537626774'*^15 + Delta6S6P199F3,
7.423870537626774'*^15 + Delta6S6P200,
7.423870537626774'*^15 + Delta6S6P201F1,
7.423870537626774'*^15 + Delta6S6P201F3,
7.423870537626774'*^15 + Delta6S6P201F5,
7.423870537626774'*^15 + Delta6S6P202,
7.423870537626774'*^15 + Delta6S6P204, 1.0184674407312916'*^16,
1.3121872828019692'*^16, 1.3429522103901976'*^16,
1.4403731060206108'*^16, 1.4478360770207414'*^16,
1.4845623097431264'*^16, 1.495859415835483'*^16,
1.5062450229344186'*^16, 1.5241884240533836'*^16,
1.5286513220387768'*^16, 1.5410506845187756'*^16,
1.5435101306971796'*^16, 1.5517333246333602'*^16,
1.5533353702913564'*^16, 1.5590211725472782'*^16,
1.5601144439169442'*^16, 1.6719291311433382'*^16};

(* Suszeptibilitäten *)
(* Dipolmatrixelemente berechnet nach Reintjes84 *)
dipol6SnP = e*a0*Sqrt[osc6SnP/levels*Ry];
dipol7SnP = e*a0*Sqrt[osc7SnP/(Abs[omega7S - levels])*Ry]*sign7SnP;

(*partiellen Suszeptibilitäten einzeln für jedes Isotop berechnen*)
chi12Hg198 [DeltaUV_] :=
Sum[(dipol6SnP[[i]]*dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega1[DeltaUV])
+ Faktor1* dipol6SnP[[i]]*
dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega2[DeltaUV])),
{i, 1, 1}] +
Faktor1*(
Sum[(dipol6SnP[[i]]*
dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega1[DeltaUV])
+
dipol6SnP[[i]]*
dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega2[DeltaUV])),
{i, 10, 26}]);
chi12Hg199 [DeltaUV_] :=
Sum[(G6SnP[[i]]*dipol6SnP[[i]]*
dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega1[DeltaUV])
+ Faktor1*G6SnP[[i]]*dipol6SnP[[i]]*
dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega2[DeltaUV])),
{i, 2, 3}] +
Faktor1*(Sum[(dipol6SnP[[i]]*
dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega1[DeltaUV])
+
dipol6SnP[[i]]*
dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega2[DeltaUV])),
{i, 10, 26}]);
chi12Hg200 [DeltaUV_] :=
Sum[(dipol6SnP[[i]]*dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega1[DeltaUV])
+ Faktor1* dipol6SnP[[i]]*
dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega2[DeltaUV])),
{i, 4, 4}] +

```

```

Faktor1*(Sum[dipol6SnP[[i]]*
  dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega1[DeltaUV])
+
  dipol6SnP[[i]]*
  dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega2[DeltaUV])),
{i, 10, 26});
chi12Hg201[DeltaUV_] :=
Sum[(G6SnP[[i]]*dipol6SnP[[i]]*
  dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega1[DeltaUV])
+ Faktor1* G6SnP[[i]]*dipol6SnP[[i]]*
  dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega2[DeltaUV])),
{i, 5, 7}] +
Faktor1*(Sum[dipol6SnP[[i]]*
  dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega1[DeltaUV])
+
  dipol6SnP[[i]]*
  dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega2[DeltaUV])),
{i, 10, 26});
chi12Hg202[DeltaUV_] :=
Sum[(dipol6SnP[[i]]*dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega1[DeltaUV])
+ Faktor1* dipol6SnP[[i]]*
  dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega2[DeltaUV])),
{i, 8, 8}] +
Faktor1*(
Sum[(dipol6SnP[[i]]*
  dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega1[DeltaUV])
+
  dipol6SnP[[i]]*
  dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega2[DeltaUV])),
{i, 10, 26});
chi12Hg204[DeltaUV_] :=
Sum[(dipol6SnP[[i]]*dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega1[DeltaUV])
+ Faktor1* dipol6SnP[[i]]*
  dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega2[DeltaUV])),
{i, 9, 9}] +
Faktor1*(
Sum[(dipol6SnP[[i]]*
  dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega1[DeltaUV])
+
  dipol6SnP[[i]]*
  dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega2[DeltaUV])),
{i, 10, 26});
chi34[DeltaVUV_] :=
Sum[(dipol6SnP[[i]]*dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega4[DeltaVUV])
+ dipol6SnP[[i]]*dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] +
  (omega4[DeltaVUV] - omega7S))), {i, 8, 8}] +
Sum[(dipol6SnP[[i]]*
  dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega4[DeltaVUV])
+ dipol6SnP[[i]]*dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] +
  (omega4[DeltaVUV] - omega7S))), {i, 10, 26});

(* Zweiphotonenresonanz*)
Temp2gamma = 160;
(*wahrscheinlichste Geschwindigkeit, hier korrekte \
Phasenangepassungstemperatur eingeben*)
vw = Sqrt[2*k*(273.15 + Temp2gamma)/m];
(*Dopplerbreite*)
Deltaomega = 2*Sqrt[Log[2]]*omega7S*vw/c;
omega = Deltaomega/(2*Sqrt[Log[2]]);

(*Plasmadispersionsfunktion*)
Z[x_] := I*Sqrt[Pi] Exp[-x^2] (1 + Erf[x*I]);

```

(*Zweiphotonenresonanz*)

S[x_] := 1/omega*Z[x];

(*Isotopenverschiebung der Zwei-Photonen-Resonanz*)

x200[y_] := (y - 2 *Pi**4.362*10⁻⁹ + *I**Gammahom7S/2)/omega;

x202[y_] := (y + *I**Gammahom7S/2)/omega;

x201[y_] := (y - 2 *Pi**3.045*10⁻⁹ + *I**Gammahom7S/2)/omega;

x204[y_] := (y + 2 *Pi**4.297*10⁻⁹ + *I**Gammahom7S/2)/omega;

x199[y_] := (y - 2 *Pi**7.791*10⁻⁹ + *I**Gammahom7S/2)/omega;

x198[y_] := (y - 2 *Pi**8.314*10⁻⁹ + *I**Gammahom7S/2)/omega;

(*in etwa das Maximum der Zwei-Photonen-Resonanz*)

y = -omega7S*vw/1000000000;

(* Gesamt Suszeptibilität 3. Ordnung*)

chi[DeltaVUV_, DeltaUV_] :=

1/eps0/(6*hquer³) (chi34[
DeltaVUV] (0.09968 S[x198[y]]*chi12Hg198[DeltaUV] +
0.16873 S[x199[y]] chi12Hg199[DeltaUV] +
0.23096 S[x200[y]] chi12Hg200[DeltaUV] +
0.13181 S[x201[y]] chi12Hg201[DeltaUV] +
0.29863 S[x202[y]] chi12Hg202[DeltaUV] +
0.06865 S[x204[y]] chi12Hg204[DeltaUV]);

(* Phasen Anpassung*)

Brechlevel =

Sum[H6SnP[[i]]*osc6SnP[[i]]/(levels[[i]]*levels[[i]] - w*w),
{i, 1, 26}];

faktor = e²/(2*eps0*me);

Brech = faktor*Brechlevel; (* Brech = n - 1*)

Kprime[w_] = Brech*w/c;

Deltakp[w_] = (Kprime[w] + *Sign*[omega7S - w]*
Kprime[Abs[omega7S - w]]);

(*Dichte so einstellen, dass Phasen Anpassung erreicht wird*)

Dichte[DeltaVUV_, DeltaUV_] :=

dk/(Deltakp[omega4[DeltaVUV] - Deltakp[omega1[DeltaUV]]);

dka[DeltaVUV_,

DeltaUV_] := (Deltakp[omega4[DeltaVUV] -
Deltakp[omega1[DeltaUV]]);

(* Druck in mbar in Abhängigkeit von der Temperatur in °C *)

pliste = {{-40, 2.39*10⁻⁶}, {-38.87, 2.77*10⁻⁶},
{-30, 8.94*10⁻⁶}, {-20, 2.93*10⁻⁵}, {-10, 8.98*10⁻⁵},
{0, 2.53*10⁻⁴}, {10, 6.63*10⁻⁴}, {20, 1.63*10⁻³},
{40, 8.16*10⁻³}, {60, 3.37*10⁻²}, {80, 1.18*10⁻¹}, {100,
3.62*10⁻¹}, {120, 9.84*10⁻¹}, {140, 2.43}, {160, 5.5}, {180,
1.16*10}, {200, 2.28*10}, {220, 41.6}, {240, 75.4}, {260,
1.28*10²}, {280, 2.09*10²}, {300, 3.29*10²}, {320, 5.02*10²},
{340, 7.44*10²}, {350, 8.96*10²}};

(* Interpolation der obigen Liste *)

pvonT = *Interpolation*[pliste] ;

(* Hg-Dichte in m⁻³ in Abhängigkeit von der Temperatur in °C *)

NHg[T_] := pvonT[T]*100/(k*(T + 273.15)) ;

Dichtec[DeltaUV_] := NHg[Temp[DeltaUV]]

(* Phasen Anpassungs Integral*)

Fsqr = *If*[dk < 0, *Pi*²*(b*dk)²**Exp*[b*dk], 0];

FsqrTconst[DeltaVUV_, DeltaUV_] :=

If[Dichtec[DeltaUV]*dka[DeltaVUV, DeltaUV] < 0,

```

Pi^2*(b*Dichtec[DeltaUV]*dka[DeltaVUV, DeltaUV])^2*
Exp[b*Dichtec[DeltaUV]*dka[DeltaVUV, DeltaUV]], 0];

(* Lyman-alpha Leistung*)
(*mit veränderlicher Dichte*)
I4[DeltaVUV_, DeltaUV_] :=
  9/4/(c^6*Pi^2*eps0^2)*Dichte[DeltaVUV, DeltaUV]^2*omega1*omega2*
  omega3*omega4*Abs[chi]^2*I1*I2*I3*Fsqr;
(*mit konstanter Dichte*)
I4Tconst[DeltaVUV_, DeltaUV_] :=
  9/4/(c^6*Pi^2*eps0^2)*Dichtec[DeltaUV]^2*omega1[DeltaUV]*
  omega2[DeltaUV]*omega3[DeltaVUV]*omega4[DeltaVUV]*
  Abs[chi[DeltaVUV, DeltaUV]]^2*I1*I2*I3*
  FsqrTconst[DeltaVUV, DeltaUV];
(*zum Plotten gegenüber der Wellenlänge*)
DeltaVUV[lambda_] := -(121.567 - lambda)*10^-9*
  c/(121.567*lambda*10^-18)/(10^9)

```

Mathematica-Programm 2:

Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität über das Nebendiagonalelement der Dichtematrix eines Vierniveausystems aus Kapitel 2.2.5. Die partiellen Suszeptibilitäten werden für verschiedene Vierniveausysteme berechnet. Dazu werden für ein Vierniveausystem die Rabifrequenzen und Verstimmungen berechnet und dann die OBE gelöst. *Rerho14* enthält die Information zur nichtlinearen Suszeptibilität. Alle partiellen Suszeptibilitäten werden dann phasenkorrekt addiert. Für die Absorption bei der UV Wellenlänge muss *Imrho12* extrahiert werden.

```

Clear[Delta12, Delta23, Delta34]
(*Konstanten*)
c = 299792458; (*Lichtgeschwindigkeit*)
h = 6.626*10^(-34); (*Planckkonstante*)
e = 1.602*10^(-19); (*Elementarladung*)
me = 9.109*10^(-31); (*Elektronenmasse*)
epsilon0 = 8.854*10^(-12); (*Vakuumperrmittivität*)
kb = 1.3806503*10^-23; (*Boltzmannkonstante*)

(*leere Matrix zum speichern der verschiedenen partiellen \
Suszeptibilitäten*)
density14r = {{0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0}, {0,
  0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0}}, {{0, 0, 0, 0, 0, 0,
  0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0}, {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
  0, 0, 0}}, {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0}, {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0}}, {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0}, {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0}}, {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0}}, {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0}};

(*Umrechnung von /cm in Hz*)
Herz[cm_] := c*cm*100;

(*Quecksilberwerte f-values und Lage der Niveaus in /cm*)
(*Brüche bei f-values sind Entartungsfaktoren*)
(*UV Niveaus*)
n = {39412.3, 54068.781};
falpha = {-1/3 *0.024, -1/3*1.15};
(*blaue Niveaus*)
m = {62350.456, 63928.243};(*Deltas für Blau*)
fbeta = {{-0.12, 0.0051}, {-0.0022, -0.15}};
(*VUV Niveaus*)
v = {76467.067, 76863.264, 78813, 79412.745, 79964.1, 80916.686,

```

```

81153.614, 81811.876, 81942.444, 82379, 82464.05, 82765.9,
82823.94, 83039.3, 83084.0, 88760};
fgamma = {{-0.013, -1/3*1.2*10^-4}, {-3.2*10^-4, -0.029}, {-3/
3*0.0015, -1/3*0.018}, {-3/3*0.0016, -5*10^-5}, {-3/
3*0.0033, -1/3*0.029}, {-3/3*6.6*10^-4, -1/3*2.6*10^-7}, {-3/
3*0.0013, -1/3*0.0097}, {-3/3*3*10^-4, -1/3*1.6*10^-6}, {-3/
3*7.5*10^-4, -1/3*0.005}, {-3/3*2*10^-4, -1/3*7.5*10^-6}, {-3/
3*3.8*10^-4, -1/3*0.0025}, {-3/3*1.7*10^-4, -1/
3*1.7*10^-5}, {-3/3*3.1*10^-4, -1/3*0.0015}, {0, -1/
3*2*10^-5}, {0, -1/3*0.0008}, {-3/7*2.9*10^-4, -1/7*0.061}};
nLya = {-1/3*0.0014, -1/3*0.01, -1/3*0.15, -1/3*0.0055, -1/3*0.07, -1/
3*0.0018, -1/3*0.0155, -1/3*0.0011, -1/3*0.005, -1/3*0.0008, -1/
3*0.0023, -1/3*0.0005, -1/3*0.0011, -1/3*0.0003, -1/3*0.0005, -1/
3*0.53};

(*Diagonalelemente der Dichtematrix*)
rho22 = -2 alpha/Gamma21 Imrho12;
rho33 = -2 beta /Gamma32 Imrho23;
rho44 = -2 gamma/Gamma43 Imrho34;
rho11 = 1 - rho22 - rho33 - rho44;
(*Zerfallsraten*)
Gamma21 = 1/(120*10^-9);
Gamma32 = 1/(30*10^-9);
Gamma43 = 1/(120*10^-9);
Clear[Delta12, Delta23, Delta34]
(*Hier können konstante Verstimmungen gesetzt werden *)
Delta12 = -16170*10^9;
Delta23 = +16170*10^9;
(*Leistungen der Fundamentaln, alpha=UV, beta=blau, gamma=grün*)
Palpha = 0.1;
Pbeta = 0.1;
Pgamma = 0.1;
(*Größe des Fokus zur Berechnung der Rabifrequenz*)
r = 20*10^-6;
(*chi3 Offset und Faktor zur Korrektur der Vernachlässigung einiger \
Niveaus*)
chi3off = 3*10^-44;
chi3fak = 5.5;
For[i = 1, i < 3, i++,(*UV Niveaus*)
For[j = 2, j < 3, j++,(*blaue Niveaus*)
For[k = 1, k < 15, k++,(*grüne Niveaus*)
(*UV Übergang Dipolmoment, E-Feld und Rabifrequenz*)
mualpha =
Sqrt[Abs[falpha[[i]]]*(3 h e^2)/(2 2 Pi me 2*Pi Herz[n[[i]]])]];
Ealpha = Sqrt[(2*Palpha)/(epsilon0 c Pi r^2)];
alpha = mualpha*(4 Pi *Ealpha)/h;
(*blauer Übergang Dipolmoment, E-Feld und Rabifrequenz*)
mubeta =
Sqrt[Abs[fbeta[[j, i]]]*(3 g1 h e^2)/(
2 g2 2 Pi me 2*Pi Herz[m[[j]] - n[[i]]])]];
Ebeta = Sqrt[(2*Pbeta)/(epsilon0 c Pi r^2)];
beta = mubeta*(4 Pi *Ebeta)/h;
(*grüner Übergang Dipolmoment, E-Feld und Rabifrequenz*)
mugamma =
Sqrt[Abs[fgamma[[k, j]]]*(3 g1 h e^2)/(
2 g2 2 Pi me 2*Pi Herz[v[[k]] - m[[j]]])]];
Egamma = Sqrt[(2*Pgamma)/(epsilon0 c Pi r^2)];
gamma = mugamma*(4 Pi *Egamma)/h;
(*VUV Übergang Dipolmoment*)
mubc =
Sqrt[Abs[nLya[[k]]]*(3 h e^2)/(2 * 2 Pi me 2*Pi Herz[v[[k]]])]];
(*UV, blaue, grüne Verstimmung*)

```

```

delta12 = 2 Pi (Delta12 - Herz[(n[[i]] - 39412.122)]);
delta23 =
  2 Pi (Delta23 + Herz[(63928.057 - 39412.122)] -
    Herz[(m[[j]] - n[[i]])]);
delta34 =
  2 Pi (Delta34 + Herz[(82259.1 - 63928.057)] -
    Herz[(v[[k]] - m[[j]])]);
Clear[(*rho11,rho22,rho33,rho44,*)Imrho13, Rerho13, Imrho23,
  Rerho23, Imrho12, Rerho12, Imrho14, Rerho14, Imrho24, Rerho24,
  Imrho34, Rerho34];
sol = Solve[(*Lösen der optischen Blochgleichungen*)

(*Gleichungen für normalen Nebendiagonalelemente*)
(*rho12*)
0 == -I delta12 (Rerho12 + I Imrho12) +
  I alpha (rho22 - rho11) - I beta (Rerho13 + I Imrho13) -
  Gamma21/2 (Rerho12 + I Imrho12),
(*rho13*)
0 == -I (delta12 + delta23) (Rerho13 + I Imrho13) +
  I alpha (Rerho23 + I Imrho23) -
  I gamma (Rerho14 + I Imrho14) - I beta (Rerho12 + I Imrho12) -
  Gamma32/2 (Rerho13 + I Imrho13),
(*rho14*)
0 == -I (delta12 + delta23 + delta34) (Rerho14 + I Imrho14) +
  I alpha (Rerho24 + I Imrho24) -
  I gamma (Rerho13 + I Imrho13) -
  Gamma43/2 (Rerho14 + I Imrho14),
(*rho23*)
0 == -I delta23 (Rerho23 + I Imrho23) + I beta (rho33 - rho22) +
  I alpha (Rerho13 + I Imrho13) -
  I gamma (Rerho24 + I Imrho24) - (Gamma21 + Gamma32)/
  2 (Rerho23 + I Imrho23),
(*rho24*)
0 == -I (delta23 + delta34) (Rerho24 + I Imrho24) +
  I beta (Rerho34 + I Imrho34) + I alpha (Rerho14 + I Imrho14) -
  I gamma (Rerho23 + I Imrho23) - (Gamma21 + Gamma43)/
  2 (Rerho24 + I Imrho24),
(*rho34*)
0 == -I delta34 (Rerho34 + I Imrho34) +
  I gamma (rho44 - rho33) +
  I beta (Rerho24 + I Imrho24) - (Gamma32 + Gamma43)/
  2 (Rerho34 + I Imrho34),

(*Gleichungen für komplex konjugierte Nebendiagonalelemente*)
(*rho12*)
0 == I delta12 (Rerho12 - I Imrho12) - I alpha (rho22 - rho11) +
  I beta (Rerho13 - I Imrho13) -
  Gamma21/2 (Rerho12 - I Imrho12),
(*rho13*)
0 == I (delta12 + delta23) (Rerho13 - I Imrho13) -
  I alpha (Rerho23 - I Imrho23) +
  I gamma (Rerho14 - I Imrho14) + I beta (Rerho12 - I Imrho12) -
  Gamma32/2 (Rerho13 - I Imrho13),
(*rho14*)
0 == I (delta12 + delta23 + delta34) (Rerho14 - I Imrho14) -
  I alpha (Rerho24 - I Imrho24) +
  I gamma (Rerho13 - I Imrho13) -
  Gamma43/2 (Rerho14 - I Imrho14),
(*rho23*)
0 == I delta23 (Rerho23 - I Imrho23) - I beta (rho33 - rho22) -
  I alpha (Rerho13 - I Imrho13) +
  I gamma (Rerho24 - I Imrho24) - (Gamma21 + Gamma32)/

```

```

2 (Rerho23 - I Imrho23),
(*rho24*)
0 == I (delta23 + delta34) (Rerho24 - I Imrho24) -
I beta (Rerho34 - I Imrho34) - I alpha (Rerho14 - I Imrho14) +
I gamma (Rerho23 - I Imrho23) - (Gamma21 + Gamma43)/
2 (Rerho24 - I Imrho24),
(*rho34*)
0 == I delta34 (Rerho34 - I Imrho34) - I gamma (rho44 - rho33) -
I beta (Rerho24 - I Imrho24) - (Gamma32 + Gamma43)/
2 (Rerho34 - I Imrho34)},
{(*rho11,rho22,rho33,rho44,*)Imrho13, Rerho13, Imrho23, Rerho23,
Imrho12, Rerho12, Imrho14, Rerho14, Imrho24, Rerho24, Imrho34,
Rerho34}};
density14r[[i, j, k]] =
2*Re[Rerho14 /. sol]*(2 Pi)^3*mualpha*mubeta*mugamma*
mubc/(epsilon0*h^3*alpha*beta*gamma)
]]]
(*Phasenkorrekte Addition der partiellen Suszeptibilitäten*)
chi3 = (Sum[
density14r[[i, j, k]], {k, 1, 15}, {i, 1, 2}, {j, 2, 2}][[1]] +
chi3off)/chi3fak;

Clear[Delta34]
(*Berechnung der Phasen Anpassung*)
(*aus Wutz, Adam, Walcher; theorie und praxis der Vakuumtechnik*)
liste1 = {{-40, 2.39*10^(-6)}, {-38.83, 2.77*10^(-6)},
{-30, 8.94*10^(-6)}, {-20, 2.93*10^(-5)}, {-10, 8.98*10^(-5)},
{0, 2.53*10^(-4)}, {10, 6.63*10^(-4)}, {20, 1.63*10^-3},
{40, 8.16*10^-3}, {60, 3.37*10^-2}, {80, 1.18*10^-1}, {100,
3.62*10^-1}, {120, 9.84*10^-1}, {140, 2.43}, {160, 5.5}, {180,
1.16*10}, {200, 2.28*10}, {220, 41}, {240, 75.4}, {260,
1.28*10^2}, {280, 2.09*10^2}, {300, 3.29*10^2}, {320, 5.02*10^2},
{340, 7.44*10^2}, {350, 8.96*10^2}};
(*Interpolation der oberen Liste*)
DruckvonT = Interpolation[liste1] ;
(* DruckvonT in mbar, T in Kelvin *)
T = 254 + 273;
Dichte = DruckvonT[T - 273]*100/(kb*T);
omega1 = 2 Pi (Delta12 + Herz[39412.122]);
omega2 = 2 Pi (Delta23 + Herz[(63928.057 - 39412.122)]);
omega3 = 2 Pi (Delta34 + Herz[(82259.1 - 63928.057)]);
omega4 = 2 Pi (Delta12 + Delta23 + Delta34 + Herz[82259.1]);
nlya = {0.024, 1.15, 0.00001, 0.02, 0.0014, 0.01, 0.15, 0.0055, 0.07,
0.0018, 0.0155, 0.0011, 0.005, 0.0008, 0.0023, 0.0005, 0.0011,
0.0003, 0.0005, 0.53};
omegalya = {39412.3, 54068.781, 69661.89, 71295.15, 76467.067,
76863.264, 78813, 79412.745, 79964.1, 80916.686, 81153.614,
81811.876, 81942.444, 82379, 82464.05, 82765.9, 82823.94, 83039.3,
83084.0, 88760};
n1 = Re[ e^2/(2 epsilon0 me)
Sum[nlya[[z]]/((2 Pi Herz[omegalya[[z]]])^2 - omega1^2 -
2*I*omega1*Gamma21), {z, 1, 20}]];
n2 = Re[ e^2/(2 epsilon0 me)
Sum[nlya[[z]]/((2 Pi Herz[omegalya[[z]]])^2 - omega2^2 -
2*I*omega2*Gamma21), {z, 1, 20}]];
n3 = Re[ e^2/(2 epsilon0 me)
Sum[nlya[[z]]/((2 Pi Herz[omegalya[[z]]])^2 - omega3^2 -
2*I*omega3*Gamma21), {z, 1, 20}]];
n4 = Re[ e^2/(2 epsilon0 me)
Sum[nlya[[z]]/((2 Pi Herz[omegalya[[z]]])^2 - omega4^2 -
2*I*omega4*Gamma43), {z, 1, 20}]];
Deltak = Dichte*(n4*omega4 - n1*omega1 - n2*omega2 - n3*omega3)/c;

```

```
b = 0.0008;
Delta34 = (c - lambda*Herz[82259.1])/lambda;
Gsquare = If[b*Deltak < 0, Pi^2 (b*Deltak)^4 Exp[b*Deltak], 0];
Delta34 = (
  c - lambda*
  Herz[82259.1])/lambda;(*zum Plotten gegenüber der Wellenlänge*)

(*Leistung der VUV Strahlung*)
P4 = Dichte^2/Deltak^2 (9*omega1*omega2*omega3*omega4)/(
  4 Pi^2 epsilon0^2 c^6 b^2)*Gsquare*(chi3)^2* Palpha*Pbeta*Pgamma;
```


Literaturverzeichnis

- [AAB⁺02] M. Amoretti, C. Amsler, G. Bonomi, A. Bouchta, P. Bowe, C. Carra-ro, C. L. Cesar, M. Charlton, M. J. T. Collier, M. Doser, V. Filippini, K. S. Fine, A. Fontana, M. C. Fujiwara, R. Funakoshi, P. Genova, J. S. Hangst, R. S. Hayano, M. H. Holzscheiter, L. V. Jørgensen, V. Lagomarhi-no, R. Landua, D. Lindelöf, E. Lodi Rizzini, M. Marci, N. Madsen, G. Ma-nuzio, M. Marchesotti, P. Montagna, H. Pruys, C. Regenfus, P. Riedler, J. Rochet, F. Rotondi, G. Rouleau, G. Testera, A. Variola, T. L. Wat-son, and D. P. van der Werf van der Werf van der Werf. Production and detection of cold antihydrogen atoms. *Nature*, 419(6906):456–459, 2002.
- [AABR⁺10] G. B. Andresen, M. D. Ashkezari, M. Baquero-Ruiz, W. Bertsche, P. D. Bowe, E. Butler, C. L. Cesar, S. Chapman, M. Charlton, A. Deller, S. Eriksson, J. Fajans, T. Friesen, M. C. Fujiwara, D. R. Gill, A. Gu-tierrez, J. S. Hangst, W. N. Hardy, M. E. Hayden, A. J. Humphries, R. Hydomako, M. J. Jenkins, S. Jonsell, L. V. Jorgensen, L. Kurchani-nov, N. Madsen, S. Menary, P. Nolan, K. Olchanski, A. Olin, A. Povilus, P. Pusa, F. Robicheaux, E. Sarid, Nasr, D. M. Silveira, C. So, J. W. Sto-rey, R. I. Thompson, D. P. van der Werf, J. S. Wurtele, and Y. Yamazaki. Trapped antihydrogen. *Nature*, 468:673–676, 2010.
- [AB01] J. Amorim and G. Baravian. The two-photon absorption laser induced stimulated emission as a hydrogen atoms diagnostic tool: modelling and experiment. *Optics Communications*, 192(3-6):277 – 286, 2001.
- [ABJ00] J Amorim, G Baravian, and J Jolly. Laser-induced resonance fluorescence as a diagnostic technique in non-thermal equilibrium plasmas. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 33(9):R51–R65, 2000.
- [AGR⁺04] Antonio Agnesi, Annalisa Guandalini, Giancarlo Reali, Stefano Dell’Acqua, and Giuliano Piccinno. High-brightness 2.4-w continuous-wave nd:gdvo4 laser at 670 nm. *Opt. Lett.*, 29(1):56–58, Jan 2004.
- [And32] C. D. Anderson. The apparent existence of easily deflectable positives. *Science*, 76(1967):238–239, 1932.

- [And33] C. D. Anderson. The Positive Electron. *Physical Review*, 43(6):491–494, 1933.
- [ARLW⁺07] T. Amthor, M. Reetz-Lamour, S. Westermann, J. Denskat, and M. Weidemüller. Mechanical effect of van der waals interactions observed in real time in an ultracold rydberg gas. *Phys. Rev. Lett.*, 98(2):023004, Jan 2007.
- [AS87] W. J. Alford and A. V. Smith. Measured third-order susceptibility and excited-state oscillator strengths for atomic mercury. *Physical Review A*, 36(2), 1987.
- [AT55] S. H. Autler and C. H. Townes. Stark effect in rapidly varying fields. *Phys. Rev.*, 100(2):703–722, Oct 1955.
- [BBB⁺96] G. Baur, G. Boero, S. Brauksiepe, A. Buzzo, W. Eyrich, R. Geyer, D. Grzonka, J. Hauffe, K. Kilian, M. Lo Vetere, M. Macri, M. Moosburger, R. Nellen, W. Oelert, S. Passaggio, A. Pozzo, K. Röhrich, K. Sachs, G. Schepers, T. Sefzick, R. S. Simion, R. Stratmann, F. Stinzinger, and M. Wolke. Production of antihydrogen. *Physics Letters B*, 368(3):251–258, 1996.
- [BC90] P. N. Butcher and D. Cotter. *The Elements of Nonlinear Optics*. Cambridge University Press, first edition, 1990.
- [BCG⁺98] G. Blanford, D. C. Christian, K. Gollwitzer, M. Mandelkern, C. T. Munger, J. Schultz, and G. Zioulas. Observation of atomic antihydrogen. *Physical Review Letters*, 80(14):3037–3040, 1998.
- [BCKP97] O. Bertolami, Don Colladay, V. Alan Kostelecký, and R. Potting. Cpt violation and baryogenesis. *Physics Letters B*, 395(3-4):178 – 183, 1997.
- [Bey08] T. Beyer. *Anregung des $6^1S - 7^1S$ Zweiphotonenübergangs in atomarem Quecksilber*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2008.
- [BH75] R. G. Brewer and E. L. Hahn. Coherent two-photon processes: Transient and steady-state cases. *Physical Review A*, 11(5):1641–1649, 1975.
- [BIH91] K.-J. Boller, A. Imamolu, and S. E. Harris. Observation of electromagnetically induced transparency. *Physical Review Letters*, 66(20):2593–2596, 1991.
- [Bjo75] G. C. Bjorklund. Effects of Focusing on Third-Order Nonlinear Processes in Isotropic Media. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 11(6):287–296, 1975.

- [BKR99] R. Bluhm, V. A. Kostelecký, and N. Russell. CPT and Lorentz Tests in Hydrogen and Antihydrogen. *Physical Review Letters*, 82(11):2254–2257, 1999.
- [BKS⁺09] T. Beyer, D. Kolbe, M. Scheid, F. Markert, and J. Walz. Two-photon spectroscopy of mercury and velocity-selective double resonances. *Physical Review A*, 80(5):053414, 2009.
- [BKV00] P. Bourgeois, M. Karolak, and G. Vasseur. Performance of the photomultiplier tubes used in the DIRC of BABAR: effect of a magnetic field and of helium. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 442(1-3):105–112, 2000.
- [BL74] J. E. Bjorkholm and P. F. Liao. Resonant enhancement of two-photon absorption in sodium vapor. *Phys. Rev. Lett.*, 33(3):128–131, Jul 1974.
- [BL89] E. C. Benck and J. E. Lawler. Lifetimes, branching ratios, and absolute transition probabilities in Hg I. *Journal of the Optical Society of America B*, 6(1):11–22, 1989.
- [Blo46] F. Bloch. Nuclear induction. *Phys. Rev.*, 70(7-8):460–474, Oct 1946.
- [Boy08] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, third edition, 2008.
- [Ces01] C. L. Cesar. Zeeman effect on the 1S - 2S transition in trapped hydrogen and antihydrogen. *Physical Review A*, 64(2):023418, 2001.
- [CFK⁺96] C. L. Cesar, D. G. Fried, T. C. Killian, A. D. Polcyn, J. C. Sandberg, I. A. Yu, T. J. Greytak, D. Kleppner, and J. M. Doyle. Two-Photon Spectroscopy of Trapped Atomic Hydrogen. *Physical Review Letters*, 77(2):255–258, 1996.
- [Col02] AMS Collaboration. The alpha magnetic spectrometer (ams) on the international space station: Part i - results from the test flight on the space shuttle. *Phys. Rep.*, 366:331–405, 2002.
- [Cot79] David Cotter. Tunable narrow-band coherent vuv source for the lyman-alpha region. *Optics Communications*, 31(3):397 – 400, 1979.
- [CSWY55] O. Chamberlain, E. Segrè, C. Wiegand, and T. Ypsilantis. Observation of Antiprotons. *Physical Review*, 100(3):947–950, 1955.
- [CTDL99] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Quantenmechanik 1*. de Gruyter, second edition, 1999.

- [DEM⁺77] D. A. G. Deacon, L. R. Elias, J. M. J. Madey, G. J. Ramian, H. A. Schwettman, and T. I. Smith. First operation of a free-electron laser. *Phys. Rev. Lett.*, 38(16):892–894, Apr 1977.
- [Dem07] W. Demtröder. *Laserspektroskopie, Grundlagen und Techniken*. Springer, fifth edition, 2007.
- [DHK⁺83] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, , J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. Ward. Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 31(2):97–105, 1983.
- [Dir28] P. A. M. Dirac. The quantum theory of the electron. *Proceedings of the Royal Society A*, 1928.
- [Dir31] P. A. M. Dirac. Quantised singularities in the electromagnetic field. *Proceedings of the Royal Society A*, 1931.
- [Dje91] M. T. Djerad. Atomic parameters for transitions involving rydberg states of singly ionized alkaline earths. *J. Phys.*, II(1):1 – 9, 1991.
- [DKM99] C. Dorman, I. Kucukkara, and J. P. Marangos. Measurement of high conversion efficiency to 123.6-nm radiation in four-wave-mixing scheme enhanced by electromagnetically induced transparency. *Physical Review A*, 61(1), 1999.
- [DROM92] T. W. Darling, F. Rossi, G. I. Opat, and G. F. Moorhead. The fall of charged particles under gravity: A study of experimental problems. *Reviews of Modern Physics*, 64(1):237–257, 1992.
- [eaPDG08] C. Amsler et al. (Particle Data Group). Review of particle physics. *Physics Letters*, B667(1), 2008.
- [EWH99] K. S. E. Eikema, J. Walz, and T. W. Hänsch. Continuous wave coherent lyman- alpha radiation. *Phys. Rev. Lett.*, 83(19):3828–3831, Nov 1999.
- [EWH01] K. S. E. Eikema, J. Walz, and T. W. Hänsch. Continuous coherent lyman-alpha excitation of atomic hydrogen. *Phys. Rev. Lett.*, 86(25):5679–5682, Jun 2001.
- [FC61] B. D. Fried and S. D. Conte. *The Plasma Dispersion Function: The Hilbert Transform of the Gaussian*. Academic Press, 1961.
- [FKZ⁺04] M. Fischer, N. Kolachevsky, M. Zimmermann, R. Holzwarth, Th. Udem, T. W. Hänsch, M. Abgrall, J. Grünert, I. Maksimovic, S. Bize, H. Marion, F. Pereira Dos Santos, P. Lemonde, G. Santarelli, P. Laurent, A. Clairon,

- C. Salomon, M. Haas, U. D. Jentschura, and C. H. Keitel. New limits on the drift of fundamental constants from laboratory measurements. *Phys. Rev. Lett.*, 92(23):230802, Jun 2004.
- [Gab88] G. Gabrielse. Trapped antihydrogen for spectroscopy and gravitation studies: is it possible? *Hyperfine Interactions*, 44(1-4):349–356, 1988.
- [GBO⁺02] G. Gabrielse, N. S. Bowden, P. Oxley, A. Speck, C. H. Storry, J. N. Tan, M. Wessels, D. Grzonka, W. Oelert, G. Schepers, T. Sefzick, J. Walz, H. Pittner, T. W. Hänsch, and E. A. Hessels. Background-Free Observation of Cold Antihydrogen with Field-Ionization Analysis of Its States. *Physical Review Letters*, 89(21):213401, 2002.
- [GC77] G. Grynberg and B. Cagnac. Doppler-free multiphotonic spectroscopy. *Reports on Progress in Physics*, 40(7):791, 1977.
- [GLV77] S. Gerstenkorn, J. J. Labarthe, and J. Vergès. Fine and Hyperfine Structures and Isotope Shifts in the Arc Spectrum of Mercury. *Physica Scripta*, 15(3):167–172, 1977.
- [Gol89] J. E. M. Goldsmith. Two-photon-excited stimulated emission from atomic hydrogen in flames. *J. Opt. Soc. Am. B*, 6(11):1979–1985, Nov 1989.
- [GV75] S. Gerstenkorn and J. Vergès. Interprétation des Déplacements Isotopiques Pairs-Impairs Anormaux dans le Spectre d’Arc du Mercure. *Le Journal de Physique*, 36(6):481–486, 1975.
- [GYW⁺00] Jin-Yue Gao, Su-Hui Yang, Dong Wang, Xiu-Zhen Guo, Kai-Xin Chen, Yun Jiang, and Bin Zhao. Electromagnetically induced inhibition of two-photon absorption in sodium vapor. *Phys. Rev. A*, 61(2):023401, Jan 2000.
- [Har97] S. E. Harris. Electromagnetically induced transparency. *Physics Today*, 50(7):36–42, 1997.
- [HC80] T. W. Hänsch and B. Couillaud. Laser Frequency Stabilization by Polarization Spectroscopy of a Reflecting Reference Cavity. *Optics Communications*, 35(3):441–444, 1980.
- [Hen05] B. Henrich. *Untersuchung elektromagnetisch induzierter Transparenz für das kontinuierliche Vier-Wellen-Mischen*. Doktorarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2005.
- [HFI90] S. E. Harris, J. E. Field, and Atac Imamoglu. Nonlinear optical processes using electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, 64(10):1107–1110, Mar 1990.

- [Hil82] K. Hilpert. Mass spectrometric equilibrium study of the molecule Hg_2 . *The Journal of Chemical Physics*, 77(3):1425 – 1427, 1982.
- [HKD⁺87] H. F. Hess, G. P. Kochanski, J. M. Doyle, N. Masuhara, D. Kleppner, and T. J. Greytak. Magnetic Trapping of Spin-Polarized Atomic Hydrogen. *Physical Review Letters*, 59(6):672–675, 1987.
- [Hol51] T. Holstein. Imprisonment of resonance radiation in gases. ii. *Phys. Rev.*, 83(6):1159–1168, Sep 1951.
- [HRB⁺07] Rolf Heidemann, Ulrich Raitzsch, Vera Bendkowsky, Björn Butscher, Robert Löw, Luis Santos, and Tilman Pfau. Evidence for coherent collective rydberg excitation in the strong blockade regime. *Phys. Rev. Lett.*, 99(16):163601, Oct 2007.
- [HW03] H. Haken and H. C. Wolf. *Atom- und Quantenphysik*. Springer, 8. edition, 2003.
- [HZ93] T. W. Hänsch and C. Zimmermann. Laser spectroscopy of hydrogen and antihydrogen. *Hyperfine Interactions*, 76(3):47–57, 1993.
- [JCZ⁺00] D. Jaksch, J. I. Cirac, P. Zoller, S. L. Rolston, R. Côté, and M. D. Lukin. Fast quantum gates for neutral atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 85(10):2208–2211, Sep 2000.
- [KAB⁺10] T. Kuehl, B. Aurand, V. Bagnoud, B. Ecker, U. Eisenbarth, O. Guilbaud, J. Fils, S. Goette, J. Habib, D. Hochhaus, D. Javorkova, P. Neumayer, S. Kazamias, M. Pittman, D. Ros, J. Seres, Ch. Spielmann, B. Zielbauer, and D. Zimmer. Progress in the applicability of plasma x-ray lasers. *Hyperfine Interactions*, 196:233–241, 2010.
- [KBD⁺10] D. Kolbe, A. Beczkowiak, T. Diehl, A. Koglbauer, A. Müllers, M. Scheid, M. Stappel, R. Steinborn, and J. Walz. Continuous lyman-alpha generation by four-wave mixing in mercury for laser-cooling of antihydrogen. *ArXiv:1009.5480*, 2010.
- [Kol07] D. Kolbe. *Phasenkohärente Addition von Lichtfeldern einer Laserdiode mit zwei getrennten Halbleiter-Trapezverstärkern*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2007.
- [KOW⁺98] K. Kondo, M. Oka, H. Wada, T. Fukui, N. Umezu, K. Tatsuki, and S. Kubota. Demonstration of long-term reliability of a 266-nm, continuous-wave, frequency-quadrupled solid-state laser using $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$. *Opt. Lett.*, 23(3):195–197, 1998.

- [KSKW10] Daniel Kolbe, Martin Scheid, Andreas Koglbauer, and Jochen Walz. Continuous-wave spontaneous lasing in mercury pumped by resonant two-photon absorption. *Opt. Lett.*, 35(16):2690–2692, Aug 2010.
- [LBMW03] D. Leibfried, R. Blatt, C. Monroe, and D. Wineland. Quantum dynamics of single trapped ions. *Rev. Mod. Phys.*, 75(1):281–324, Mar 2003.
- [LC98] J E Lawler and J J Curry. Analytical formula for radiation trapping with partial frequency redistribution. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 31(22):3235, 1998.
- [LCL00] J E Lawler, J J Curry, and G G Lister. Analytic formula for radiation trapping with partial frequency redistribution and foreign gas broadening. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 33(3):252, 2000.
- [LFC⁺01] M. D. Lukin, M. Fleischhauer, R. Cote, L. M. Duan, D. Jaksch, J. I. Cirac, and P. Zoller. Dipole blockade and quantum information processing in mesoscopic atomic ensembles. *Phys. Rev. Lett.*, 87(3):037901, Jun 2001.
- [LLL⁺84] S. H. Linn, C. L. Liao, C. X. Liao, J. M. Brom, and C. Y. Ng. Photoionization study of hg₂. *Chemical Physics Letters*, 105(6):645 – 650, 1984.
- [Mar09] F. Markert. *Eine kontinuierliche Lyman- α -Quelle basierend auf Festkörperlaser-Systemen*. Doktorarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2009.
- [MF98] S. A. Meyer and G. W. Faris. High-power Lyman- α source generated with an ArF excimer laser. *Optics Letters*, 23(3):204–206, 1998.
- [MIK78] R. Mahon, T. J. Mc Illrath, and D. W. Koopman. Nonlinear generation of Lyman-alpha radiation. *Applied Physics Letters*, 33(4):305–307, 1978.
- [MK07] T. Mayer-Kuckuk. *Atomphysik*. Teubner, 5. edition, 2007.
- [ML00] K. L. Menningen and J. E. Lawler. Radiation trapping of the Hg 185 nm resonance line. *Journal of Applied Physics*, 88(6):3190–3197, 2000.
- [MLLZ08] Markus Müller, Linmei Liang, Igor Lesanovsky, and Peter Zoller. Trapped rydberg ions: from spin chains to fast quantum gates. *New Journal of Physics*, 10(9):093009, 2008.
- [Moo71] C. E. Moore. *Atomic Energy Levels As Derived From the Analyses of Optical Spectra Volume III*. NSRDS national standard reference data system, 1971.

- [MSKW07] F. Markert, M. Scheid, D. Kolbe, and J. Walz. 4 W continuous-wave narrow-linewidth tunable solid-state laser source at 546 nm by externally frequency doubling a ytterbium-doped single-mode fiber laser system. *Optics Express*, 15(22):14476–14481, 2007.
- [MSM⁺90] J. P. Marangos, N. Shen, H. Ma, M. H. R. Hutchinson, and J. P. Connerade. Broadly tunable vacuum-ultraviolet radiation source employing resonant enhanced sum-difference frequency mixing in krypton. *Journal of the Optical Society of America B*, 7(7):1254–1259, 1990.
- [MWD10] Tobias Meier, Benno Willke, and Karsten Danzmann. Continuous-wave single-frequency 532 nm laser source emitting 130 W into the fundamental transversal mode. *Opt. Lett.*, 35(22):3742–3744, Nov 2010.
- [Nei09] V. Neises. *Aufbau und Test eines Quecksilber-Heatpipe-Ofens zum resonatorinternen Vier-Wellen-Mischen*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2009.
- [NHR⁺00] M. Niering, R. Holzwarth, J. Reichert, P. Pokasov, Th. Udem, M. Weitz, T. W. Hänsch, P. Lemonde, G. Santarelli, M. Abgrall, P. Laurent, C. Salomon, and A. Clairon. Measurement of the Hydrogen 1S – 2S Transition Frequency by Phase Coherent Comparison with a Microwave Cesium Fountain Clock. *Physical Review Letters*, 84(24):5496–5499, 2000.
- [NW90] J. Nolting and R. Wallenstein. An optical ring resonator designed for frequency tripling of cw dye laser radiation in metal vapors. *Optics Communications*, 79(6):437 – 442, 1990.
- [OMR⁺94] N. Omenetto, O. I. Matveev, W. Resto, R. Badini, B. W. Smith, and J. D. Winefordner. Nonlinear behaviour of atomic fluorescence in mercury vapours following double-resonance laser excitation. *Applied Physics B*, 58(4):303–307, 1994.
- [Orr79] G. Orriols. Nonabsorption resonances by nonlinear coherent effects in a three-level system. *Il Nuovo Cimento*, 53 B(1), 1979.
- [Pah02] A. Pahl. *Erzeugung von kontinuierlicher kohärenter Lyman- α -Strahlung zur 1S-2P-Spektroskopie an Antiwasserstoff*. Doktorarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2002.
- [PCH⁺95] H. M. Pask, R. J. Carman, D. C. Hanna, A. C. Tropper, C. J. Mackechnie, P. R. Barber, and J. M. Dawes. Ytterbium-doped silica fiber lasers: Versatile sources for the 1-1.2 μm region. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1(1):2–13, 1995.

- [PFH⁺05] A. Pahl, P. Fendel, B. R. Henrich, J. Walz, T. W. Hänsch, and K. S. E. Eikema. Generation of Continuous Coherent Radiation at Lyman- α and $1S$ - $2P$ Spectroscopy of Atomic Hydrogen. *Laser Physics*, 15(1):46–54, 2005.
- [PKKM96] J. C. Petch, C. H. Keitel, P. L. Knight, and J. P. Marangos. Role of electromagnetically induced transparency in resonant four-wave-mixing schemes. *Physical Review A*, 53(1), 1996.
- [PKPH07] Rigo Peters, Christian Kränkel, Klaus Petermann, and Günter Huber. Broadly tunable high-power yb:lu2o3 thin disk laser with 80% slope efficiency. *Opt. Express*, 15(11):7075–7082, May 2007.
- [PKPH08] Rigo Peters, Christian Kränkel, Klaus Petermann, and Günter Huber. Crystal growth by the heat exchanger method, spectroscopic characterization and laser operation of high-purity yb:lu2o3. *Journal of Crystal Growth*, 310(7-9):1934 – 1938, 2008. the Proceedings of the 15th International Conference on Crystal Growth (ICCG-15) in conjunction with the International Conference on Vapor Growth and Epitaxy and the US Biennial Workshop on Organometallic Vapor Phase Epitaxy.
- [PNTH97] R. Paschotta, J. Nilsson, A. C. Tropper, and D. C. Hanna. Ytterbium-doped fiber amplifiers. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 33(7):1049–1056, 1997.
- [PRL⁺93] W. D. Phillips, S. L. Rolston, P. D. Lett, T. Mc Ilrath, N. Vansteenkiste, and C. I. Westbrook. Laser manipulation and cooling of (anti)hydrogen. *Hyperfine Interactions*, 76(1):265–272, 1993.
- [Rei84] J. F. Reintjes. *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases*. Academic Press, 1984.
- [Ric10] S. Richter. *Eine Quecksilberdampfzelle zur Lyman- α -Erzeugung in einem Überhöhungsresonator*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2010.
- [RM81] M. J. Reid and J. M. Moran. Masers. *Ann. Rev. Astron. Astrophys.*, 19:231–276, 1981.
- [RWE⁺95] L. Ricci, M. Weidemüller, T. Esslinger, A. Hemmerich, C. Zimmermann, V. Vuletic, W. König, and T. W. Hänsch. A compact grating-stabilized diode laser system for atomic physics. *Optics Communications*, 117(5-6):541–549, 1995.

- [SA86] A. V. Smith and W. J. Alford. Vacuum ultraviolet oscillator strengths of Hg measured by sum-frequency mixing. *Physical Review A*, 33(5):3172–3180, 1986.
- [SA87] A. V. Smith and W. J. Alford. Practical guide for 7s resonant frequency mixing in mercury: generation of light in the 230-185- and 140-120-nm ranges. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4(11), 1987.
- [SAH88] A. V. Smith, W. J. Alford, and G. R. Hadley. Optimization of two-photon-resonant four-wave mixing: application to 130.2-nm generation in mercury vapor. *J. Opt. Soc. Am. B*, 5(7), 1988.
- [SAO04] Jun Sakuma, Yuichi Asakawa, and Minoru Obara. Generation of 5-w deep-uv continuous-wave radiation at 266nm by an external cavity with a cslib 6 o 10 crystal. *Opt. Lett.*, 29(1):92–94, Jan 2004.
- [Sch63] Jr. W. G. Schweitzer. Hyperfine Structure and Isotope Shifts in the 2537-Å Line of Mercury by a New Interferometric Method. *Journal of the Optical Society of America*, 53(9):1055–1072, 1963.
- [Sch06] M. Scheid. *Frequenzvervierfachung eines Yb:YAG-Scheibenlasers – ein UV-Lasersystem bei 253,7 nm, der 6^1S-6^3P Linie in Quecksilber*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2006.
- [Sch09] M. Scheid. *Einfluss der 6^1S-6^3P Resonanz auf die Lyman- α Erzeugung in Quecksilber*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2009.
- [Sie86] A. E. Siegman. *Lasers*. University Science Books, first edition, 1986.
- [SKM⁺09] Martin Scheid, Daniel Kolbe, Frank Markert, Theodor W. Hänsch, and Jochen Walz. Continuous-wave Lyman- α generation with solid-state lasers. *Optics Express*, 17(14):11274–11280, 2009.
- [SMW⁺07] M. Scheid, F. Markert, J. Walz, J. Wang, M. Kirchner, and T. W. Hänsch. 750 mW continuous-wave solid-state deep ultraviolet laser source at the 253.7 nm transition in mercury. *Optics Letters*, 32(8):955–957, 2007.
- [SPK⁺01] G.J. Spühler, R. Paschotta, M.P. Kullberg, M. Graf, M. Moser, E. Mix, G. Huber, C. Harder, and U. Keller. A passively q-switched yb:yag microchip laser. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 72:285–287, 2001.
- [SS98] S. Saghafi and C. J. R. Sheppard. The beam propagation factor for higher order gaussian beams. *Optics Communications*, 153(4-6):207–210, 1998.
- [SSB89] Michael Schubert, Ingo Siemers, and Rainer Blatt. Line shape of three-level ions in paul traps. *Phys. Rev. A*, 39(10):5098–5105, May 1989.

- [SSB⁺92] I. Siemers, M. Schubert, R. Blatt, W. Neuhauser, and P. E. Toschek. The trapped state of a trapped ion: Line shifts and shape. *EPL (Europhysics Letters)*, 18(2):139, 1992.
- [SSS⁺04] C. H. Storry, A. Speck, D. Le Sage, N. Guise, G. Gabrielse, D. Grzonka, W. Oelert, G. Schepers, T. Seifick, H. Pittner, M. Herrmann, J. Walz, T. W. Hänsch, D. Comeau, and E. A. Hessels. First laser-controlled antihydrogen production. *Phys. Rev. Lett.*, 93(26):263401, Dec 2004.
- [ST91] B. E. A. Saleh and M. C. Teich. *Fundamentals of Photonics*. John Wiley & Sons, Inc., 1991.
- [Ste09] R. Steinborn. *Ein leistungsstarker Ytterbium-Faserverstärker bei 1091 nm für eine kontinuierliche Lyman- α -Quelle*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2009.
- [Sve98] O. Svelto. *Principles of Lasers*. Plenum Press New York, fourth edition, 1998.
- [SWL⁺93] I. D. Setija, H. G. C. Werij, O. J. Luiten, M. W. Reynolds, T. W. Hijmans, and J. T. M. Walraven. Optical Cooling of Atomic Hydrogen in a Magnetic Trap. *Physical Review Letters*, 70(15):2257–2260, 1993.
- [vT76] C. van Tright. Analytically solvable problems in radiative transfer. iv. *Phys. Rev. A*, 13(2):726–733, Feb 1976.
- [Wal80] R. Wallenstein. Generation of narrowband tunable vuv radiation at the lyman- α wavelength. *Optics Communications*, 33(1):119 – 122, 1980.
- [Wal93] J. T. M. Walraven. Trapping and cooling of (anti)hydrogen. *Hyperfine Interactions*, 76(1):205–220, 1993.
- [WAW97] M. Wutz, H. Adam, and W. Walcher. *Handbuch Vakuumtechnik, Theorie und Praxis*. Vieweg, sixth edition, 1997.
- [Web09] T. Weber. *Drei-Farben-Überhöhungsresonator zur Erzeugung von kohärenter, kontinuierlicher Strahlung im VUV*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2009.
- [WH04] J. Walz and T. W. Hänsch. A proposal to measure antimatter gravity using ultracold antihydrogen atoms. *General Relativity and Gravitation*, 36(3):561–570, 04.
- [WPEH01] J. Walz, A. Pahl, K. S. E. Eikema, and T. W. Hänsch. The first continuous coherent Lyman- α source. *Nuclear Physics A*, 692(1-2):163–167, 2001.

- [WSZ03] Ying Wu, Joseph Saldana, and Yifu Zhu. Large enhancement of four-wave mixing by suppression of photon absorption from electromagnetically induced transparency. *Physical Review A*, 67, 2003.
- [ZHS93] G. Z. Zhang, K. Hakuta, and B. P. Stoicheff. Nonlinear optical generation using electromagnetically induced transparency in atomic hydrogen. *Phys. Rev. Lett.*, 71(19):3099–3102, Nov 1993.
- [ZMLG99] E. Zanger, R. Müller, B. Liu, and W. Gries. Diode-pumped industrial high-power cw all solid-state laser at 266 nm. *SPIE Conference Proceedings*, 3862:255–261, 1999.
- [ZSB89] M. G. Zadnik, S. Specht, and F. Begemann. Revised Isotopic Composition of Terrestrial Mercury. *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes*, 89(1):103–110, 1989.

Danksagung

Zum Abschluss möchte ich mich bei allen herzlich bedanken, die diese Arbeit möglich gemacht haben.

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel und Quellen verwendet habe.

Mainz, den 5. Mai 2011

Daniel Kolbe