

Einfluss der $6^1\text{S} - 6^3\text{P}$ Resonanz auf die Lyman- α Erzeugung in Quecksilber

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

von
Martin Scheid
geboren in Gießen

Mainz den 30. November 2009

1. Gutachter:

2. Gutachter:

Tag der mündlichen Prüfung:

DIE TORE STEHEN OFFEN,
DAS LAND IST HELL UND WEIT.
Prof. Dr. Klaus-Peter Hertzsch 1989

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird eine kontinuierliche, kohärente Strahlungsquelle bei 121,56 nm, der Lyman- α Linie in Wasserstoff, vorgestellt. Diese Lyman- α Quelle soll zur zukünftigen Laserkühlung von Antiwasserstoff dienen. Die Strahlung wird durch Vier-Wellen-Mischen in Quecksilberdampf produziert. Dabei wird ein Festkörperlaser-System zur Erzeugung der Fundamentalstrahlen eingesetzt. Zur Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität wird die 6^1S - 7^1S Zwei-Photonen-Resonanz ausgenutzt. Zusätzlich wird mit Hilfe eines durchstimmbaren ultravioletten Lasersystems die 6^1S - 6^3P Ein-Photon-Resonanz genutzt, was es erlaubt, die nichtlineare Suszeptibilität des Mischprozesses um Größenordnungen zu erhöhen.

Um den Einfluss der 6^1S - 6^3P Ein-Photon-Resonanz zu untersuchen, wurden zunächst die Phasenanstimmungstemperaturen bei verschiedenen Verstimmungen der ultravioletten Strahlung zur 6^3P Resonanz vermessen und festgestellt, dass kleinere Verstimmungen zu niedrigeren Phasenanstimmungstemperaturen führen. Es konnte sowohl theoretisch wie auch experimentell gezeigt werden, dass diese niedrigeren Phasenanstimmungstemperaturen bei kleinen Verstimmungen der Erhöhung der Lyman- α Erzeugung durch die größere nichtlineare Suszeptibilität bei kleinen Verstimmungen entgegenwirken. Bei immer kleineren Verstimmungen 6^3P Resonanz limitiert die Absorption der ultravioletten Strahlung die Lyman- α Erzeugung.

Ein positiver Effekt der niedrigeren Phasenanstimmungstemperaturen ist, dass es möglich wird, auf das bisher nötige Puffergas in der Quecksilber-Dampfzelle zu verzichten, was die Lyman- α Erzeugung um einen Faktor 1,7 erhöht. Damit war es möglich, die bisherige Effizienz der Lyman- α Erzeugung zu verbessern. Es wurde eine Lyman- α Leistung von 0,3 nW erreicht.

Zusätzlich zum Einfluss der 6^3P Resonanz auf die Lyman- α Erzeugung wurde ein weiterer Effekt beobachtet. Durch die Nähe der 6^1S - 6^3P Ein-Photon-Resonanz wird auch mehr Besetzung in das obere 7^1S Niveau der Zwei-Photonen-Resonanz gepumpt. Dadurch konnte erstmals eine kontinuierliche Lasertätigkeit auf der 6^1P - 7^1S Linie in Quecksilber bei 1014 nm beobachtet werden.

Inhaltsverzeichnis

| | | |
|----------|--|------------|
| 1 | Einleitung | 1 |
| 2 | Vier-Wellen-Mischen in Quecksilber | 7 |
| 2.1 | Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik | 7 |
| 2.2 | Vier-Wellen-Mischen mit fokussierten Strahlen | 9 |
| 2.3 | Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität | 14 |
| 2.4 | Berechnung der Phasenanpassung | 21 |
| 3 | Aufbau der Lyman-α Quelle | 25 |
| 3.1 | Das UV-Lasersystem bei 253,7 nm | 26 |
| 3.2 | Das blaue Lasersystem | 38 |
| 3.3 | Das grüne Lasersystem | 40 |
| 3.4 | Strahlüberlagerung | 42 |
| 3.5 | Lyman- α Produktion, Detektion und Datenaufnahme | 44 |
| 4 | Experimentelle Ergebnisse | 55 |
| 4.1 | Abhängigkeit der Phasenanpassungstemperatur von der UV Verstimmung | 55 |
| 4.2 | Veränderung der Fokusposition | 60 |
| 4.3 | Einfluss der Zwei-Photonen-Resonanz | 63 |
| 4.4 | Verbesserung der Konversionseffizienz | 72 |
| 4.5 | Hintergrund und TALISE | 81 |
| 5 | Zusammenfassung und Ausblick | 91 |
| A | Zusammenstellung der benötigten Quecksilberdaten | 95 |
| B | Leistungen der Lasersysteme | 100 |
| C | Umrechnung von CGS in SI Einheiten | 102 |
| D | Mathematica Programme | 104 |
| | Literaturverzeichnis | 115 |

Kapitel 1

Einleitung

Von dem Thema Antimaterie geht eine große Faszination aus. Oft ist dabei die große Menge an Energie, die hier bei der Annihilation kleiner Massen freigesetzt werden kann, das Thema. In der Science-Fiction-Welt ist zum Beispiel der Antimaterieantrieb ein vielfach genutztes Motiv. Auch in der Wissenschaft ist das Thema Antimaterie von Bedeutung. Bisher stehen hier aber meist andere Aspekte im Vordergrund. Ein wichtiges Thema ist der Test der sogenannten CPT-Symmetrie. Bei dieser Symmetrie wird die Ladung (**C**harge), die Parität (**P**arity) und die Zeit (**T**ime) umgekehrt. Das überführt ein Teilchen in sein Antiteilchen. Aus der CPT-Symmetrie folgt unter anderem, dass ein Teilchen und sein jeweiliges Antiteilchen gleiche träge Masse und gyromagnetisches Verhältnis, aber entgegengesetzte Ladung und entgegengesetztes magnetisches Moment haben sollten. Eine Verletzung dieser CPT-Symmetrie wäre von fundamentaler Bedeutung, da jede Lorentz-invariante Quantenfeldtheorie, wie das Standardmodell oder die Quantenelektrodynamik, diese Symmetrie erfüllen muss [BKR99]. Der aktuell genaueste Test der CPT-Invarianz kommt aus dem Zerfall des neutralen Kaons. Dort konnte die relative Massendifferenz von Teilchen und Antiteilchen zu kleiner 1×10^{-18} bestimmt werden [eaPDG08].

Die CPT-Invarianz kann auch durch Vergleich der 1S-2S Übergangsfrequenzen in Wasserstoff und Antiwasserstoff getestet werden. Antiwasserstoff ist das einfachste Atom aus Antimaterie und besteht aus einem Antiproton im Kern und einem Positron in der Hülle. Beim CPT-Test mit Antiwasserstoff profitiert man davon, dass die 1S-2S Übergangsfrequenz in Wasserstoff mit einer relativen Genauigkeit von $1,8 \times 10^{-14}$ bestimmt wurde [NHR⁺00]. Für einen CPT-Test muss nun noch die 1S-2S Übergangsfrequenz in Antiwasserstoff vermessen werden. Neben dem CPT-Test bietet Antiwasserstoff auch die faszinierende Möglichkeit, Gravitation bei Antimaterie zu untersuchen [Gab88, WH04]. Ob sich Materie und Antimaterie durch die Gravitation anziehen oder etwa abstoßen, ist experimentell wie theoretisch völlig unklar. Gravitationsexperimente an geladenen Teilchen sind zu anfällig auf elektrische Streufelder, um diese Frage bisher zu entscheiden [DROM92]. Auf dem Weg zu solchen Präzisionsexperimenten an Antiwasserstoff wurden bereits viele Teilschritte gemacht, die im Folgenden kurz dargestellt

werden sollen.

Der eine Bestandteil von Antiwasserstoff, die Positronen, wurden zuerst von Dirac postuliert [Dir28, Dir31]. Als erstes Antiteilchen überhaupt wurde das Positron dann von Carl Anderson 1932 experimentell entdeckt [And32, And33], indem nach einigen Kontroversen die „falsch herum“ gebogene Spur in einer Nebelkammer einem Elektron positiver Ladung zugeordnet wurde. Das Antiproton wurde 1955 experimentell nachgewiesen, nachdem es durch Beschuss eines Kupfertargets mit Protonen erzeugt wurde [CSWY55]. Es brauchte einige Jahre, um aus diesen Bestandteilen Antiwasserstoff zu formen. Zum ersten Mal wurde Antiwasserstoff 1996 am CERN im **Low Energy Antiproton Ring** (LEAR) hergestellt und detektiert [BBB⁺96]. Dazu ließ man die gespeicherten Antiprotonen mit einem Xenon-Gasstrahl wechselwirken. Mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit entsteht dabei ein Elektron-Positron Paar. Mit einer sehr kleinen Wahrscheinlichkeit bildet das Positron und ein Antiproton dann Antiwasserstoff. Mit dieser Methode wurden elf Antiwasserstoffatome nachgewiesen. Wenige Jahre später wurden am Fermilab auf ähnliche Weise an einem Wasserstoffstrahl 57 Antiwasserstoffatome detektiert [BCG⁺98]. Bei beiden Experimenten waren die Antiwasserstoffatome aber mit 90% der Lichtgeschwindigkeit zu schnell, um für Präzisionsexperimente wie die 1S-2S Spektroskopie genutzt werden zu können.

Die Herstellung von kalten, also langsamen, Antiwasserstoffatomen gelang im Jahr 2002 erstmals der ATHENA-Kollaboration [AAB⁺02] und kurz darauf der ATRAP-Kollaboration [GBO⁺02a]. Dazu wurden bei kryogenen Temperaturen Antiprotonen und Positronen in Penningfallen gefangen, gekühlt und in einer verschachtelten Penningfalle zusammengebracht, wo dann durch Drei-Körper-Rekombination Antiwasserstoff entstehen kann. Dabei wurden 50.000 (ATHENA) bzw. 170.000 (ATRAP) Antiwasserstoffatome hergestellt. Es wurde festgestellt, dass der Antiwasserstoff hauptsächlich in Rydbergzuständen produziert wird [GBO⁺02b]. Außerdem wurde die Geschwindigkeit der Antiwasserstoffatome untersucht [GSS⁺04, PSG06]. Eine zweite Möglichkeit Antiwasserstoff herzustellen, ist der zweifache Ladungsaustausch [SSS⁺04]. Hierbei durchquert laserangeregtes Rydberg-Cäsium die gefangene Positronenwolke und formt dabei Rydberg-Positronium. Ein Teil dieses Positroniums driftet zur gefangenen Antiprotonenwolke. Die Antiprotonen können das Positron des Positroniums an sich binden und Antiwasserstoff formen.

Da der Antiwasserstoff elektrisch neutral ist, wird er nicht mehr in den Penningfallen gespeichert. Er driftet zu den Fallenwänden und annihiliert dort. Um die Antiwasserstoffatome für Präzisionsexperimente nutzen zu können, ist der nächste wichtige Schritt, sie in einer Magnetfalle zu speichern. Solche Magnetfallen wurden zum Beispiel bereits zur Speicherung [HKD⁺87] und Spektroskopie [CFK⁺96] von Wasserstoff genutzt. Zur Zeit versuchen zwei Experimente am Antiproton Decelerator des CERN, die ATRAP-Kollaboration - zu der unsere Arbeitsgruppe gehört - und die ALPHA-Kollaboration, Antiwasserstoff in einer Ioffe-Magnetfalle zu fangen. In Abbildung 1.1 werden das System von Penningfallen und die umgebenden Spulen zur Erzeugung der

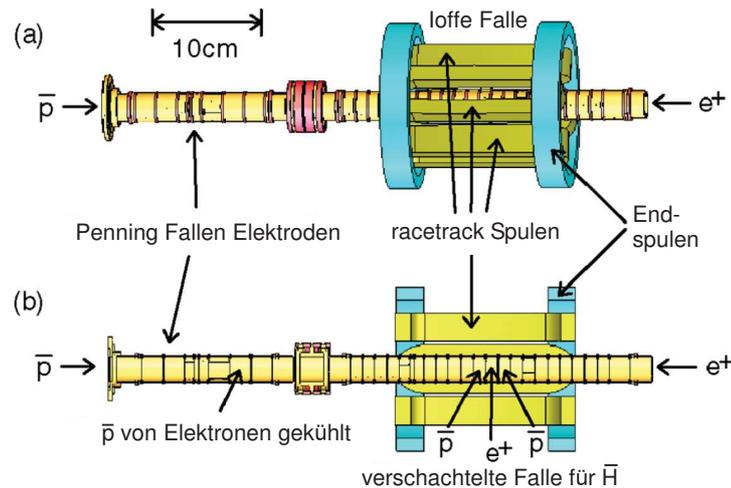


Abbildung 1.1: Außenansicht (a) und Schnitt (b) der von der ATRAP-Kollaboration verwendeten Penning-Ioffe Falle [GLS⁺08]. Zunächst werden die von rechts kommenden Positronen (e^+) und die von links kommenden Antiprotonen (\bar{p}) in getrennte Penningfallen geladen. Die Positronen kühlen durch Synchrotronstrahlung auf die kryogene Umgebungstemperatur. Die Antiprotonen werden mit Elektronen sympathisch gekühlt. Anschließend werden die beiden Teilchenwolken in der verschachtelten Penningfalle zur Überlagerung gebracht. Um diesen Bereich herum sind die Spulen der Ioffe-Magnetfalle angebracht, um den hergestellten, elektrisch neutralen Antiwasserstoff magnetisch zu fangen. Nicht gezeigt ist der umgebende 1 T Solenoid der Penningfallen.

Magnetfalle, wie sie von der ATRAP-Kollaboration verwendet werden, gezeigt. Die Falle ist 375 mK tief, so dass nur ein Bruchteil der kryogen erzeugten Antiwasserstoffatome gefangen werden kann. Im Jahr 2008 konnte erstmals Antiwasserstoff im Feld einer magnetischen Falle hergestellt werden. Es war jedoch nicht möglich, eventuell im Magnetfeld gefangenen Antiwasserstoffatome über dem Untergrund der Detektoren nachzuweisen. Detektiert werden konnten nur die nicht gefangene Antiwasserstoffatome [GLS⁺08]. Mit den aufgezählten Fortschritten besteht Grund zur Hoffnung, dass schon sehr bald gefangener Antiwasserstoff für Präzisionsexperimente zur Verfügung steht.

Möchte man nun Spektroskopie am 1S-2S Übergang von Antiwasserstoff durchführen, so muss man bedenken, dass die Wasserstofflinien im Magnetfeld der Falle durch den Zeeman-Effekt aufgespalten werden [Ces01, HZ93, Wal93], wie dies in Abbildung 1.2 gezeigt wird.

Es ist daher essentiell, den Antiwasserstoff in das Zentrum der Falle zu kühlen, damit sich die Ausdehnung der Wolke verringert und die Antiwasserstoffatome in einem möglichst homogenen Feld sind. Der starke, geschlossene Übergang zwischen dem $1S_{1/2}(m_j = 1/2)$ Niveau und dem $2P_{3/2}(m_j = 3/2)$ Niveau bietet sich für Laserkühlung an. Die Aufspaltung der Linien im Magnetfeld, der 1S-2S Übergang der Spektroskopie

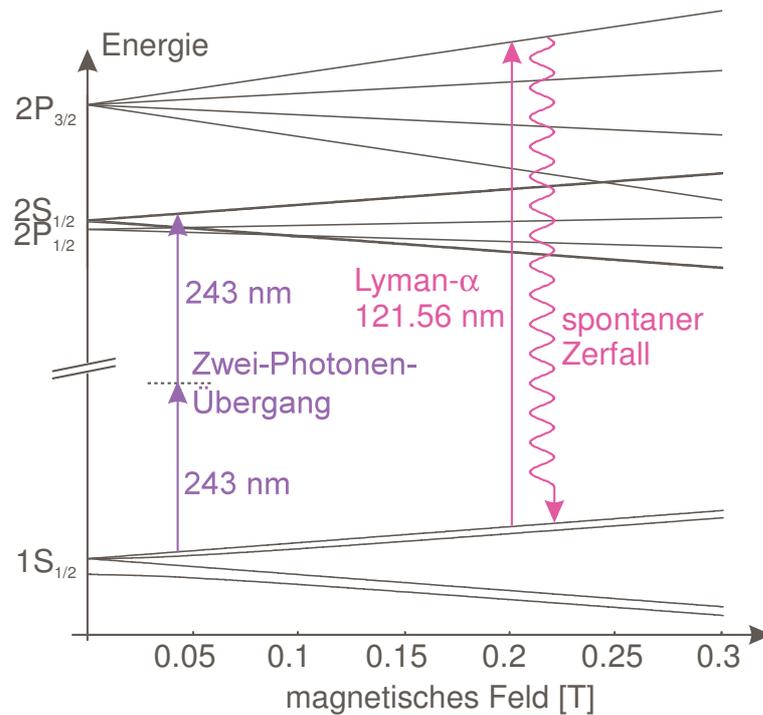


Abbildung 1.2: Aufspaltung der Wasserstofflinien im Magnetfeld der Ioffe-Falle. Aufgetragen ist die Energie der niedrigsten Wasserstoffniveaus über dem Magnetfeld der Falle. Ebenfalls eingezeichnet, auf der linken Seite, ist der $1S$ - $2S$ Zwei-Photonen-Übergang der spektroskopiert werden soll und, auf der rechten Seite, der geschlossene Kühlübergang, auf dem mit der Lyman- α Strahlung gekühlt werden soll.

und der Kühlübergang werden in Abbildung 1.2 gezeigt. Allerdings liegt die $1S$ - $2P$ Linie, die sogenannte Lyman- α Linie, mit 121,56 nm tief im vakuum-ultravioletten Teil des elektromagnetischen Spektrums, im Folgenden mit VUV abgekürzt. Strahlung dieser Wellenlänge kann bisher nur durch nichtlineare Frequenzmischung erzeugt werden. Die für nichtlineare Prozesse notwendigen hohen Intensitäten lassen sich mit gepulsten Lasern leichter realisieren als mit kontinuierlichen Lasern. Durch Vier-Wellen-Mischen in Edelgasen oder Metaldämpfen wurden bereits einige gepulste Lyman- α Quellen demonstriert [MIK78, HW83, MSM⁺90, PRL⁺93, MF98]. In [SWL⁺93] wurde mit einer solchen gepulsten Quelle das Laserkühlen von Wasserstoffatomen in einer magnetischen Falle bis auf 8 mK demonstriert. Ziel unserer Arbeitsgruppe ist die Entwicklung einer kontinuierlichen Lyman- α Quelle. Eine solche kontinuierliche Quelle hat für die Kühlung von Antiwasserstoffatomen in einer Magnetfalle deutliche Vorteile. Zum Einen werden durch die geringe Linienbreite weniger der wertvollen, weil nicht sehr zahlreichen, Antiwasserstoffatome in magnetisch nicht gefangene Unterzustände gepumpt. Solche Atome würden aus der Falle verloren gehen. Zum Anderen ist die Kühlrate bei den typischen gepulsten ns-Lyman- α Quellen effektiv durch die Pulswiederholrate beschränkt. Die Lebensdauer des $2P$ Niveaus beträgt 1,6 ns, so dass pro Puls nur ein paar Kühlzyklen stattfinden können. Die bisher einzige kontinuierliche Lyman- α

Quelle wurde durch Vier-Wellen-Mischen in Quecksilber realisiert [EWH99], mit einer maximal erreichten Leistung von 20 nW [EWH01]. Damit liegt man bereits im Bereich der Durchschnittsleistung, die zur Laserkühlung von Wasserstoff mit dem gepulsten System verwendet wurde. Ein weiterer Vorteil einer kontinuierlichen Lyman- α Quelle ist die Möglichkeit, den schwachen 1S-2S Übergang an wenigen Antiwasserstoffatomen mit Hilfe eines sogenannten shelving Schemas über den starken 1S-2P Übergang zu detektieren [Deh75, HZ93]. Dabei wird ausgenutzt, dass sich die Streustrahlung auf dem 1S-2P Übergang vermindert, wenn Atome durch die Zwei-Photonen-Spektroskopie in den 2S Zustand gebracht werden. Dafür würde aber deutlich mehr Lyman- α Leistung benötigt als bisher erreicht wurde [WPEH01].

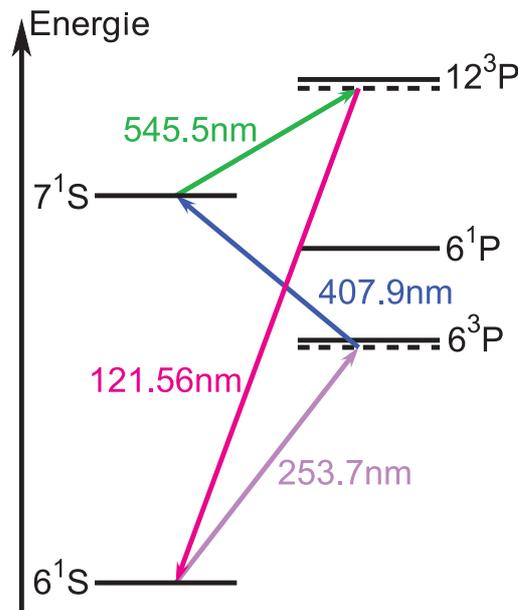


Abbildung 1.3: Vereinfachtes Energieniveauschema von Quecksilber und Schema des Vier-Wellen-Mischens. Die drei eingehenden Strahlungsfelder erzeugen Lyman- α Strahlung bei 121,56 nm. Durch den blauen Fundamentalstrahl bei 407,9 nm und den UV-Fundamentalstrahl bei 253,7 nm wird aus dem 6^1S Grundzustand die Zwei-Photonen-Resonanz mit dem 7^1S Niveau erreicht. Das durchstimmbare UV-Lasersystem kann beliebig nahe an die 6^3P Resonanz eingestellt werden. Die Wellenlänge des dritten fundamentalen Laserstrahls ist durch die Wellenlänge der Lyman- α Strahlung auf 545,5 nm festgelegt. Die Lyman- α Strahlung liegt am nächsten zum 12^3P Niveau.

Quecksilber wurde, wegen des hohen Dampfdrucks bei niedrigen Temperaturen, bereits früh für das Vier-Wellen-Mischen zur Erzeugung von gepulster VUV-Strahlung eingesetzt [TM81]. Um die Nichtlinearität des Quecksilberdampfs zu erhöhen, können Resonanzen der Quecksilberatome ausgenutzt werden. So wurde in der bisher einzigen kontinuierlichen Lyman- α Quelle die 6^1S - 7^1S Zwei-Photonen-Resonanz ausgenutzt [EWH01].

Das Ziel dieser Arbeit ist es, eine zweite Generation dieser Lyman- α Quelle aufzubauen, in der moderne Festkörperlaser Systeme die Fundamentalstrahlen erzeugen. Dabei soll

insbesondere untersucht werden, inwieweit die Lyman- α Erzeugung durch die Ausnutzung der 6^3P Resonanz erhöht werden kann. In Abbildung 1.3 wird ein vereinfachtes Energieniveauschema von Quecksilber gezeigt. Ebenfalls eingezeichnet sind die drei eingehenden fundamentalen Strahlungsfelder und die erzeugte Lyman- α Strahlung. Im Gegensatz zur bisherigen Lyman- α Quelle wird ein durchstimmbares UV-Lasersystem verwendet, das beliebig nahe an die 6^3P Resonanz eingestellt werden kann, um auch diese Resonanz optimal auszunutzen.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in drei Teile. In Kapitel 2 wird zuerst eine kurze Einführung in die nichtlineare Optik und das Vier-Wellen-Summenfrequenzmischen gegeben. Im weiteren Verlauf dieses Kapitels werden die relevanten Formeln für die Lyman- α Erzeugung mit fokussierten Gauß-Strahlen in Quecksilberdampf vorgestellt. Anhand dieser Formeln werden wichtige Zusammenhänge für das Verständnis der experimentellen Ergebnisse erklärt, insbesondere im Hinblick auf den Einfluss der 6^3P Resonanz. In Kapitel 3 wird der experimentelle Aufbau der Lyman- α Quelle ausführlich beschrieben, dabei wird unter anderem das im Rahmen dieser Arbeit aufgebaute fortschrittliche Festkörperlasersystem zur Erzeugung der Fundamentalstrahlen präsentiert. In Kapitel 4 werden dann die experimentellen Ergebnisse, die mit diesem Aufbau erreicht wurden, vorgestellt. Die vielgestaltigen Änderungen durch die Nähe der UV-Strahlung zur 6^3P Resonanz werden aufgezeigt und die Auswirkung auf die Lyman- α Erzeugung diskutiert.

Kapitel 2

Vier-Wellen-Mischen in Quecksilber

Vier-Wellen-Mischen in Edelgasen wurde zuerst von Ward und New [WN69] durch die Frequenzverdreifachung der Strahlung eines Rubin Lasers realisiert und bald darauf auch in Metalldämpfen bei der Frequenzverdreifachung der Strahlung eines Nd:YAG Lasers [YBK⁺71]. Seitdem hat sich diese Technik nicht zuletzt zur Herstellung von kohärenter Strahlung im VUV-Bereich etabliert, wo keine geeigneten nichtlinearen Kristalle zur Frequenzverdopplung zur Verfügung stehen. Die allgemeine Theorie zum Vier-Wellen-Mischen in Gasen und Metalldämpfen wird in den zitierten Werken bereits ausführlich behandelt [Boy03, Rei84, BC90]. In dem folgenden Kapitel soll daher nur kurz und zielstrebig auf die, für den vorliegenden Fall von Summenfrequenzmischung in Quecksilber, wichtigen Formeln für die Konversionseffizienz hingeführt werden. Den Schwerpunkt bildet eine ausführliche Diskussion der einzelnen Beiträge zur Formel für die konvertierte Leistung, da die Optimierung der Konversionseffizienz im Mittelpunkt dieser Arbeit steht. Insbesondere wird das Verhalten nahe einer Ein-Photon-Resonanz untersucht, da mit einem neuen Lasersystem der Wellenlängenbereich um die 6^1S-6^3P Übergangsfrequenz in Quecksilber erreicht werden kann. Die Arbeit wurde durchgehend im SI-Einheitensystem geschrieben. Wo nötig, wurden die entsprechenden Zusammenhänge aus der Literatur vom cgs-Einheitensystem ins SI-System überführt. Eine kurze Anleitung dazu findet sich im Anhang C.

2.1 Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik

Läuft ein Lichtfeld \vec{E} durch ein Medium, wird in diesem eine Polarisation \vec{P} induziert, die sich in eine lineare Polarisation \vec{P}^L und eine nichtlineare Polarisation \vec{P}^{NL} aufspalten lässt:

$$\vec{P} = \vec{P}^L + \vec{P}^{NL} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E} + \epsilon_0 (\chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots) \quad . \quad (2.1)$$

Die $\chi^{(i)}$ werden als Suszeptibilitäten *i*ter Ordnung bezeichnet und sind mathematisch

Tensoren $(i + 1)$ ter Ordnung. Weiterhin geht die Permittivität des Vakuums ϵ_0 ein. In isotropen Medien, wie den in dieser Arbeit verwendeten Metalldämpfen, sind aus Symmetriegründen alle $\chi^{(i)}$ mit gerader Ordnung gleich Null. Das heißt der niedrigste nichtlineare Beitrag ist dritter Ordnung. Aus der linearen Suzeptibilität $\chi^{(1)}$ ergibt sich der komplexe Brechungsindex und damit die Absorption und Dispersion des Mediums. Für den hier relevanten Fall isotroper Medien kann $\chi^{(1)}$, da es keine Doppelbrechung gibt, als Skalar behandelt werden. Damit ergibt sich der komplexe Brechungsindex n zu:

$$n = \sqrt{1 + \chi^{(1)}} \approx 1 + \frac{1}{2}\chi^{(1)} = n' + i\frac{c}{2\omega}\alpha \quad . \quad (2.2)$$

In dieser Formel ist c die Vakuumlichtgeschwindigkeit und ω die Kreisfrequenz der Strahlung. Der komplexe Brechungsindex lässt sich also aufteilen in den reellen Brechungsindex n' und den Absorptionskoeffizienten α . Die Näherung gilt, da $\chi^{(1)}$ üblicherweise klein gegen eins ist.

Bei ausreichend hohen Intensitäten der eingehenden Lichtfelder macht sich die nichtlineare Polarisation bemerkbar. Beiträge mit Ordnung $i \geq 5$ sind bei den von uns erreichbaren Intensitäten vernachlässigbar [Rei84], so dass für die Komponenten der nichtlinearen Polarisation gilt:

$$P_i^{NL} = \epsilon_0 \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l \quad , \quad \text{mit } i, j, k, l \in \{x, y, z\} \quad . \quad (2.3)$$

Sind nun die eingehenden Lichtfelder linear polarisiert, so kann, wiederum wegen der Isotropie, die Antwort des Mediums nur in diese Richtung zeigen. Es reicht daher eine Komponente zum Beispiel $\chi_{xxxx}^{(3)}$ zu betrachten. Im Folgenden werden die Indizes der Einfachheit halber weggelassen.

Durch die nichtlineare Polarisation können im Medium Strahlungsfelder bei neuen, nicht eingestrahnten Frequenzen erzeugt werden. Direkt aus den Maxwell-Gleichungen ergibt sich in einem isotropen Medium die nichtlineare Wellengleichung:

$$\Delta \vec{E} - \frac{1 + \chi^{(1)}}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}^{NL} \quad . \quad (2.4)$$

Die nichtlineare Polarisation ist hier der treibende Term der Wellengleichung und wirkt als Quelle neuer Strahlungskomponenten. Nimmt man für die einlaufenden Felder zum Beispiel drei ebene, in x -Richtung polarisierte Wellen, die sich in z -Richtung ausbreiten, mit Frequenzen $\omega_{1,2,3}$ und Wellenvektoren $k_{1,2,3}$ an, dann erhält man aus Gleichung 2.3 unter anderem eine treibende, nichtlineare Polarisation bei der Frequenz $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$. Diese nichtlineare Polarisation erzeugt dann auch ein Strahlungsfeld bei der Summe der Eingangsfrequenzen. Dieses Summenfrequenzmischen ist eine Form des so genannten Vier-Wellen-Mischens, bei dem vier Strahlungsfelder über das Medium miteinander wechselwirken. Berechnet man aus der nichtlinearen Wellengleichung

das erzeugte Feld E_4 bei der Summenfrequenz ω_4 ergibt sich die Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik:

$$\frac{\partial}{\partial z} E_4 = \frac{i\omega_4}{2n_4\epsilon_0 c} P_4^{NL} e^{-ik_4 z} \quad . \quad (2.5)$$

Dazu muss die gerechtfertigte Näherung gemacht werden, dass sich die Amplituden auf der Skala einer Wellenlänge wenig verändern. Die Gleichung ist skalar, da wegen der Bedingung, dass alle eingehenden Felder in x -Richtung polarisiert sind, nur die x -Komponente betrachtet werden muss. Der Index 4 bezieht sich immer auf die Summenfrequenz ω_4 . Die nichtlineare Polarisation bei der Summenfrequenz P_4^{NL} erhält man aus Gleichung 2.3. Setzt man sie in die Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik ein, kann man diese, unter der Annahme, dass die fundamentalen Felder keine Abschwächung erfahren, entlang der Propagationsrichtung z integrieren und erhält daraus die gesamte, bei der Summe der Eingangsfrequenzen erzeugte Intensität:

$$I_4 = \frac{9}{32} \frac{\epsilon_0 \omega_4^2 L^2}{n_4 c} |\chi^{(3)}|^2 E_1^2 E_2^2 E_3^2 \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)^2} \quad . \quad (2.6)$$

Dabei bezeichnet L die Länge der Wechselwirkungszone und die so genannte Phasenfehlanpassung Δk berechnet sich aus den Wellenvektoren der beteiligten Felder mit $\Delta k = k_4 - k_1 - k_2 - k_3$. Die Intensität des erzeugten Feldes hat nach Gleichung 2.6 ihr Maximum, wenn $\Delta k = 0$ gilt. Dies wird als optimale Phasenanpassung bezeichnet und bedeutet, dass das erzeugte Feld an jedem Ort mit der erzeugenden Polarisation in Phase schwingt. Somit interferieren die an unterschiedlichen Orten erzeugten Teilwellen der harmonischen Strahlung konstruktiv und die erzeugte Strahlung baut sich über die ganze Länge des Mediums auf. Für eine hohe Intensität der erzeugten harmonischen Strahlung benötigt man also hohe Intensitäten der eingehenden, fundamentalen Strahlungsfelder, eine hohe nichtlineare Suszeptibilität und eine gute Phasenanpassung.

2.2 Vier-Wellen-Mischen mit fokussierten Strahlen

Wie aus der vorausgegangenen Gleichung 2.6 für ebene Wellen ersichtlich wird, ist es vorteilhaft, wenn die fundamentalen Felder eine möglichst hohe Intensität haben. Daher wird man die Strahlen der fundamentalen Felder fokussieren. Für fokussierte Gauß-Strahlen ist aber die zuvor ausgeführte Herleitung nicht mehr gültig, da von ebenen Wellen ausgegangen wurde. Insbesondere ist für die Phasenanpassung nicht mehr für $\Delta k = 0$ ideal. Dies kann man sich anschaulich dadurch erklären, dass ein fokussierter Gauß-Strahl beim Durchlaufen eines Fokus die so genannte Gouy-Phase aufsammelt [Sie86]. In der nichtlinearen Polarisation wird die Gouy-Phase für jeden fundamentalen Gauß-Strahl einzeln aufgesammelt also insgesamt dreimal. Der erzeugte Gauß-Strahl sammelt die Gouy-Phase jedoch nur einmal auf und gerät mit der treibenden nichtlinearen Polarisation außer Phase.

Zur Berechnung nimmt man zunächst an, dass die fundamentalen Strahlen kollinear sind und identische konfokale Parameter, Fokusorte und lineare Polarisierungen haben. Der konfokale Parameter b ist über $b = kw_0^2$ mit dem Strahlradius w_0 der Strahlen im Fokus verknüpft und wird oft einfach als b -Parameter bezeichnet. Weiterhin sollen die fundamentalen Strahlen ohne Absorption in einem homogenen rechteckigen Dichteprofil des nichtlinearen Mediums propagieren. Für die Teilchenzahldichte $N(z)$ gilt also:

$$N(z) = \begin{cases} N & , \quad \text{für } -L/2 < z < L/2 \\ 0 & , \quad \text{sonst} \end{cases} . \quad (2.7)$$

Berechnet man die konvertierte Leistung bei der Summenfrequenz P_4 aus den eingehenden Leistungen der fundamentalen Strahlen $P_{1,2,3}$, so ergibt sich [Bjo75, BC90]:

$$P_4 = \frac{9}{4} \frac{\omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4}{\pi^2 \epsilon_0^2 c^6} N^2 |\chi_a^{(3)}|^2 P_1 P_2 P_3 F(b\Delta k, b/L) . \quad (2.8)$$

In dieser Formel wurde benutzt, dass die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung $\chi^{(3)} = N\chi_a^{(3)}$ proportional zur Atomdichte des nichtlinearen Mediums ist. Demzufolge hat $\chi_a^{(3)}$ die Bedeutung einer Suszeptibilität pro Atomdichte. Die Funktion $F(b\Delta k, b/L)$ wird als Phasenanpassungsintegral bezeichnet. Sie ist dimensionslos und enthält alle Informationen über die Phasenanpassung. Mit dem Phasenanpassungsintegral lässt sich berechnen, welcher Wert von Δk für den Fall fokussierter Gauß-Strahlen ideal ist. Das Phasenanpassungsintegral berechnet sich wie folgt:

$$F(b\Delta k, b/L) = \left| \int_{-L/2}^{L/2} dz \frac{2be^{-i\Delta kz}}{(b + 2iz)^2} \right|^2 . \quad (2.9)$$

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

$$F(b\Delta k) = \begin{cases} \pi^2 (b\Delta k)^2 e^{b\Delta k} & , \quad \text{für } \Delta k < 0 \\ 0 & , \quad \text{für } \Delta k \geq 0 \end{cases} . \quad (2.10)$$

Damit hängt die Phasenanpassung nur noch von der Fokussierung, repräsentiert durch den konfokalen Parameter b , und der Phasenfehlanpassung Δk ab. Der Verlauf des Phasenanpassungsfunktion $F(b\Delta k)$ ist in Abbildung 2.1(a) gezeigt und wird maximal für $b\Delta k = -2$. Die Phasenanpassung kann im Experiment zum Beispiel durch Zugabe eines zweiten Gases eingestellt werden. Oft werden dafür Edelgase verwendet. Dazu wird der Druck des zugegebenen Gases so gewählt, dass mit der zusätzlichen Dispersion dieses Gases insgesamt $b\Delta k = -2$ gilt. Eine andere Möglichkeit ist die Phasenanpassung durch einen kleinen Winkel zwischen den fundamentalen Strahlen zu erreichen.

In unserem Experiment ist die Dispersion des UV-Strahls durch das nahe 6^3P Niveau so groß, dass enorme Edelgasdrücke benötigt würden, um Phasenanpassung zu erreichen.

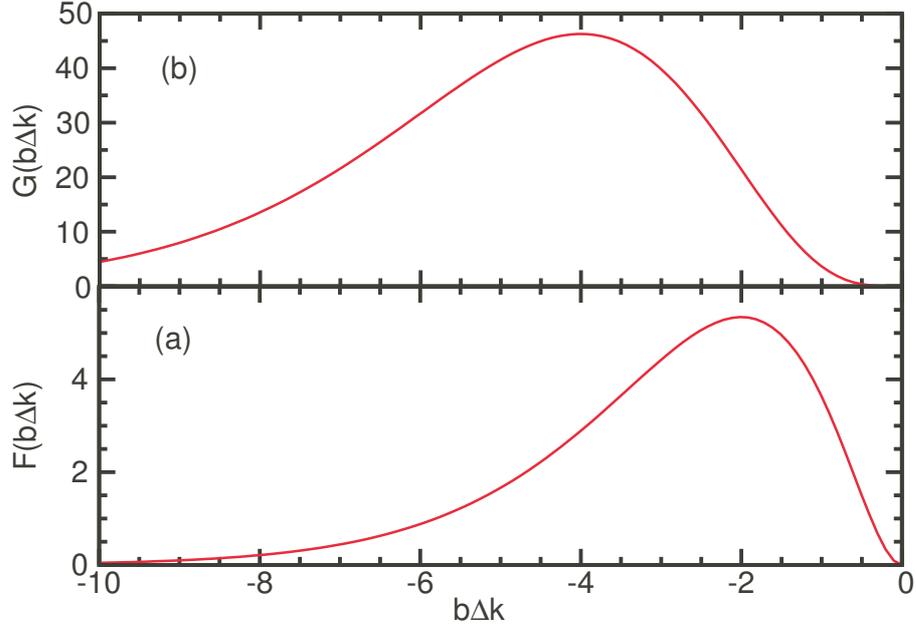


Abbildung 2.1: Phasenanpassungsfunktion für Vier-Wellen-Summenfrequenzmischen. (a) Aufgetragen ist die allgemeine Phasenanpassungsfunktion $F(b\Delta k)$ über dem Produkt aus b -Parameter und Phasenfehlpassung Δk . Die Phasenanpassung wird maximal bei $b\Delta k = -2$. (b) zeigt die Phasenanpassungsfunktion $G(b\Delta k)$ für den Fall, dass die Dichte des nichtlinearen Mediums zur Phasenanpassung verwendet wird. Dann liegt das Maximum bei $b\Delta k = -4$.

Große Gasdrücke ziehen eine große Druckverbreiterung nach sich, was zu Absorption des UV-Strahls und einer Verminderung der wichtigen Zwei-Photonen-Resonanz führt. Dieser Zusammenhang wird in Kapitel 2.3 noch genauer erklärt. Stattdessen kann die Phasenanpassung auch direkt über die Teilchenzahldichte des nichtlinearen Mediums, in unserem Fall also des Quecksilberdampfs, eingestellt werden. Auch die Phasenfehlpassung Δk ist, bei vernachlässigbarer Dispersion eines zweiten Gases, proportional zur Teilchenzahldichte $\Delta k \propto N$. Wenn die Phasenanpassung über die Teilchenzahldichte eingestellt wird, muss bedacht werden, dass die Teilchenzahldichte in Gleichung 2.8 einmal über Δk im Phasenanpassungsintegral beiträgt und auch noch als N^2 im Vorfaktor. Es ist deshalb zweckmäßig, die Dichte aus dem Vorfaktor über die dimensionslose Größe $b\Delta k$ mit in das Phasenanpassungsintegral zu ziehen. Dann ergibt sich:

$$P_4 = \frac{9 \omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4}{4 \pi^2 \epsilon_0^2 c^6} \frac{1}{b^2} \left(\frac{N}{\Delta k} \right)^2 |\chi_a^{(3)}|^2 P_1 P_2 P_3 G(b\Delta k) \quad . \quad (2.11)$$

Da $\frac{N}{\Delta k}$ unabhängig von der Teilchenzahldichte ist, gilt es jetzt die neue Funktion $G(b\Delta k)$ mit der Teilchenzahldichte N zu maximieren. Die Phasenanpassungsfunktion $G(b\Delta k)$ ergibt sich aus der Funktion $F(b\Delta k)$ wie folgt:

$$G(b\Delta k) = (b\Delta k)^2 F(b\Delta k) \quad . \quad (2.12)$$

Das Maximum dieser Funktion liegt bei $b\Delta k = -4$, also einer größeren Dichte als bei

der Phasenanpassung mit einem zweiten Gas. Dies wird in Abbildung 2.1(b) gezeigt. Die unterschiedliche Position der Maxima erklärt sich aus dem Vorfaktor N^2 in Gleichung 2.8. Der Wert $b\Delta k = -4$ stellt den besten Kompromiss aus möglichst großer Dichte und dennoch passabler Phasenanpassung dar.

Die beiden Gleichungen 2.8 und 2.11 sind die zentralen Zusammenhänge für die Optimierung der Lyman- α Erzeugung. Man erkennt daraus, dass möglichst hohe Leistungen der fundamentalen Laserstrahlen benötigt werden. Wie diese mit dem verwendeten Lasersystem erzeugt werden, wird im experimentellen Aufbau in Kapitel 3 beschrieben. Zusätzlich muss die nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ möglichst groß sein. Wie das erreicht werden kann, wird im nächsten Abschnitt 2.3 dieses Kapitels erklärt. Außerdem muss die Phasenanpassung eingestellt werden, was im Abschnitt 2.4 weiter besprochen wird. Die Teilchendichte N und der konfokale Parameter b sind über die Phasenanpassungsbedingung miteinander verknüpft. In Gleichung 2.8 erkennt man, dass eine hohe Dichte vorteilhaft ist. Aus der Phasenanpassungsbedingung $b\Delta k = -2$ folgt dann, wenn $\Delta k \propto N$ ist, ein kleiner b -Parameter. In Gleichung 2.11 erkennt man, dass kleine b -Parameter, also harte Fokussierung, vorteilhaft ist. Aus der Phasenanpassungsbedingung $b\Delta k = -4$ folgt dann umgekehrt eine hohe Dichte.

Mit den Gleichungen 2.8 und 2.11 lassen sich - wie gezeigt - bereits die wichtigsten Zusammenhänge erklären. Allerdings wird für die Herleitung die Absorption der Strahlungsfelder im Medium vernachlässigt. Das UV-Lasersystem bei 253,7 nm kann beliebig nahe an die $6^1S\text{-}\beta 6^3P$ Resonanz in Quecksilber eingestellt werden. Das erhöht auf der einen Seite die nichtlineare Suszeptibilität, wie in Kapitel 2.3 gezeigt wird, führt aber auf der anderen Seite auch zu steigender Absorption. Um diesen für uns wichtigen Bereich auch theoretisch beschreiben zu können, muss die Absorption in die Rechnung mit einbezogen werden. Weiterhin wurde die Annahme gemacht, dass alle fundamentalen Strahlen den gleichen b -Parameter haben. Im Experiment haben die fundamentalen Strahlen jedoch unterschiedliche b -Parameter (siehe Kapitel 3.4). Daher wurde eine Rechnung, basierend auf den Arbeiten von Lago et. al. [LHW87, Lag87] entwickelt, die diese beiden Gegebenheiten mit einbezieht [Mar09]. Zusätzlich erlaubt diese Rechnung unterschiedliche Dichteprofile, zum Beispiel ein Gauß-förmiges Dichteprofil, des nichtlinearen Mediums und unterschiedliche Fokusorte der Fundamentalstrahlen, zu betrachten. Um einen Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit der Theorie zu ermöglichen, werden im Folgenden die Ergebnisse dieser Rechnung kurz zusammengefasst, wobei sie auf den Fall von rechteckigen Dichteprofilen reduziert werden. Das ist, wie in den experimentellen Ergebnissen Kapitel 4.2 gezeigt wird, völlig ausreichend. Dadurch vereinfachen sich die Formeln deutlich.

Für die Rechnung werden die b -Parameter der fundamentalen Strahlen mit $b_{1,2,3}$ bezeichnet. Die Wellenvektoren der vier beteiligten Strahlen werden mit $k_{1,2,3,4}$ und die Absorptionskonstanten mit $\alpha_{1,2,3,4}$ bezeichnet. Die Wellenvektoren sind hier die reellen Wellenvektoren. Der absorbierende Anteil ist in den Absorptionskonstanten α_i enthalten. Die Strahlen sollen weiterhin entlang der z -Achse mit gleichen, linearen Polari-

sationen propagieren. Zur Abkürzung werden die Strahlparameter der fundamentalen Strahlen in folgenden Größen zusammengefasst:

$$f(z) = \sum_{s=1}^3 \frac{k_s}{b_s} \prod_{\substack{j=1 \\ j \neq s}}^3 (1 + i\epsilon_j) \quad , \quad (2.13)$$

$$g(z) = \prod_{j=1}^3 (1 + i\epsilon_j) \quad . \quad (2.14)$$

In dem Parameter $\epsilon_j = 2/b_j(z - z_{0,j})$ sind die b -Parameter b_j und Fokusorte $z_{0,j}$ der einzelnen Strahlen zusammengefasst. Führt man mit Hilfe des so genannten Integralgleichungsformalismus [Mar09] die Berechnung aus, erhält man formal Zusammenhang aus Gleichung 2.8. Die Phasen Anpassungsfunktion bekommt aber eine komplexere Form:

$$F = 16k_4 \left(\prod_{j=1}^3 \frac{1}{b_j} \right) \int_0^\infty r' \times \left| \exp \left[-\frac{\alpha_4}{2} L \right] \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \frac{1}{a(z, z')} \exp \left[-r'^2 q(z, z') \right] \right. \\ \left. \times \exp \left[-i \left(\Delta k z + i \frac{\Delta \alpha}{2} \left(z + \frac{L}{2} \right) \right) \right] dz \right|^2 dr' \quad . \quad (2.15)$$

Der besseren Lesbarkeit halber wurden folgende zusätzliche Zusammenfassungen gemacht:

$$\Delta \alpha = \alpha_4 - \alpha_1 - \alpha_2 - \alpha_3 \quad , \quad (2.16)$$

$$a(z, z') = g(z) - \frac{2i(z - z')}{k_4} f(z) \quad , \quad (2.17)$$

$$q(z, z') = \frac{f(z)}{a(z, z')} \quad . \quad (2.18)$$

Dabei ist z' der Ort der Beobachtungsebene. Dieses Integral lässt sich nur noch numerisch lösen. Die entsprechenden Mathematica Programme finden sich im Anhang D. Selbstverständlich werden die Ergebnisse der einfacheren Phasen Anpassungsfunktion aus Gleichung 2.8 reproduziert, wenn mit gleichen b -Parametern und Fokusorten, langer Zelle und unter Vernachlässigung der Absorption gerechnet wird. Im Experiment wird die Phasen Anpassung über die Temperatur und damit über die Teilchenzahldichte eingestellt. Es ist daher günstig, analog zum Vorgehen bei den einfachen Phasen Anpassungsfunktionen Gleichungen 2.8 und 2.11, die Teilchenzahldichte wieder mit in die Phasen Anpassungsfunktion zu ziehen. Um die Phasen Anpassungsfunktion dimensionslos zu halten, wird der Faktor $(b_1 \Delta k)^2$ mit ins Integral hineingezogen. Die Auswahl des b -Parameters des ersten Strahls ist dabei willkürlich. Damit ergibt sich:

$$P_4 = \frac{9 \omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4}{4 \pi^2 \epsilon_0^2 c^6} \left(\frac{N}{\Delta k} \right)^2 \frac{1}{b_1^2} |\chi_a^{(3)}|^2 P_1 P_2 P_3 G \quad , \quad (2.19)$$

$$G = (b_1 \Delta k)^2 F \quad . \quad (2.20)$$

Diese erweiterten Phasenanpassungsfunktionen liegen bereits deutlich näher an den Gegebenheiten des Experiments. Man muss sich aber darüber im Klaren sein, dass zwei Strahleigenschaften weiterhin nicht integriert sind. Zum Einen können Strahlen astigmatisch sein, das heißt unterschiedliche Strahlradien und Fokusorte in horizontaler und vertikaler Richtung haben. Zum Anderen sind die Strahlen in der Realität keine reinen Gauß-Strahlen, sondern haben Anteile höherer Moden. Eine wichtige Erkenntnis, die aus den erweiterten Phasenanpassungsfunktionen gezogen werden kann, ist, dass es günstig ist, jeden der fundamentalen Strahlen einzeln so hart wie möglich zu fokussieren. Damit ergibt sich eine höhere konvertierte Leistung, als wenn versucht wird, möglichst gleiche b -Parameter einzustellen und dadurch zum Beispiel die beiden kleineren b -Parameter dem größeren anzupassen. In unserem Experiment erfährt nur der UV-Laser bei 253,7 nm eine relevante Absorption. Für eine Verstimmung von 50 GHz bei 100 mbar Helium-Puffergas ist die Absorption $\alpha_1 \approx 0,04 \text{ mm}^{-1}$. Bei b -Parametern im Bereich von 1 mm kann, wie die Rechnung zeigt, die Absorption einfach vor das Integral gezogen werden. Das heißt, der Großteil der Absorption findet auf dem Weg zum Fokus statt und der Anteil an Absorption im Fokus, wo die Lyman- α Strahlung erzeugt wird, kann vernachlässigt werden. Der ideale Wert für Δk lässt sich nicht mehr so einfach aus der Phasenanpassungsfunktion G erkennen, mit gegebenen b -Parametern der fundamentalen Strahlen aber leicht berechnen. Für unseren Fall mit b -Parametern von $b_1 = 0,6 \text{ mm}$, $b_2 = 0,78 \text{ mm}$ und $b_3 = 1,31 \text{ mm}$ ergibt sich $\Delta k = -4500 \text{ m}^{-1}$.

2.3 Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität

Die nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ geht nach Gleichung 2.8 quadratisch in die erzeugte Lyman- α Leistung ein. Es ist also von großer Bedeutung, die nichtlineare Suszeptibilität so weit wie möglich zu erhöhen. Dies kann geschehen, indem Resonanzen im nichtlinearen Medium ausgenutzt werden. In der allgemeinen Form enthält die nichtlineare Suszeptibilität eine Vielzahl von Termen, die alle möglichen Prozesse, wie zum Beispiel Differenzfrequenzmischung, und alle möglichen Resonanzen der eingehenden Strahlungsfelder mit den atomaren Niveaus enthalten [Boy08]. Im vorgestellten Experiment wird eine so genannte Zwei-Photonen-Resonanz ausgenutzt, um die nichtlineare Suszeptibilität zu erhöhen. Dabei entspricht die Summe der Frequenz zweier Laser der $6^1\text{S}-7^1\text{S}$ Übergangsfrequenz in Quecksilber. Dadurch vereinfacht sich die nichtlineare Suszeptibilität, da Terme, die diese Zwei-Photonen-Resonanz nicht enthalten, vernachlässigt werden können. Es wird weiter davon ausgegangen, dass die eingehen-

den Strahlen die gleiche, lineare Polarisation haben, so dass $\chi^{(3)}$ als Skalar behandelt werden kann. Nach Smith und Alford [SA87] ergibt sich:

$$\chi^{(3)} = \frac{N}{6\epsilon_0 \hbar^3} S(\omega_1, \omega_2) \chi_{12} \chi_{34} \quad . \quad (2.21)$$

Die einzelnen Beiträge berechnen sich wie folgt:

$$\chi_{12} = \sum_m \left(\frac{p_{nm} p_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_1} + \frac{p_{nm} p_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_2} \right) \quad , \quad (2.22)$$

$$\chi_{34} = \sum_\nu \left(\frac{p_{n\nu} p_{\nu g}}{\omega_{g\nu} - \omega_4} + \frac{p_{n\nu} p_{\nu g}}{\omega_{g\nu} + \omega_3} \right) \quad , \quad (2.23)$$

und

$$S(\omega_1 + \omega_2) = \frac{1}{\omega_{ng} - (\omega_1 + \omega_2)} \quad . \quad (2.24)$$

Die partiellen Suszeptibilitäten χ_{12} und χ_{34} ähneln Suszeptibilitäten erster Ordnung. Sie enthalten die Übergangsmatrixelemente p_{ij} der beteiligten Niveaus und die dazugehörigen Übergangsfrequenzen ω_{ij} . Die Bedeutung der Indizes wird in Abbildung 2.2 verdeutlicht. Die Summationen gehen über alle Niveaus m und ν , die vom Grundzustand g und dem oberen Niveau der Zwei-Photonen-Resonanz n aus mit einem Dipolübergang erreicht werden können, inklusive des Kontinuums. Die Funktion $S(\omega_1 + \omega_2)$ beschreibt die Zwei-Photonen-Resonanz. Die Zwei-Photonen-Resonanz wird durch Laserstrahlen der Frequenzen ω_1 und ω_2 erreicht. Die Frequenz des dritten Laserstrahls ω_3 legt die Frequenz der erzeugten VUV-Strahlung ω_4 fest. Das Produkt der beiden Übergangsmatrixelemente im Zähler der partiellen Suszeptibilitäten gibt an, wie stark das betrachtete Niveau an den Grundzustand beziehungsweise das obere Niveau der Zwei-Photonen-Resonanz koppelt. Der Nenner gibt an, wie nahe die Strahlungsfelder an der betrachteten Resonanz sind. Die partiellen Suszeptibilitäten lassen sich also erhöhen, indem die Frequenzen der Strahlungsfelder nahe an starken Übergängen im Medium gewählt werden.

Nun müssen 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 nur Singulett P-Niveaus n^1P_1 erreicht werden und wegen der intermediären Kopplung in Quecksilber auch Triplet P-Niveaus n^3P_1 [Dem07]. Nimmt man wieder an, dass die Laserstrahlen in x -Richtung polarisiert sind und 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]:

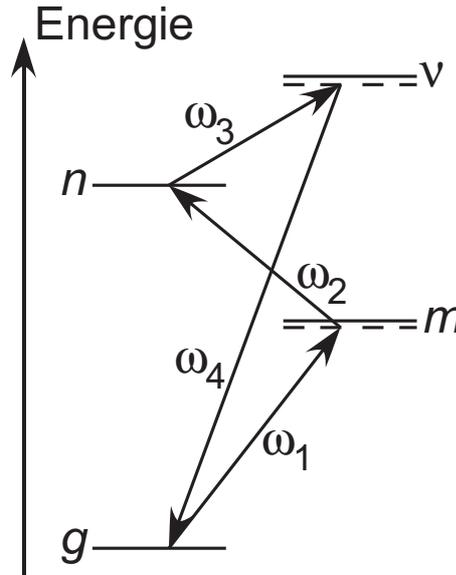


Abbildung 2.2: Vier-Wellen-Mischen mit einer Zwei-Photonen-Resonanz. Vom Grundzustand g aus wird mit den eingehenden Frequenzen ω_1 und ω_2 die Zwei-Photonen-Resonanz mit dem oberen Niveau n eingestellt. Die Frequenz ω_3 des dritten eingehenden Strahlungsfeldes legt die Frequenz der erzeugten Strahlung ω_4 fest. Zur nichtlinearen Suszeptibilität tragen alle Niveaus m und ν , die aus dem Grundzustand über einen Dipolübergang erreicht werden können, bei.

$$p_{ba} = ea_0 \sqrt{\frac{3[(J+1)^2 - M_J^2]g_u f_{ab} R_y}{(J+1)(2J+1)(2J+3)\hbar\omega_{ab}}} \quad (2.25)$$

In dieser Gleichung 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 Oszillatorstärken 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 ($^2D_{3/2}$) $6p^{-1}P$ 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].

Die Zwei-Photonen-Resonanz wird im Experiment mit dem 7^1S Zustand eingestellt. Genau auf Zwei-Photonen-Resonanz ($\omega_1 + \omega_2 = \omega_{7^1S}$) divergiert die Funktion $S(\omega_1 + \omega_2)$, was unphysikalisch ist. Deshalb muss für eine korrekte Behandlung die Linienbreite der Zwei-Photonen-Resonanz 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 2.24 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 Doppler-Verbreiterung 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 2.24 mit der Wahrscheinlichkeitsverteilung der Geschwindigkeiten in Strahlrichtung gewichtet und über die Geschwindigkeit integriert werden. Es ergibt sich:

$$S(\omega_1 + \omega_2) = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_w} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{(-\frac{v}{v_w})^2}}{\omega_{\gamma_{1S}} + kv - i\gamma_{\gamma_{1S}}/2 - (\omega_1 + \omega_2)} dv \quad , \quad (2.26)$$

mit der v_w wahrscheinlichsten Geschwindigkeit bei einer Temperatur T :

$$v_w = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}} \quad . \quad (2.27)$$

Dabei ist k_B die Boltzmann-Konstante und m die Masse der Quecksilberatome. Die Funktion $S(\omega_1 + \omega_2)$ geht quadratisch in die Lyman- α Leistung ein. Die Form der Zwei-Photonen-Resonanz 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]:

$$S(\omega_1 + \omega_2) = \frac{1}{\omega} Z(\zeta) \quad , \quad (2.28)$$

mit

$$Z(\zeta) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-x^2}}{x - \zeta} dx \quad , \quad (2.29)$$

$$\zeta = (\omega_1 + \omega_2 + i\gamma_{\gamma_{1S}}/2 - \omega_{\gamma_{1S}}) \frac{1}{\omega} \quad , \quad (2.30)$$

$$w = \omega_{\gamma_{1S}} \frac{v_w}{c} = \frac{\Delta\omega_D}{2\sqrt{\ln 2}} \quad . \quad (2.31)$$

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

$$Z(\zeta) = i\sqrt{\pi}e^{-\zeta^2} [1 + \operatorname{erf}(i\zeta)] \quad . \quad (2.32)$$

Das im Experiment verwendete Quecksilber ist ein natürliches Isotopengemisch. Durch die Isotopieverschiebung spaltet sich die Zwei-Photonen-Resonanz in die einzelnen Isotope auf. Die Funktion $S(\omega_1 + \omega_2)$ muss für jedes Isotop einzeln berechnet und dann mit der Häufigkeit der Isotope gewichtet werden. Die Isotopieverschiebung und die Häufigkeit der Isotope wird im Anhang A gegeben. Durch die Isotopieverschiebung kann nur die Zwei-Photonen-Resonanz eines Isotops voll ausgenutzt werden.

Bis hierhin entspricht die Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität genau der von Smith und Alford vorgestellten Berechnung [SA87]. Im Folgenden werden die Änderungen diskutiert, die sich ergeben, wenn die Frequenz des UV-Lasers nahe an die 6^3P Resonanz eingestellt wird. Die wichtigste Änderung ist, dass sich die partielle Suszeptibilität χ_{12} und damit die gesamte nichtlineare Suszeptibilität stark erhöht. Diese Erhöhung wird in Abbildung 2.3 gezeigt, wo die berechnete nichtlineare Suszeptibilität über der Verstimmung des UV-Lasers aufgetragen ist. Die UV-Verstimmung $\Delta_{UV} = \nu_{6^3P} - \nu_{UV}$ ist in dieser Arbeit definiert als Differenz der Frequenz des 6^3P Niveaus des ^{202}Hg Isotops und der Frequenz der UV-Strahlung. Das heißt, ein rot verstimmtter UV-Laser ergibt eine positive UV-Verstimmung. Berechnet wurde die nichtlineare Suszeptibilität mit einer Teilchendichte, die einer Temperatur des Quecksilberdampfes von 180°C entspricht. Man erkennt, dass sich durch kleinere UV-Verstimmungen die nichtlineare Suszeptibilität um Größenordnungen erhöhen lässt. Der früher verwendete frequenzverdoppelte Argon-Ionen Laser hat eine Verstimmung von 16 THz zum 6^3P Niveau, ist also in der Abbildung gar nicht mehr eingezeichnet. Mit dieser Verstimmung ergibt sich bei einer Temperatur von 180°C ein Betragsquadrat der nichtlinearen Suszeptibilität von $|\chi^{(3)}|^2 = 2,6 \times 10^{-43}$, also nur $\frac{1}{636}$ des Betragsquadrats der nichtlinearen Suszeptibilität bei der gleichen Temperatur und 150 GHz UV-Verstimmung.

Bei kleineren Verstimmungen des UV-Laser zur 6^1S - 6^3P Resonanz wird die partielle Suszeptibilität χ_{12} aus Gleichung 2.22 durch den ersten Term und darin speziell den Beitrag des 6^3P Niveaus dominiert. Die höheren Niveaus und der zweite Term, der den Beitrag der blauen Strahlung bei 407,9 nm zur partiellen Suszeptibilität darstellt, werden immer unwichtiger und können für kleine UV-Verstimmungen zunehmend vernachlässigt werden. Die gestrichelte Linie in Abbildung 2.3 wurde ohne höhere Niveaus und den zweiten Term berechnet und zeigt dies. Bei großen Verstimmungen tragen die höheren Niveaus und die blaue Strahlung bei 407,9 nm noch merklich zur nichtlinearen Suszeptibilität bei, für kleine Verstimmungen kann ihr Einfluss immer mehr vernachlässigt werden. Das sieht man daran, dass die Kurven für kleine Verstimmungen zusammenlaufen.

Bei kleinen Verstimmungen des UV-Lasers zur 6^3P Resonanz wird es außerdem notwendig, wie auch zuvor schon in der Zwei-Photonen-Resonanz, die Isotopieverschiebung und Hyperfeinstrukturaufspaltung des 6^3P Niveaus zu berücksichtigen. Die Werte der Aufspaltung des 6^3P Niveaus können der Tabelle A.2 im Anhang entnommen werden. Bei der Berechnung ist es wichtig, zunächst die nichtlineare Suszeptibilität für jedes Isotop einzeln zu berechnen. Dabei muss in der Summe über die erreichbaren Niveaus in der partiellen Suszeptibilität χ_{12} bei den ungeraden Isotopen zusätzlich über die verschiedenen Hyperfein-Niveaus summiert werden. Die partielle Suszeptibilität χ_{34} bleibt unverändert und ist für jedes Isotop gleich. Dann muss die Zwei-Photonen-Resonanz für das jeweilige Isotop berechnet und das Produkt der drei Beiträge gebildet werden. Anschließend werden die nichtlinearen Suszeptibilitäten mit den Häufigkeiten der Isotope gewichtet und addiert. Der innere Graph in Abbildung 2.3 zeigt den Einfluss der

Isotopieverschiebung und Hyperfeinstrukturaufspaltung, der sich bei kleinen Verstimmungen bemerkbar macht. Die gepunktete Linie ist ohne diese Aufspaltung berechnet. Für große Verstimmungen reicht das aus. Die gepunktete Linie ohne Aufspaltung geht für kleine Verstimmungen in die durchgezogene Linie, die mit Aufspaltung berechnet wurde, über. Man erkennt, dass der Einfluss der Isotopie und Hyperfeinstrukturaufspaltung nicht sonderlich groß ist. Das liegt daran, dass für die Berechnung davon ausgegangen wurde, dass die Zwei-Photonen-Resonanz mit dem häufigsten ^{202}Hg Isotop eingestellt ist. Dieses Isotop wird auch für die Berechnung ohne Isotopie und Hyperfeinstrukturaufspaltung verwendet. Die Beiträge der anderen Isotope und deren Hyperfeinkomponenten zur partielle Suszeptibilität χ_{12} werden durch die größere Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz unterdrückt.

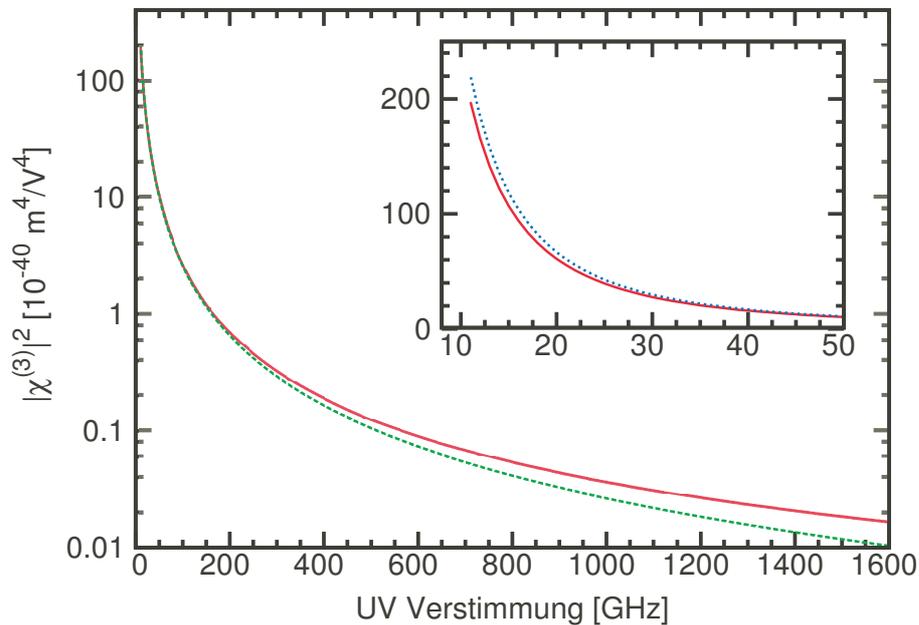


Abbildung 2.3: Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität durch kleinere UV-Verstimmungen. Aufgetragen ist das Betragsquadrat der berechneten nichtlinearen Suszeptibilität über der Verstimmung des UV-Lasers zur 6^3P Resonanz $\Delta_{UV} = \nu_{6^3P} - \nu_{UV}$. Die rote (durchgezogene) Linie ist mit höheren Niveaus und unter Berücksichtigung der Isotopie und Hyperfeinstrukturaufspaltung des 6^3P Niveaus bei einer Temperatur des Quecksilberdampfs von 180°C berechnet. Die grüne (gestrichelte) Linie wurde nur mit den 6^3P Niveaus der Isotope berechnet unter Vernachlässigung des Beitrags durch den blauen Laser zur partiellen Suszeptibilität χ_{12} . Der innere Graph zeigt den Einfluss der Isotopie und Hyperfeinstrukturaufspaltung, der sich bei kleinen Verstimmungen bemerkbar macht. Die blaue (gepunktete) Linie ist ohne Isotopie und Hyperfeinstrukturaufspaltung berechnet.

Die partielle Suszeptibilität χ_{34} ist, da kein Niveau wirklich nahe an der Lyman- α Strahlung liegt, um ein Vielfaches kleiner als χ_{12} . Um χ_{34} zu berechnen, müssen alle Niveaus aus Tabelle A.1 berücksichtigt werden. Generell sind die Singulett-Niveaus wichtiger als die Triplet-Niveaus. Sie haben größere Oszillatorstärken weil auch das 7^1S Niveau ein Singulett-Niveau ist. Den größten Beitrag liefern das 9^1P und das autoionisierende

$(^2D_{3/2})6p' ^1P$ -Niveau.

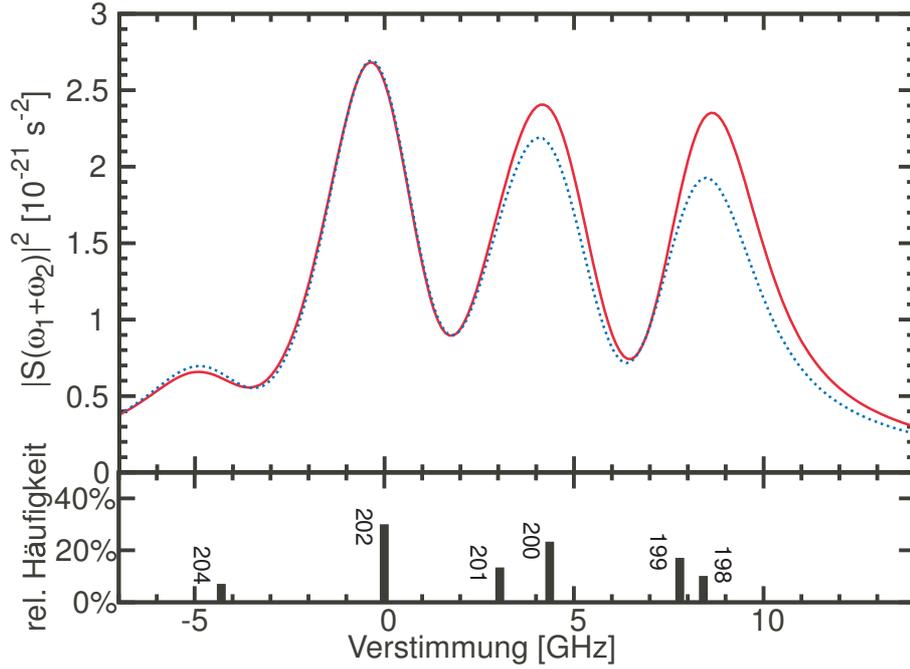


Abbildung 2.4: Form der Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal. Die rote (durchgezogene) Linie zeigt die berechnete Form der Zwei-Photonen-Resonanz nach Gleichung 2.26 über der Verstimmung zur Resonanz des ^{202}Hg Isotops $\Delta_{2\gamma} = \nu_{\text{blau}} + \nu_{\text{UV}} - \nu_{71S}$. Für die 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 Zwei-Photonen-Resonanz und die relative Häufigkeit der einzelnen Isotope gezeigt. Die gepunktete Linie zeigt den Einfluss der Isotopie und Hyperfeinstrukturverschiebung nach Gleichung 2.33. Angenommen wurde eine UV-Verstimmung zum 6^3P Niveau des ^{202}Hg Isotops von 50 GHz und eine homogene Breite von $\gamma_{6^3P} = 1,25 \text{ GHz}$. Die gepunktete Linie wurde dazu so skaliert, dass die Maxima des ^{202}Hg Isotops dieselbe Höhe haben.

Die Form der Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal wurde bisher durch die Funktion $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ beschrieben. Für kleine UV-Verstimmungen macht sich auch hier die Isotopie und Hyperfeinstrukturaufspaltung bemerkbar. Für einige Isotope oder Hyperfeinkomponenten ist die UV-Strahlung näher resonant als für andere. Deren Anteil an der Zwei-Photonen-Resonanz wird dann stärker gewichtet. Dies lässt sich rechnerisch durch das Produkt $|\chi_{12}S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ beschreiben:

$$\chi_{12}S(\omega_1 + \omega_2) = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_w} \sum_m \int_{-\infty}^{\infty} dv e^{-\left(\frac{v}{v_w}\right)^2} \frac{p_{nm}p_{mg}}{\omega_{6^3P,m} + kv - i\gamma_{6^3P}/2 - \omega_1} \times \frac{1}{\omega_{71S} + kv - i\gamma_{71S}/2 - (\omega_1 + \omega_2)} \quad (2.33)$$

Es wird hier zusätzlich auch die Doppler-Verbreiterung und die homogene Breite γ_{6^3P} des 6^3P Niveaus berücksichtigt. Summiert wird über die Komponenten der Hyper-

feinstruktur. Das heißt, für die geraden Isotope muss gar nicht summiert werden. Dieses Produkt muss nun wieder für alle Isotope ausgerechnet und, mit der Häufigkeit der Isotope gewichtet, summiert werden. In Abbildung 2.4 wird die Form der Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal als Funktion der Verstimmung zu Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg Isotops gezeigt. Einmal berechnet mit Gleichung 2.26, was für große UV-Verstimmungen zutreffend ist und einmal nach Gleichung 2.33, was die Abweichungen für kleine UV-Verstimmungen zeigt. Angenommen wurde eine UV-Verstimmung zum 6^3P Niveau des ^{202}Hg Isotops von 50 GHz. Die Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz wird definiert als $\Delta_{2\gamma} = \nu_{blau} + \nu_{UV} - \nu_{7^1\text{S}}$, 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 Isotops ist. Man erkennt in der Abbildung, dass vor allem die Maxima der Isotope $^{201}\text{Hg}/^{200}\text{Hg}$ und $^{199}\text{Hg}/^{198}\text{Hg}$ niedriger werden. Das erklärt sich daraus, dass zum Beispiel das ^{198}Hg Isotop den UV-Laser um 10 GHz mehr verstimmt sieht als das ^{202}Hg Isotop. Dem gegenüber ist das Maximum des ^{204}Hg Isotops leicht erhöht, da für es der UV-Laser 5 GHz näher verstimmt ist.

2.4 Berechnung der Phasenanpassung

Um Phasenanpassung zu erreichen muss nach Abschnitt 2.2 der Wert der Phasenfehl-anpassung Δk an die b -Parameter der fundamentalen Strahlen angepasst werden. Für gleiche b -Parameter wurde, wenn die Phasenanpassung mit der Temperatur und damit mit der Teilchenzahldichte eingestellt wird, ein Wert von $\Delta k = -4/b$ hergeleitet. In diesem Abschnitt wird gezeigt, wie sich Δk aus der Resonanzstruktur des nichtlinearen Mediums und dessen Teilchenzahldichte berechnet. Schreibt man Δk zunächst aus, so ergibt sich:

$$\Delta k = n'_4 \frac{2\pi}{\lambda_4} - \left[n'_1 \frac{2\pi}{\lambda_1} + n'_2 \frac{2\pi}{\lambda_2} + n'_3 \frac{2\pi}{\lambda_3} \right] \quad . \quad (2.34)$$

Die Phasenfehl-anpassung Δk ist also abhängig von den beteiligten Vakuumwellenlängen λ_i und den reellen Brechungsindizes n'_i des nichtlinearen Mediums bei diesen Wellenlängen. Nach Gleichung 2.2 ergibt sich der Brechungsindex aus der Suszeptibilität erster Ordnung:

$$n'(\omega) = 1 + \frac{1}{2} \text{Re}[\chi^{(1)}(\omega)] \quad . \quad (2.35)$$

Die Suszeptibilität erster Ordnung berechnet sich in einem isotropen Medium mit entartetem Grundzustand ($J = 0$) aus den Oszillatorstärken f_{ij} der entsprechenden Niveaus wie folgt [Boy03]:

$$\chi^{(1)}(\omega) = N \frac{e^2}{m_e \epsilon_0} \sum_m \frac{f_{gm}}{\omega_{gm}^2 - (\omega - i\gamma_{gm}/2)^2} \quad . \quad (2.36)$$

Dabei bezeichnet m_e die Ruhemasse des Elektrons und γ_{gm} die volle, homogene Linienbreite des Übergangs mit der Übergangsfrequenz ω_{gm} . Summiert wird über alle Zustände m , die aus dem Grundzustand g über einen Dipolübergang erreicht werden können, in unserem Fall also alle n^3P_1 und n^1P_1 Zustände aus der Tabelle A.1 im Anhang. Dort finden sich auch die benötigten Oszillatorstärken. Das Kontinuum wird wieder berücksichtigt, indem das dominierende, erste autoionisierende ($^2D_{3/2}$) $6p'1P$ -Niveau mit in die Summe aufgenommen wird. Die anderen Beiträge sind klein und ohnehin nicht gut bekannt [SA86, AS87]. Dadurch entfällt das sonst nötige Integral über das Kontinuum.

Im Abschnitt 2.2 wurde benutzt, dass Δk proportional zur Teilchendichte N ist. Dieser Zusammenhang läßt sich anhand der Gleichungen 2.34-2.36 leicht nachvollziehen. Wenn man ausnutzt, dass wegen der Energieerhaltung $\frac{1}{\lambda_4} - \frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_3} = 0$ gilt, heben sich die Einsen aus den Brechungsindizes gerade gegeneinander weg. Die übrig bleibenden Terme sind alle proportional zur Teilchendichte N . Es läßt sich deshalb die Phasenfehlpassung pro Atomdichte $\Delta k_a = \Delta k/N$ definieren, die die gesamte Information über die Resonanzstruktur des Mediums enthält:

$$\Delta k_a = \frac{1}{2c}(\omega_4\chi^{(1)}(\omega_4) - \omega_1\chi^{(1)}(\omega_1) - \omega_2\chi^{(1)}(\omega_2) - \omega_3\chi^{(1)}(\omega_3)) \quad . \quad (2.37)$$

Möchte man zusätzlich auch die Dopplerverbreiterung der Übergänge mit einbeziehen, geschieht dies analog zur nichtlinearen Suszeptibilität, indem über alle Geschwindigkeitsklassen integriert und mit der Wahrscheinlichkeit der jeweiligen Geschwindigkeit gewichtet wird:

$$\chi^{(1)}(\omega) = N \frac{e^2}{m_e \epsilon_0} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{\pi} v_w} e^{-(v_z/v_w)^2} \sum_m \frac{f_{gm}}{\omega_{gm}^2 - [\omega (1 + \frac{v_z}{c}) - i\gamma_{gm}/2]^2} dv_z \quad . \quad (2.38)$$

Die wahrscheinlichste Geschwindigkeit v_w ergibt sich wieder aus Gleichung 2.27. Für kleine UV-Verstimmungen zur 6^3P Resonanz muss auch in der linearen Suszeptibilität die Isotopie und Hyperfeinstrukturaufspaltung des 6^3P Niveaus 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. Die entsprechenden Werte finden sich in Tabelle A.2 im Anhang.

In Abbildung 2.5 wird die berechnete Phasenfehlpassung pro Atomdichte Δk_a für verschiedene UV-Verstimmungen gezeigt. Da in der Dispersion im Gegensatz zur nichtlinearen Suszeptibilität nur Übergänge aus dem Grundzustand eine Rolle spielen, ist

die Dispersion der blauen und der grünen Strahlung ω_2 und ω_3 klein. Auch die Dispersion der erzeugten Lyman- α Strahlung ist wegen der kleinen Oszillatorstärken der hohen Niveaus und des mit 3,6 THz nicht geringen Abstands zum nächsten Niveau klein. Daher wird Δk völlig durch die Dispersion des UV-Strahls dominiert, die durch das nahe 6^3P Niveau erhöht ist. Selbst bei der größten von uns experimentell eingestellten UV-Verstimmung von 1,6 THz ist der Beitrag des UV-Strahls zur gesamten Phasenfehlanpassung Δk 82 %.

Die Phasenfehlanpassung pro Atomdichte steigt mit kleineren UV-Verstimmungen. Wie in dem inneren Graphen in Abbildung 2.5 zu erkennen ist, kann sie im Bereich zwischen den Isotopen und deren Hyperfeinstrukturkomponenten sowohl positive wie auch negative Werte annehmen. Bei negativen UV-Verstimmungen ist die Phasenfehlanpassung positiv. Man kann nun auch verstehen, warum zur Lyman- α Produktion die UV-Frequenz stets kleiner als die 6^1S - 6^3P Übergangsfrequenz eingestellt werden muss. Abgesehen von dem Bereich zwischen den Isotopen und deren Hyperfeinstrukturkomponenten, lässt sich nur so die benötigte, insgesamt negative Phasenfehlanpassung erreichen. Es reicht also positive UV-Verstimmungen $\Delta_{UV} = \nu_{6^3P} - \nu_{UV}$ zu untersuchen. Zwischen den Isotopen und deren Hyperfeinstrukturkomponenten ist auch die Absorption der UV-Strahlung sehr groß.

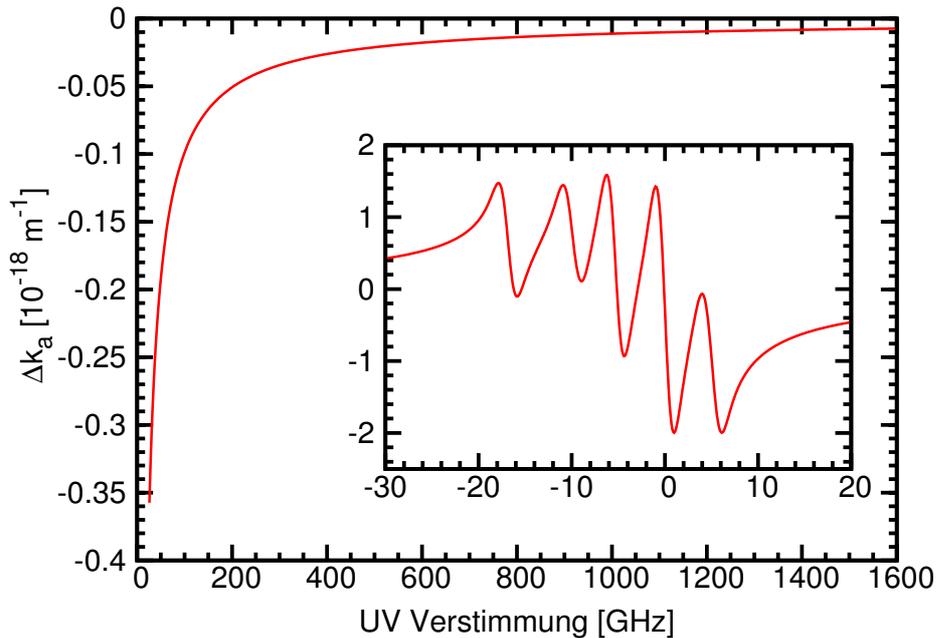


Abbildung 2.5: Abhängigkeit der Phasenfehlanpassung von der UV-Verstimmung. Aufgetragen ist die Phasenfehlanpassung pro Atomdichte über der Verstimmung des UV-Lasers zur 6^3P Resonanz des ^{202}Hg Isotops $\Delta_{UV} = \nu_{6^3P} - \nu_{UV}$. Der innere Graph zeigt die Isotopie und Hyperfeinstrukturaufspaltung bei kleinen Verstimmungen. Gerechnet wurde mit $\gamma_{6^3P} = 1,25 \text{ GHz}$ und $T = 150 \text{ }^\circ\text{C}$.

Um die Teilchenzahldichte bei Phasenanpassung zu berechnen, muss nun einfach die benötigte Phasenfehlanpassung Δk durch den Wert von Δk_a bei der jeweiligen Verstimmung geteilt werden. Der Zusammenhang zwischen Teilchenzahldichte und der

Temperatur für Quecksilber wird in Tabelle A.3 gegeben. Damit kann die Phasenangepassungstemperatur bestimmt werden. Aus der Abbildung 2.5 wird klar, dass wegen der betragsmäßig steigenden Phasenfehlangepassung pro Atomdichte Δk_a bei kleineren UV-Verstimmungen auch kleinere Dichten und damit niedrigere Temperaturen zur Phasenangepassung benötigt werden.

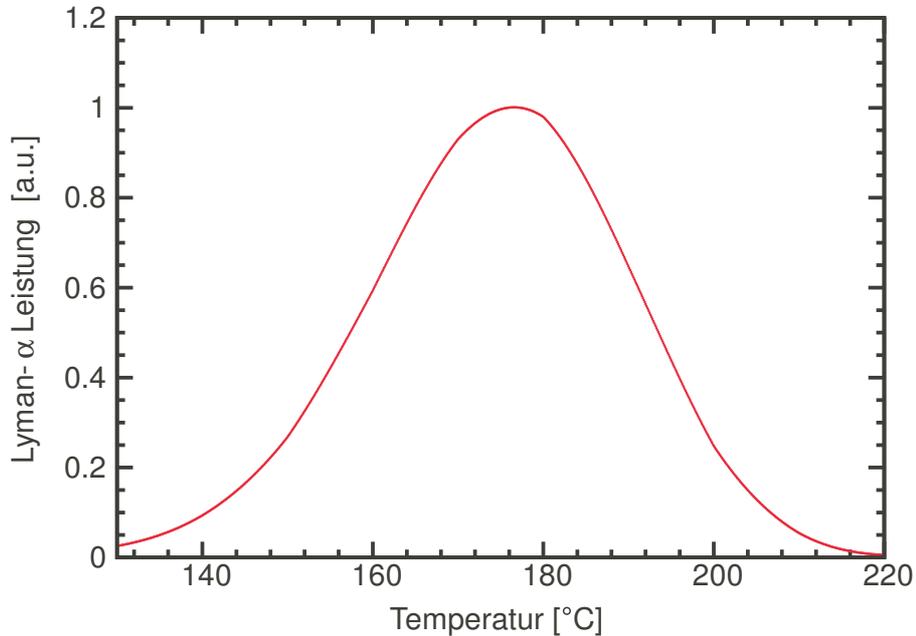


Abbildung 2.6: Berechnete Phasenangepassungskurve für eine UV-Verstimmung von 400 GHz. Aufgetragen ist die relative Lyman- α Leistung über der Temperatur des Quecksilberdampfes. Das Maximum der Phasenangepassung liegt bei 176°C . Gerechnet wurde nach Gleichung 2.20 mit b -Parametern von $b_1 = 0,6\text{ mm}$, $b_2 = 0,78\text{ mm}$ und $b_3 = 1,31\text{ mm}$.

In Abbildung 2.6 wird die berechnete Phasenangepassungskurve bei einer UV-Verstimmung von 400 GHz zur 6^3P Resonanz gezeigt. Dabei wird die berechnete Lyman- α Leistung über der Temperatur des Quecksilberdampfes aufgetragen. Es ist interessant, diese Kurve mit der Phasenangepassungskurve aus Abbildung 2.1b zu vergleichen. Dort wurde die Phasenangepassungskurve über $b\Delta k$ und damit auch über die Teilchenzahldichte N aufgetragen. Es ergibt sich eine stark asymmetrische Funktion. Wenn man den nichtlinearen Zusammenhang zwischen der Teilchenzahldichte und der Temperatur einarbeitet, ist die Phasenangepassungskurve aufgetragen über der Temperatur fast symmetrisch und einer Gaußkurve ähnlich.

Kapitel 3

Aufbau der Lyman- α Quelle

Ein wichtiger Schwerpunkt dieser Arbeit ist der experimentelle Aufbau der Lyman- α Quelle. Der Aufbau umfasst dabei die fundamentalen Lasersysteme, die Strahlüberlagerung, die Quecksilberdampfzelle sowie Detektion und Datenaufnahme. Dieser umfangreiche Aufbau wurde nicht von einer Person alleine bewältigt. So wurde in [Mar09] das Lasersystem für die grüne Strahlung bei 545,5 nm und die Detektion der Lyman- α Photonen bereits ausführlich besprochen. Im folgenden Kapitel wird deshalb der Schwerpunkt auf den eigenen Anteil am experimentellen Aufbau gelegt. Dieser umfasst insbesondere das UV-Lasersystem bei 253,7 nm, die Strahlüberlagerung und die Datenaufnahme. Um dennoch den Überblick über das gesamte Experiment zu ermöglichen, werden auch die anderen Bereiche kurz beschrieben. Abbildung 3.1 zeigt ein Schema des gesamten Festkörper-Lasersystems zur Lyman- α Erzeugung. Aus Kap. 2.2 ist klar, dass hohe Leistungen der fundamentalen Lasersysteme essentiell für eine leistungsstarke Lyman- α Quelle sind. Die Leistungen in Abbildung 3.1 sind die mit unseren Lasersystemen erreichten Spitzenwerte. Die einzelnen Lasersysteme werden in den folgenden Abschnitten von unten beginnend im Einzelnen besprochen.

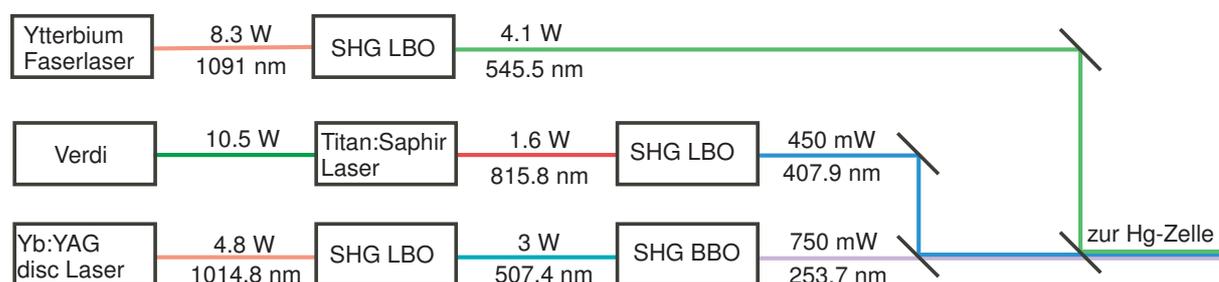


Abbildung 3.1: Schematische Übersicht des Lasersystems. Zur Erzeugung leistungsstarker Fundamentalstrahlen bei den benötigten Wellenlängen wird ein Festkörper-Lasersystem verwendet. Dieses besteht im Einzelnen aus einem frequenzverdoppelten (Second Harmonic Generation im nichtlinearen Kristall LBO) Faserlaser, einem frequenzverdoppelten (SHG in LBO) Titan:Saphir Laser und einem frequenzvervierfachen (SHG in LBO und BBO) Scheibenlaser.

3.1 Das UV-Lasersystem bei 253,7 nm

Das UV-Lasersystem ist gewissermaßen das Herzstück des neuen Lasersystems zur Lyman- α Produktion. Die Möglichkeit einen weiten Frequenzbereich um die $6^1\text{S}-6^3\text{P}$ Resonanz einzustellen, erlaubt die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung, um Größenordnungen zu erhöhen (siehe Gleichung 2.22). Außerdem werden auch ganz allgemein die experimentellen Möglichkeiten für zukünftige Experimente beträchtlich erweitert. So wird zum Beispiel mit dieser UV-Laserquelle die Phasenanpassung bei der geplanten Lyman- α Erzeugung in Hohlfasern [NSBF⁺01] wesentlich flexibler als mit einer festfrequenten UV-Quelle, weil die Dispersion der UV-Strahlung und damit die Phasenanpassung über die Verstimmung zur 6^3P Resonanz eingestellt werden kann. Experimente zur Ausnutzung elektromagnetisch induzierter Transparenz (EIT) [BIH91] für die Lyman- α Erzeugung oder dreifach resonantes Vier-Wellen-Mischen zur Erzeugung von leistungsstarker VUV-Strahlung sind denkbar. Mit diesem Lasersystem wurden bereits Messungen zur Zwei-Photonen-Resonanz mit unterschiedlichen Verstimmungen des UV-Lasersystems zur $6^1\text{S}-6^3\text{P}$ Resonanz durchgeführt und dabei geschwindigkeitsabhängige Doppelresonanzen (velocity selective double resonance) gefunden [Bey08, BKS⁺09]. In der früheren Lyman- α Quelle [EWH99, EWH01] wurde ein frequenzverdoppelter Ar^+ Laser mit einer festen Wellenlänge von 257 nm verwendet. Dies entspricht einer Verstimmung von 16 THz gegenüber der $6^1\text{S}-6^3\text{P}$ Resonanz.

Das hier vorgestellte Lasersystem ist ein frequenzvervierfacher Scheibenlaser des Typs *VersaDisc 1030-50* der Firma ELS (heute SLT) mit Yb:YAG (Ytterbium:Yttrium-Aluminium-Granat) als aktivem Lasermaterial. Eine kurze Zusammenfassung des Aufbaus und der Funktionsweise des Yb:YAG Scheibenlasers wurde bereits anderweitig gegeben [Sch06]. Das Konzept des Scheibenlasers wurde von Giesen et. al. vorgeschlagen [GHV⁺94]. Es beruht darauf, eine dünne Scheibe (bei uns Dicke = 150 μm) als Laserkristall zu verwenden. Diese ist auf der Rückseite hochreflektierend beschichtet und dient als Resonatorspiegel. Die Scheibe wird mit der Rückseite auf eine Kupferwärmesenke gelötet. Dadurch kann die entstehende Wärme über eine im Verhältnis zum Volumen sehr große Fläche effektiv abgeleitet werden und die Ausbildung einer thermischen Linse wird wirkungsvoll unterdrückt. Um dennoch in dem kurzen Kristall die Pumpstrahlung effektiv absorbieren zu können, wird das Pumplicht in einer speziellen Pumpkammergeometrie mehrfach (z.B. in unserer Pumpkammer 24-fach) durch den Kristall geleitet. Das erlaubt hohe Leistungen bei gleichzeitig gutem Strahlprofil. Yb:YAG ist das am häufigsten verwendete Scheibenmaterial. Das Maximum der Laserleistung liegt für dieses Material bei 1030 nm. Der *VersaDisc 1030-50* liefert bis zu 50 W Leistung bei 1030 nm. Bereits früh wurde die Durchstimmbarkeit der Wellenlänge von Yb:YAG Scheibenlasern untersucht [BGK⁺95]. Der damals festgestellte Durchstimmbereich von 1016 nm bis 1062 nm wurde mittlerweile vergrößert (siehe hierzu auch später Abbildung 3.10). Das ist vor allem auf die höhere Güte der heutigen Scheiben zurückzuführen. Die von uns benötigte Wellenlänge liegt im Bereich von 1014,8 nm. Bei dieser

Wellenlänge ist die Leistung des Lasers deutlich reduziert, und wir erhalten noch ca. 5 W Leistung in der TEM₀₀ Grundmode bei nur einer longitudinalen Mode (single frequency). Um ein Lasen bei dieser Wellenlänge überhaupt zu ermöglichen, wird wegen des geringen Emissionswirkungsquerschnitts von Yb:YAG bei 1014,8 nm [SPK⁺01] der Aufbau des *VersaDisc 1030-50* modifiziert. Es wird ein möglichst einfacher Resonator mit wenigen Elementen und daher geringen Verlusten verwendet.

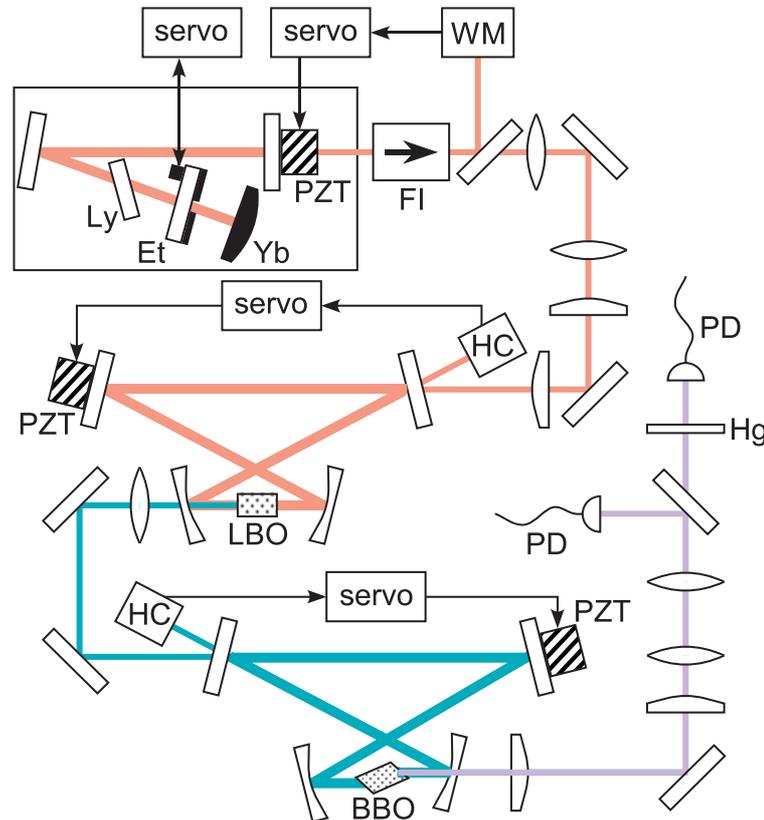


Abbildung 3.2: Aufbau des 254 nm-Lasers und der 6^1S - 6^3P Spektroskopie an Quecksilber. Der V-Resonator des Scheibenlasers wird aus der Yb:YAG Scheibe (Yb) einem Umlenker und dem Auskoppler, der auf einem Piezo (PZT) aufgebracht ist, gebildet. Das Etalon (Et) und das Lyot-Filter (Ly) dienen zur Wellenlängenselektion. Die Wellenlänge wird mit dem Wavemeter (WM) ausgelesen und über einen elektronischen Regelkreis (servo) stabilisiert. Der Faradayisolator (FI) schützt den Laser vor Rückreflexen. Im ersten Verdopplungsresonator wird ein LBO Kristall genutzt. Im zweiten ein BBO Kristall. Beide Resonatoren werden mit dem Hänsch-Couillaud (HC) Verfahren stabilisiert. Zur Spektroskopie wird eine Quecksilberdampfzelle (Hg) eine Signal- und eine Normierungsphotodiode (PD) verwendet. Spiegel und Linsen wurden nicht einzeln beschriftet und ergeben sich aus dem Kontext.

In Abbildung 3.2 ist der Aufbau des gesamten UV-Lasersystems gezeigt [SMW⁺07]. Der Laser ist als V-Resonator aufgebaut. Die Scheibe dient als Endspiegel. Der Auskoppelspiegel ist zur Einstellung der Wellenlänge auf einem Piezokristall aufgebracht. Der Resonator enthält ein Lyot-Filter zur groben Wellenlängenselektion, mit einer vollen Halbwertsbreite (Full Width at Half Maximum) von 3 THz und ein 5 mm dickes

Etalon (freier Spektralbereich 21 GHz, FWHM=10 GHz) zur feineren Wellenlängen-selektion. Das Etalon wählt eine der Resonatormoden aus, die bei einer Länge von 80 cm einen freien Spektralbereich von 190 MHz haben. Der Piezo ermöglicht die Stabilisierung auf eine bestimmte Wellenlänge. Dazu wird die Wellenlänge mit einem Fizeau-Interferometer (High Finesse Wavemeter WS7) gemessen und mit einem PC ausgelesen. Dieser errechnet dann aus der Abweichung vom Sollwert ein Fehlersignal für den Regelkreis des Piezos. Zum Schutz vor Rückreflexen wird ein Faraday-Isolator zwischen Laser und erster Verdopplungseinheit platziert. Die Modenanpassung an den ersten Verdopplungsresonator wird mit einem Teleskop aus sphärischen Linsen und einem Teleskop aus Zylinderlinsen bewerkstelligt. Der erste Resonator ist ein sogenannter Bow-Tie-Resonator, der mit einer Hänsch-Couillaud-Stabilisierung auf die Frequenz des Lasers stabilisiert wird [HC80]. Es wird eine Einkoppeleffizienz von 80 % in den ersten Resonator erreicht. Als nichtlineares Medium wird im ersten Resonator ein antireflexbeschichteter, Typ I temperaturphasenangepasster Lithiumtriborat (LBO) Kristall der Firma Crystech verwendet. Der Kristall wird in einem Kupferofen auf die erforderliche Phasenangpassungstemperatur von 224°C geheizt. Ein wassergekühlter Kühlschild um den Ofen verhindert, dass im Resonator Störungen durch Konvektion entstehen. Aus dem ersten Resonator erhalten wir bei 4,8 W eingehender infraroter (IR) Leistung vor dem Resonator 3 W grüne Leistung bei 507,4 nm hinter dem Resonator. Das entspricht einer Konversionseffizienz von 62 %. Da Temperaturphasenangpassung benutzt wird, läuft der verdoppelte, harmonische Strahl nicht durch den Walk-off-Effekt vom erzeugenden fundamentalen Strahl weg. Man erhält ein im Vergleich zu den anderen Verdopplungen sehr gutes Strahlprofil, was die Einkopplung in den zweiten Resonator erleichtert. Mit einer Linse hinter dem ersten Resonator wird die Mode des grünen Strahls an den zweiten Resonator angepasst. Die Einkoppeleffizienz beträgt auch hier 80 %. Im zweiten Resonator wird als nichtlineares Medium ein Brewster-geschnittener, Typ I, winkelphasenangepasster β -Bariumborat (BBO) Kristall der Firma Castech verwendet. Zur Stabilisierung wird wieder das Hänsch-Couillaud Verfahren benutzt. Aus 2 W eingehendem, grünem Licht vor dem Resonator werden 750 mW UV-Leistung bei 253,7 nm gewonnen. Das entspricht einer Konversionseffizienz von 38 %. Der Walk-off-Winkel des BBO Kristalls beträgt bei den verwendeten Wellenlängen 84,7 mrad, was im Vergleich zu den anderen Verdopplungen recht viel ist. Das Strahlprofil des UV-Strahls wird dadurch deutlich verformt, wie in Abbildung 3.3 gezeigt wird.

Eine Übersicht über die erzielten Ausgangsleistungen bei verschiedenen Eingangsleistungen für beide Resonatoren wird in Abbildung 3.4 gezeigt. Die gezeigten Eingangsleistungen sind immer die Werte vor dem Resonator. Um die Ausgangsleistung zu messen, wurde die restliche, noch mitlaufende fundamentale Strahlung abgetrennt. Nach dem ersten Resonator wurde dafür ein Filter, nach dem zweiten Resonator zwei dichroitische Spiegel verwendet. In Abbildung 3.4(a) sind die Datenpunkte des ersten Resonators gezeigt. Die eingezeichnete durchgezogene Linie entspricht einer theoretischen Kurve [PK91], die an die Datenpunkte angepasst wurde. Die eingehenden Parameter sind die

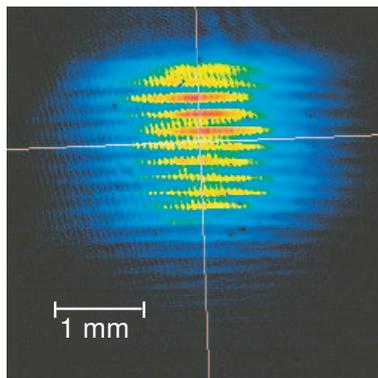


Abbildung 3.3: Strahlprofil des UV-Strahls. Gezeigt ist das Strahlprofil des UV-Strahls im aufgeweiteten Zustand. Man erkennt deutlich, dass durch den walk-off Effekt des BBO Kristalls das Strahlprofil verschlechtert wird. In vertikaler Richtung werden Streifen ausgebildet.

Einkoppeleffizienz, die Konversionseffizienz des nichtlinearen Kristalls im Einfachdurchgang, die linearen Verluste des Resonators, die Transmission des Einkoppelspiegels und die Transmission der erzeugten Harmonischen durch den Auskoppelspiegel. Einige dieser Größen wurden unabhängig gemessen. Die Einkoppeleffizienz ist aus der direkten Messung bekannt und wurde auf 80 % gesetzt. Die Konversionseffizienz im Einfachdurchgang wurde ebenfalls direkt gemessen und ergab 0,02%/W. Die Transmission des Einkoppelspiegels bei der Fundamentalen wurde entsprechend den Herstellerangaben mit 4% angenommen. Die Transmission der Harmonischen durch den Auskoppler wurde ebenso, entsprechend den Herstellerangaben, mit 95 % angenommen. Der noch freie Parameter, die linearen Verluste im Resonator, wurde durch die Anpassung an die Daten zu 0,42% bestimmt. Bei der Berechnung der gestrichelten Linie wurde die Transmission des Einkopplers an die Eingangsleistung angepasst um zu zeigen, wie viel im unteren Leistungsbereich durch bessere Impedanzanpassung noch gewonnen werden könnte. Ansonsten wurde mit denselben Werten wie oben gerechnet.

In Abbildung 3.4(b) werden die Leistungsdaten der zweiten Verdopplung, in den UV-Bereich, gezeigt. Man erkennt deutlich das Abknicken der UV-Leistungen bei Werten größer als 750 mW. Die kleinen inneren Graphen zeigen den Verlauf der UV-Leistung über jeweils 50 Minuten. Einmal mit 400 mW UV-Leistung und einmal mit maximaler UV-Leistung. Während die 400 mW UV-Leistung über den gemessenen Bereich stabil sind, fällt die maximale UV-Leistung zunächst ab, um sich dann auf einen Wert um 750 mW zu stabilisieren. Dieser Abfall entsteht durch irreparable Schäden am BBO Kristall. Um kurzzeitig wieder höhere Leistungen zu erzielen, muss einfach der Kristall verschoben werden. Damit kann ein unbeschädigter Durchgangsbereich ausgewählt werden. Um solche Beschädigungen zu vermeiden, werden in den Experimenten typischerweise nur 200-400 mW UV-Leistung verwendet. Diese Degradation von BBO Kristallen bei Verdopplung in den tiefen UV-Bereich ist vielfach bekannt [KOW⁺98].

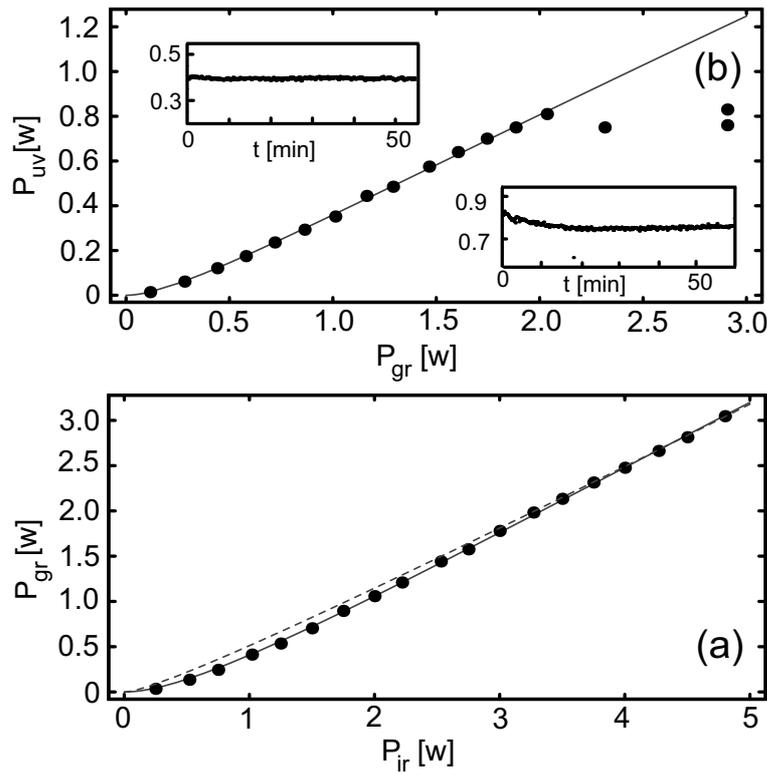


Abbildung 3.4: Erreichte Konversionen in den Verdopplungsresonatoren des UV-Lasersystems. (a) Die Datenpunkte zeigen die konvertierte grüne Leistung (507,4 nm) über der eingehenden Infrarot-Leistung bei 1014,8 nm vor dem Resonator. Die Linien sind theoretische Berechnungen. Die durchgezogene Linie wurde mit dem verwendeten Einkoppler gerechnet, die gestrichelte Linie mit idealer Impedanzanpassung. (b) Die Datenpunkte zeigen die konvertierte UV-Leistung bei 253,7 nm gegen die eingehende grüne Leistung vor dem Resonator. Die durchgezogene Linie ist wieder eine theoretische Rechnung. Die Abweichung bei hohen UV-Leistungen wird im Text besprochen. Die kleinen Graphen zeigen den zeitlichen Verlauf der UV-Leistung bei zwei verschiedenen Leistungsniveaus.

Die Qualität der BBO Kristalle spielen für die Degradation eine entscheidende Rolle [OLWT96]. Insbesondere die Reinheit ist von großer Bedeutung. So wurden auch schon 12 W bei 266 nm erzeugt und stabile Leistungen von mehreren Watt über Stunden gezeigt [SIM⁺08]. Der dabei verwendete Kristall der Firma Sony ist aber derzeit nicht kommerziell erhältlich. Für leistungsstarke UV-Laserquellen gibt es einen großen Markt bei der Detektion von Fehlern in der Halbleiterherstellung. Deshalb lassen sich die entsprechenden Kristallhersteller nur ungern „in die Karten schauen“ und geben nur in Ausnahmefällen Prototypen heraus. Auch bei den zurzeit am Markt erhältlichen BBO Kristallen gibt es zum Teil erhebliche Unterschiede.

Um das Potenzial des UV-Lasersystems zu demonstrieren, wurde, wie unten rechts in Abbildung 3.2 gezeigt, eine Quecksilber-Spektroskopie aufgebaut. Dafür wird eine 1 mm lange Quecksilberzelle mit natürlichen Isotopengemisch bei 20°C verwendet. Die gemessene Transmission wurde mit Hilfe einer Photodiode vor der Quecksilberzelle

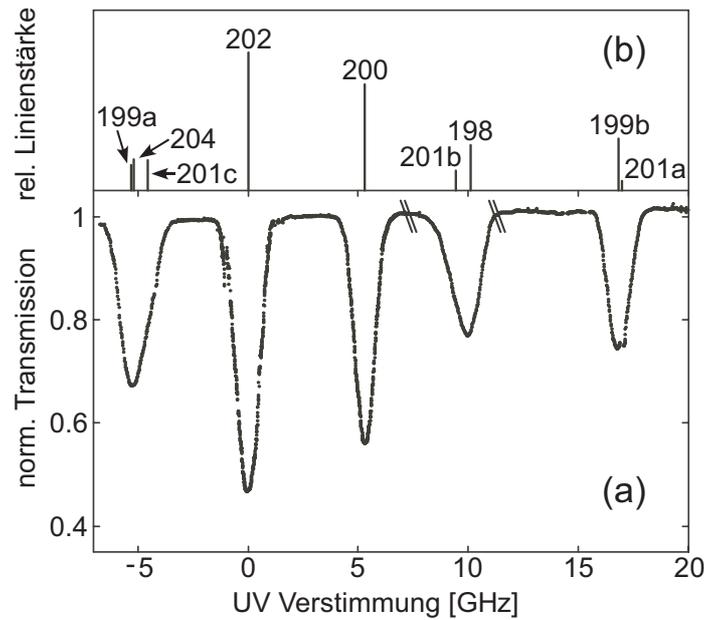


Abbildung 3.5: Absorptionsspektrum des $6^1\text{S}-6^3\text{P}$ -Übergangs in atomarem Quecksilber. (a) Dargestellt ist die normierte Transmission durch die Quecksilberdampfzelle über die Verstimmung des UV-Lasers zum betrachteten Übergang im ^{202}Hg Isotop $\Delta_{UV} = \nu_{UV} - \nu_{6^3P}$. Die Doppelstriche markieren die einzelnen Teilmessungen, aus denen das Spektrum zusammengesetzt wurde. Zum besseren Verständnis sind in (b) die Positionen und relativen Linienstärken der einzelnen Quecksilberisotope gezeigt. Die Buchstaben kennzeichnen die Hyperfeinstruktur-Komponenten der ungeraden Isotope (a: $F = 1/2$; b: $F = 3/2$; c: $F = 5/2$.)

normiert. Für die Spektroskopie muss die Wellenlänge des Scheibenlasers kontinuierlich durchgestimmt werden. Das wird erreicht, indem am Rechner eine Rampe auf die Sollwellenlänge der Piezoregelung gegeben wird. Gleichzeitig wird auch auf die Temperatur des Etalons eine genau abgestimmte Rampe gegeben. Dabei wird das Maximum der Etalonmode immer mit der Resonatormode mitgeführt. Auf diese Weise konnte ein modensprungfreies Durchstimmen von 2 GHz demonstriert werden. Das Ergebnis des Durchstimmens des 253,7 nm UV-Lasersystems über die $6^1\text{S}-6^3\text{P}$ Resonanz in Quecksilber ist in Abbildung 3.5 gezeigt. Aufgetragen ist die normierte Transmission über der mit dem Wavemeter gemessenen Verstimmung zur 6^3P Resonanz des ^{202}Hg Isotops. Die UV-Verstimmung ist hier definiert als $\Delta_{UV} = \nu_{UV} - \nu_{6^3P}$, also genau andersherum als im Rest der Arbeit. Damit lässt sich der Graph leichter mit den entsprechenden Publikationen vergleichen [WH75]. Zum besseren Verständnis sind im oberen Teil die Positionen und relativen Linienstärken der einzelnen Isotope und ihrer Hyperfeinkomponenten gezeigt (siehe hierzu auch Tabelle A.2 im Anhang). Die Linien können wegen der Doppler-Verbreiterung zum Teil nicht getrennt aufgelöst werden. Die gesamte Messung setzt sich aus drei Messungen zusammen, deren jeweiliger Bereich durch die Doppelstriche markiert ist. An zwei Stellen zeigt das Wavemeter unphysikalische Sprünge,

die auf eine fehlerhafte Software zurückgeführt werden können. Die Software wurde mittlerweile erneuert.

Im folgenden Abschnitt werden noch die Ergebnisse präsentiert, die während des nötig gewordenen Neuaufbaus des Scheibenlasers gewonnen wurden. Der Scheibenlaser wurde im August 2005 gekauft. Nach etwa 2,5 Jahren wurde der Anschaltvorgang zunehmend schwieriger. In einer zweistündigen Prozedur musste der Laser zunächst bei höheren Wellenlängen angeschaltet werden und dann, Stück für Stück - immer wieder mit Pausen für eine ausreichende Thermalisierung im Resonatorgehäuse - auf die benötigte Wellenlänge gebracht werden. Die zur Verfügung stehende Leistung bei 1014,8 nm sank stetig. Für die Messungen in [SKM⁺09] standen nur noch 2 W IR-Laserleistung und damit 200 mW UV-Strahlung zur Verfügung. Ende 2008 war ein Grundmode-Laserbetrieb bei 1014,8 nm überhaupt nicht mehr möglich. Der Grund hierfür lag in einer Degradation der Yb:YAG Scheibe. Deshalb wird noch einmal kurz der Aufbau der Scheibe geschildert.

Die Scheibe muss zunächst möglichst plan poliert werden, da Unebenheiten der Scheibe zu Phasenverzerrungen der im Resonator umlaufenden Strahlung und damit direkt zu Verlusten führen. Auf der Vorderseite wird eine Antireflex-Beschichtung für Pump- und Laserwellenlänge aufgebracht. Auf der Rückseite wird eine hochreflektierende Beschichtung für beide Wellenlängen aufgebracht. Dann wird die Scheibe mit einem Gold-Zinn Lot möglichst plan auf einer Kupferwärmesenke befestigt. Diese wird von hinten mit Wasser gekühlt. Die Scheibe ist im Laserbetrieb enormen Belastungen ausgesetzt. Zum Einen wird die Pumpstrahlung absorbiert. Bei einer Laserleistung von 5 W bei 1014,8 nm waren das bei uns vor dem Neuaufbau 110 W Pumpleistung. Zum Anderen laufen im Resonator bei 5 W Ausgangsleistung mit einem 99% Auskoppelspiegel 500 W Laserleistung um. Über den genauen Grund für die Probleme der Scheibe kann nur gemutmaßt werden. Denkbar sind ein Einbrennen von Verschmutzungen auf der Vorderseite oder Beschädigungen der Beschichtungen. Von Herstellerseite wurde die Vermutung geäußert, dass sich die Scheibe unter der andauernden thermischen Belastung gegen das Lot verschiebt oder zum Teil sogar ablöst. Diese Vermutung passt zu der Tatsache, dass mit der beschädigten Scheibe weiterhin Laserbetrieb mit mehreren transversalen Moden möglich war. In diesem multi-mode Betrieb können sich die Moden immer so anpassen, dass sie zu der derzeitigen thermischen Linse und Phasenfrontverzerrung passen. Für den Grundmode-Betrieb sind solche Effekte aber zusätzliche Verluste. Bei 1015 nm reichen wegen der kleinen Emissionswirkungsquerschnitte bereits kleine zusätzliche Verluste, um den Laserbetrieb zum Erliegen zu bringen. Deshalb macht sich die Degradation der Scheibe hier deutlicher bemerkbar als beim Standardlaser auf 1030 nm. Es erschien sinnvoll, insbesondere für den späteren Betrieb unter Strahlzeitbedingungen am CERN, das nötige Wissen für Reparaturen in der Arbeitsgruppe zu entwickeln. Deshalb wurde die Scheibe unter Hilfe von SLT gewechselt und dann der Laser in Eigenregie neu aufgebaut.

Zunächst wird dazu ein kurzer Testresonator aufgebaut. Der kurze Resonator enthält

nur die Scheibe als gekrümmten Spiegel und den planen Auskoppler. Es werden noch keine frequenzselektiven Elemente eingebaut, so dass der Laser breitbandig auf 1030 nm läuft. Für den Strahlradius ω_l , der Gaußschen Grundmode der im Resonator umlaufenden Laserstrahlung gilt auf der gekrümmten Scheibe [KL66]:

$$\omega_l = \left(\left(\frac{\lambda R}{\pi} \right)^2 \frac{L}{R-L} \right)^{1/4} \quad (3.1)$$

Dabei ist R der Krümmungsradius der Scheibe. Die Wellenlänge der Laserstrahlung ist λ und L ist die Länge des Resonators. Für einen stabilen Resonator muss $L < R$ gelten. Die Scheibe hat im ungepumpten Zustand einen Krümmungsradius von $R = 128$ cm. Der durch die Pumpkammer erzeugte Pumpfleck der Pumpstrahlung auf der Scheibe hat in unserem Fall einen Durchmesser von 2 mm. Nach Gleichung 3.1 ist in einem kurzen Resonator die Grundmode des Lasers auf der Scheibe kleiner. In einem kurzen Resonator ($L \approx 10$ cm) kann die kleine Grundmode daher nicht die gesamte durch den Pumpfleck auf der Scheibe erzeugte Inversion abrufen. Es können höhere Moden anschwingen, die die restliche Inversion abrufen. Der Laser läuft multi-mode.

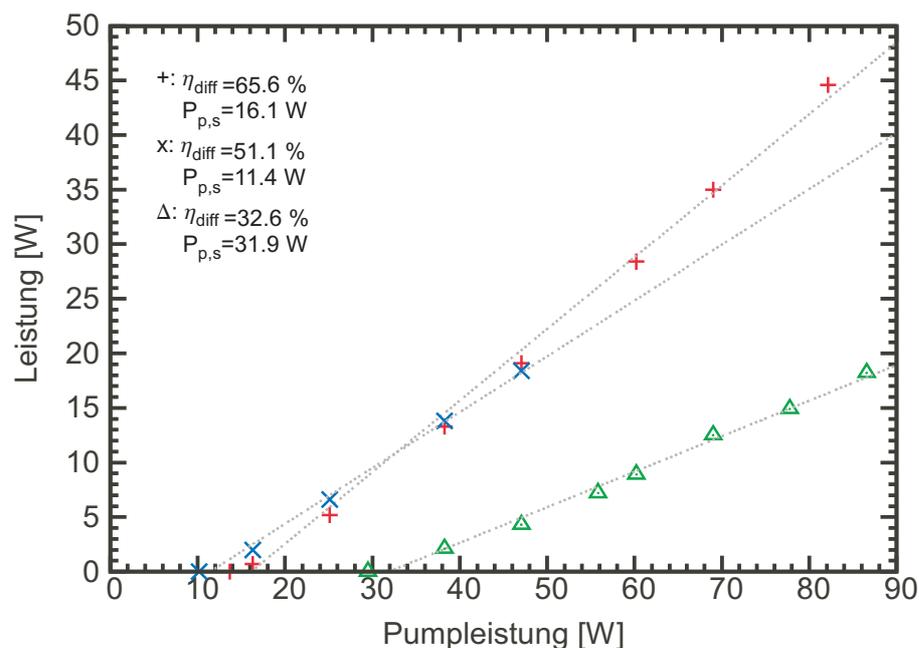


Abbildung 3.6: Leistungskennlinie des Scheibenlasers. Aufgetragen ist die Leistung des Scheibenlasers gegen die Pumpleistung der Pumpdiode. Die roten Kreuze wurden in einem kurzen Resonator, das heißt multi-mode Betrieb, mit 4% Auskoppler gemessen. Die blauen Punkte (X) wurden in einem kurzen Resonator mit 1% Auskoppler gemessen. Die grünen Dreiecke sind im langen Resonator im TEM_{00} Betrieb bei 1014,8 nm aufgenommen. Die Linien sind jeweils Regressionsgeraden, die an die Daten angepasst wurden. Die entsprechenden Parameter werden in der Abbildung gegeben.

In Abbildung 3.6 sind zwei Leistungskennlinien der neuen Scheibe in einem solchen kurzen Testresonator gezeigt. Der Laser läuft also im breitbandigen, multi-mode Be-

trieb bei 1030 nm. Die roten Kreuze zeigen die Leistung des Scheibenlasers über der Pumpleistung der Pumpdiode (Jenoptik JOLD-140-CAXF-6A) mit einem 4% Auskoppelspiegel, was der typische Auskoppler für den 1030 nm Betrieb ist. Die blauen x-förmigen Datenpunkte zeigen die gleiche Messung mit einem 1% Auskoppelspiegel, was der typische Auskoppler für den 1014,8 nm Betrieb ist. Es ergeben sich zwei Geraden, deren x-Achsenabschnitt die Laserschwelle ist. Dies wird auch aus der Theorie erwartet. Die Theorie des Scheibenlasers wurde bereits ausführlich behandelt [Con02]. Nimmt man nach dieser Theorie ein vereinfachtes Modell des Scheibenlasers mit einer homogenen Verteilung aller relevanter Größen innerhalb des aktiven Mediums an, so ergibt sich für die Leistung des Lasers:

$$P_l = \frac{T_{oc}}{L_{int} + T_{oc}} \eta_{st} \eta_{abs} \eta_{mode} (P_p - P_{p,s}) \quad . \quad (3.2)$$

Dabei ist P_l die Leistung des Scheibenlasers, T_{oc} die Transmission des Auskoppelspiegels, L_{int} die internen Verluste im Resonator. P_p bezeichnet die Pumpleistung und $P_{p,s}$ die benötigte Pumpleistung an der Laserschwelle. Der Wirkungsgrad $\eta_{st} = \nu_l/\nu_p$ gibt an, wie viel Energie bei der Umwandlung eines absorbierten Pumpphotons der Frequenz ν_p in ein emittiertes Laserphoton der Frequenz ν_l verloren geht. Die Absorptionseffizienz η_{abs} gibt an, wie viel der Pumpleistung im Medium absorbiert wird und der Modenüberlapp η_{mode} gibt an, wie gut der Laserstrahl und der Pumpstrahl auf der Scheibe überlappen. Es ergibt sich also aus der Theorie eine Gerade mit der Pumpleistung an der Laserschwelle als x-Achsenabschnitt. Dies wurde auch in Abbildung 3.6 gemessen. Die Steigung der Geraden bezeichnet man als den differentiellen Wirkungsgrad η_{diff} . Die Pumpleistung an der Laserschwelle lässt sich wie folgt berechnen [Con02]:

$$P_{p,s} = A_p \left(\frac{h\nu_p}{\tau\eta_{abs}} \frac{\sigma_{abs,l}}{\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}} N_{dot} d_{Kr} + \frac{h\nu_p}{\tau\eta_{abs}} \frac{L_{int} + T_{oc}}{2(\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l})} \right) \quad . \quad (3.3)$$

In dieser Gleichung bezeichnet A_p die Fläche des gepumpten Bereichs und τ die Lebensdauer des angeregten Niveaus. Die Wirkungsquerschnitte der Emission und Absorption bei der Laserwellenlänge werden mit $\sigma_{em,l}$ und $\sigma_{abs,l}$ bezeichnet. Schließlich ist N_{dot} noch die Dichte der dotierten Ytterbium-Atome und d_{Kr} die Dicke der Scheibe. Das untere Niveau ist in Yb:YAG bei Temperaturen größer Null besetzt. Der erste Term in Gleichung 3.3 ist die Transparenzschwelle des Kristalls. Er gibt an, wie viel angeregte Atome benötigt werden, um die Besetzung des unteren Laserniveaus zu kompensieren. Der zweite Term beschreibt die Resonatorschwelle, also die Besetzung, die notwendig ist, um die Verluste im Resonator zu kompensieren.

Wie von der Theorie erwartet, ist in Abbildung 3.6 der differentielle Wirkungsgrad für den 4% Auskoppler besser als für den 1% Auskoppler. Die Pumpschwelle liegt höher, wie ebenfalls erwartet. Der erreichte differentielle Wirkungsgrad mit dem 4% Auskoppler ist 65,6%, was einen guten Wert darstellt [Rup99]. Die anderen Werte für die Schwelle und den differentiellen Wirkungsgrad werden direkt im Graphen gegeben.

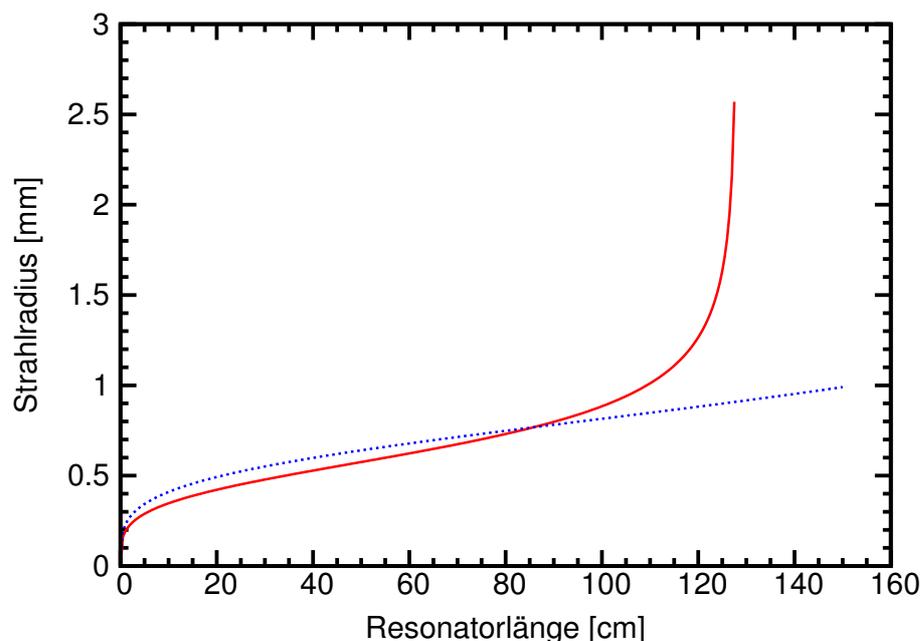


Abbildung 3.7: Einfluss der Resonatorlänge auf den Strahlradius. Aufgetragen ist der berechnete Strahlradius der Gaußschen Grundmode des im Resonator umlaufenden 1014,8 nm Laserstrahls auf der Yb:YAG Scheibe ω_1 gegen die Länge des Resonators. Der Strahlradius auf der Scheibe wird mit der Länge des Resonators auf den Pumpfleck angepasst um Grundmoden-Betrieb zu erreichen. Gerechnet wurde mit einem Krümmungsradius von $R=128$ cm (rot/durchgezogen), was dem ungepumpten Krümmungsradius entspricht, und $R=260$ cm (blau/gestrichelt) als ein Beispiel für einen durch Pumpen vergrößerten Krümmungsradius.

Die grünen Dreiecke in Abbildung 3.6 sind bei einem langen Resonator mit TEM₀₀ Grundmoden-Betrieb aufgenommen. Außerdem ist bereits ein Lyot-Filter eingefügt und die Wellenlänge damit auf 1014,8 nm eingestellt. Um Grundmoden-Betrieb zu erreichen muss der Strahldurchmesser der Gaußschen Grundmode im Resonator an den Pumpfleck der Pumpstrahlung angepasst werden. Ist der Strahldurchmesser der Gaußschen Grundmode zu klein, führen die Bereiche ungenutzter Inversion dazu, dass höhere Moden mit größerer transversaler Intensitätsverteilung anschwingen. Ist der Strahldurchmesser der Gaußschen Grundmode zu groß, erfährt diese in den ungepumpten Bereichen Absorption. Das Pumpprofil ist wegen der Mehrfachdurchgänge der Pumpstrahlung durch die Scheibe kein Gauß-Profil, sondern ist über einen großen Bereich im Zentrum annähernd flach [Con02] und fällt dann am Rand stark ab. Damit auch die äußeren Bereiche der Grundmode nicht absorbiert werden, erweist es sich als günstig, den Strahldurchmesser der Gaußschen Grundmode etwas kleiner als den Pumpfleck zu machen. Da die Pumpleistung nur unvollständig in Laserleistung umgewandelt wird, kommt es zur Erwärmung der Scheibe und dadurch zur Ausprägung einer thermischen Linse. Diese vergrößert bei den von uns verwendeten Parametern den effektiven Krümmungsradius der Scheibe um das bis zu Zweifache. Deshalb muss ein Resonatoraufbau gewählt werden, bei dem sich der Strahlradius der Resonatorgrund-

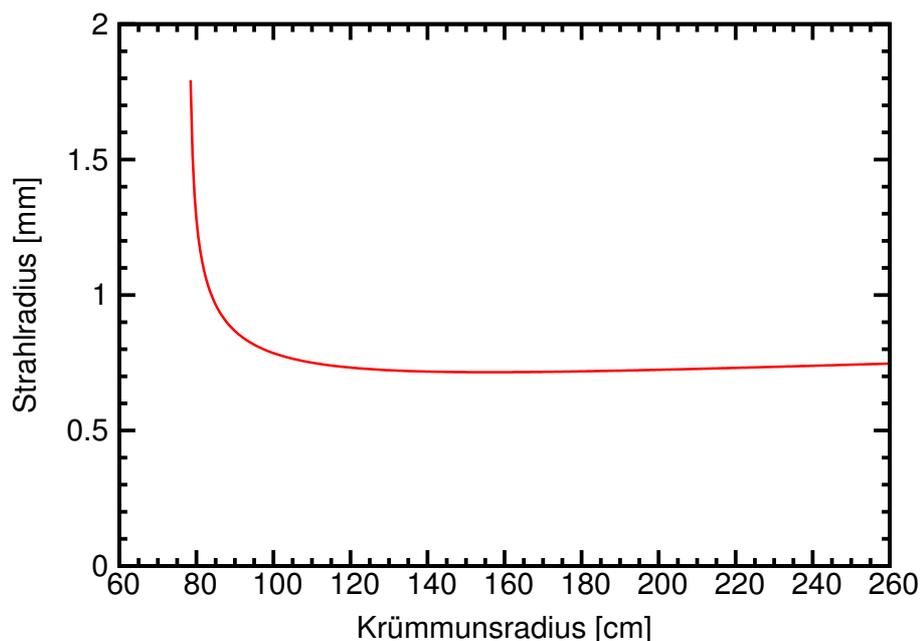


Abbildung 3.8: Einfluss des Krümmungsradiuses der Scheibe auf den Strahlradius Aufgetragen ist der berechnete Strahlradius der Grundmode des im Resonator umlaufenden 1014,8 nm Laserstrahls auf der Yb:YAG Scheibe gegen die Krümmung der Scheibe. Der Krümmungsradius der Scheibe ändert sich mit der Pump- und Laserleistung. Wie man sieht, folgt daraus im relevanten Bereich von 130 cm bis 260 cm nur eine vernachlässigbare Änderung des Strahlradius, was wichtig für stabilen TEM₀₀ Betrieb ist.

mode über einen weiten Bereich von Krümmungsradien nur wenig verändert.

Wie sich der Strahlradius der Lasergrundmode auf der Scheibe verändert, wenn die Länge des Resonators vergrößert wird, ist in Abbildung 3.7 gezeigt. Gerechnet wurde nach Gleichung 3.1 mit einem Krümmungsradius von $R=128$ cm (rot/durchgezogen), was dem ungepumpten Krümmungsradius unserer Scheibe entspricht. Die zweite Linie wurde mit $R=260$ cm (blau/gestrichelt) gerechnet, als ein Beispiel für einen durch Pumpen vergrößerten Krümmungsradius. Im aufgebauten Resonator wurde bei einer Länge von $L=78$ cm stabiler Grundmode-Betrieb über den gesamten gemessenen Bereich der Pumpleistung erreicht (grüne Dreiecke in Abbildung 3.6). Damit befindet man sich in dem flachen und damit unkritischen Bereich der berechneten Kurven mit $\omega_l \approx 0,75$ mm. Der Pumpfleckradius beträgt $\omega_p = 1$ mm. Um den Laser bei dieser Länge noch in das Gehäuse zu bekommen, wurde wieder ein planer Umlenkspiegel eingebaut, wie in Abbildung 3.2 dargestellt.

In Abbildung 3.8 wird gezeigt, wie sich der Strahlradius der Lasermode auf der Scheibe verändert, wenn sich bei einer festen Länge von $L=78$ cm der Krümmungsradius durch die thermische Linse ändert. Man erkennt wieder, dass der relevante Bereich $R > 128$ cm sehr flach ist, so dass die Pumpleistung nur einen geringen Einfluss auf das Strahlprofil hat. Deshalb läuft der Laser über einen weiten Bereich von Pumpleistungen in der TEM₀₀ Grundmode.

Nachdem nun Grundmoden-Betrieb bei 1014,8 nm erreicht wurde, muss noch single-

frequency Betrieb erreicht werden. Dazu wird das Etalon in den Resonator eingebaut. Dadurch erhöhen sich die Verluste im Resonator, und die Ausgangsleistung sinkt deutlich. Die erreichten Leistungen im single-frequency, Grundmoden-Betrieb bei 1014,8 nm werden in Abbildung 3.9 gezeigt. Die roten Kreuze sind im Betrieb mit einem 1 % Auskoppler gemessen, die blauen Punkte (X) mit einem 2 % Auskoppler. Wieder zeigt sich, sogar noch wesentlich deutlicher als in Abbildung 3.6, dass die Schwelle für den 1 % Auskoppler geringer ist als für den höheren 2 % Auskoppler. Der differentielle Wirkungsgrad ist für den 2 % Auskoppler deutlich größer. Es ist also günstig für niedrige Leistungen den 1 % Auskoppler zu wählen. Bei Laserleistungen von etwa 5 W, wie wir sie wegen der Beschränkung durch den BBO Kristall maximal benötigen, ist zu bedenken, dass der 1 % Auskoppler zwar die etwas höheren Leistungen bringt aber die umlaufende Laserleistung im Resonator auch doppelt so groß ist. Im Verlauf der Datenpunkte mit 1 % Auskoppler erkennt man bereits Abweichungen von der angepassten Geraden, was ein Anzeichen für thermische Effekte im Resonator ist. Zur Zeit ist der 1 % Auskoppler eingebaut, da oft niedrigere Leistungen verwendet werden, um den BBO Kristall zu schützen. Wenn später dauerhaft höhere Leistungen um 5 W benötigt werden, ist zu überlegen den 2 % Auskoppler zu verwenden.

Abschließend ist in Abbildung 3.10 noch eine Durchstimmkurve des Scheibenlasers im kurzen Testresonator mit Lyot-Filter gezeigt. Der Laser läuft wegen des kurzen Resona-

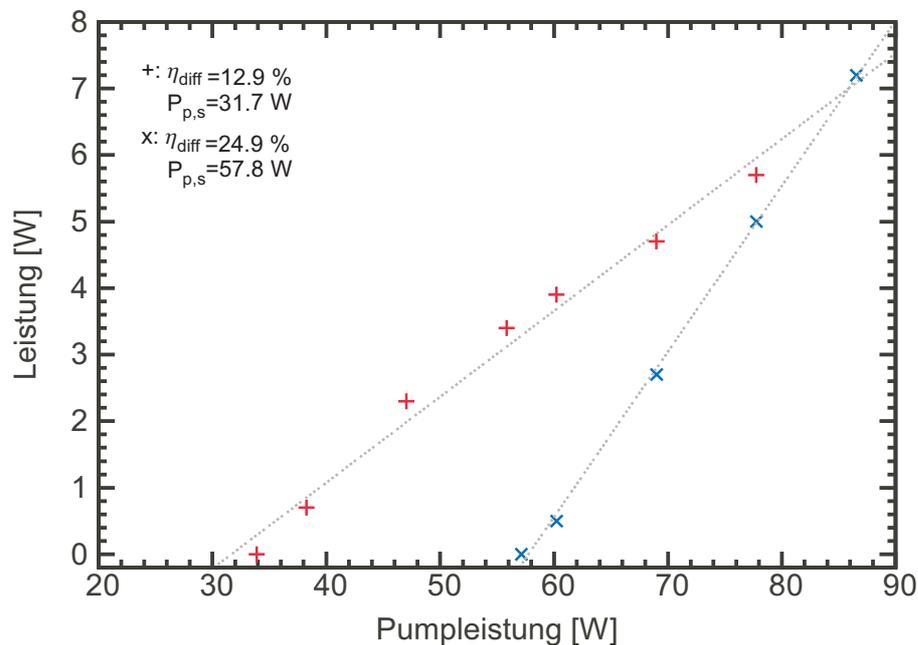


Abbildung 3.9: Leistungskennlinie des Scheibenlasers im Grundmoden-, single-frequency Betrieb bei 1014,8 nm. Dargestellt ist die Leistung des Scheibenlasers im Grundmode, single frequency Betrieb bei 1014,8 nm über der Pumpleistung der Pumpdiode. Die roten Kreuze sind mit einem 1 % Auskoppler gemessen, die blauen Punkte (X) mit einem 2 % Auskoppler. Die gestrichelten Linien sind lineare Fits an die Daten. Die daraus gewonnenen Pumpschwellen und differentiellen Wirkungsgrade werden in der Abbildung gegeben.

tors im Multimoden-Betrieb. Um den Laser durchzustimmen wird mit dem Lyot-Filter die Wellenlänge verändert. Aufgenommen wurde diese Kurve noch mit der alten Scheibe und soll den Durchstimmbereich eines Yb:YAG Scheibenlasers demonstrieren. Man erkennt den deutlichen Abfall bei der von uns benötigten Wellenlänge von 1014,8 nm gegenüber dem Maximum bei 1030 nm und auch das typische zweite Maximum bei 1051 nm.

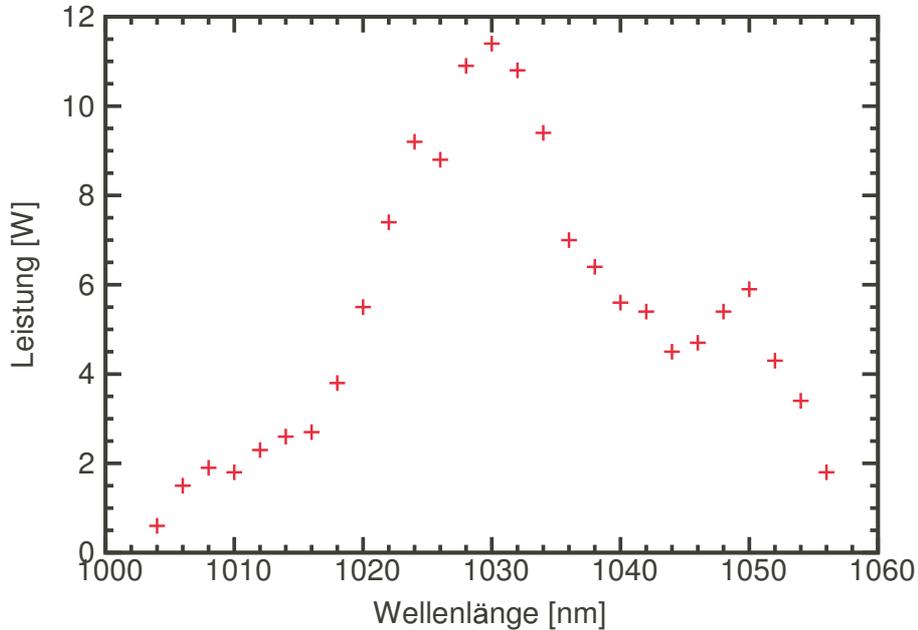


Abbildung 3.10: Durchstimmkurve des Scheibenlasers. Aufgetragen ist die Leistung des Scheibenlasers über der Wellenlänge, die grob mit dem Lyot-Filter durchgefahen wird. Man erkennt das Hauptmaximum bei 1030 nm und das Nebenmaximum bei 1051 nm. Bei den benötigten 1014,8 nm läuft der Laser um ein Vielfaches ineffizienter.

Da die 6^1S-6^3P Linie bei 253,7 nm die niedrigst liegende Linie in Quecksilber ist, bietet sich das vorgestellte Lasersystem für eine Vielzahl weiterer Anwendungen an. In der Arbeit von Walther et. al. [WF02] wurde Quecksilber für einen Laser ohne Inversion (lasing without Inversion) im UV-Bereich vorgeschlagen. Desweiteren wird der Vorschlag eines Tests der Bell'schen Ungleichungen ohne Schlupflöcher mit Hilfe von Quecksilber gemacht. Außerdem hat Quecksilber mit den 6^3P_0 und 6^3P_2 Niveaus langlebige, metastabile Uhrenübergänge, die es für Fallenexperimente interessant machen [Wal07]. Für alle diese Experimente wird Laserstrahlung bei 253,7 nm benötigt. Außerdem wurde mit Hilfe eines Lasersystems dieser Wellenlänge ein oberes Limit für das permanente elektrische Dipolmoment des ^{199}Hg Isotops ermittelt [RGJF01].

Für ein Lasersystem bei der 253,7 nm Linie von Quecksilber gibt es nur wenige Alternativen. Eine solche Alternative ist ein extern frequenzverdoppelter Farbstofflaser mit Coumarin 30 als Farbstoff, der von einem Kr^+ Laser gepumpt wird. Ein solcher Laser wurde in [Hen05] zur Untersuchung von elektromagnetisch induzierter Transparenz (EIT) in Quecksilber genutzt, lieferte aber nur einige mW frequenzverdoppelter Aus-

gangsleistung. Es wurde auch schon ein Faserverstärker mit 4,5 W bei 1014,8 nm vorgestellt [SSWF06]. Allerdings müssen die Ytterbium-Fasern dazu mit Flüssig-Stickstoff gekühlt werden, da die Absorption bei 1014,8 nm in einer langen Faser natürlich eine wesentlich größere Rolle spielt als in einer nur 150 μm dicken Scheibe. Dies schränkt die Auswahl der Fasern ein und macht das System wartungsaufwendig. In der Arbeit von Harber et. al. [HR00] wird mit einem Halbleiter Trapez-Verstärker ein Diodenlaser bei 1014,8 nm auf ca. 500 mW verstärkt und in zwei aufeinanderfolgenden Verdopplungsresonatoren zu 6 mW bei 253,7 nm vervierfacht. Das ist für viele Anwendungen eine zu geringe Leistung. Eine andere Möglichkeit für Laserstrahlung bei 1014,8 nm ist das Scheibenlaserkonzept beizubehalten und den Wirtskristall der Ytterbium Atome zu wechseln. An der Universität Hamburg wird Lutetiumoxid (Lu_2O_3) als alternatives Wirtsmaterial für Ytterbium untersucht [PKPH07]. Es konnten damit 80 % differentieller Wirkungsgrad erreicht werden, was den bisher höchsten Wert für Ytterbium dotierte Scheibenlaser darstellt. Außerdem wurde ein Durchstimmbereich von etwa 990 nm-1100 nm, mit zwei Maxima bei 1034 nm und 1080 nm demonstriert. In Zusammenarbeit mit der Universität Hamburg wurden bereits erste Tests durchgeführt, die das Potenzial dieses neuen Scheibenmaterials auch für unsere Anwendung zeigen. Eine neue Scheibe aus diesem Material ließe sich einfach in den bestehenden Aufbau integrieren. Lediglich ein neuer Pump laser würde, wegen der verschiedenen Pumpwellenlängen, benötigt.

3.2 Das blaue Lasersystem

Die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung und damit auch die Lyman- α Erzeugung wird durch eine Zwei-Photonen-Resonanz stark erhöht (siehe Gleichung 2.26). Eine solche Zwei-Photonen-Resonanz hat gegenüber einer Ein-Photon-Resonanz, wie zum Beispiel der in dieser Arbeit untersuchten 6^3P -Resonanz, den Vorteil, dass die Absorption eine wesentlich geringere Rolle spielt. Man kann deshalb bei den von uns verwendeten Leistungen die Frequenzen der UV- und blauen Strahlung exakt auf die Zwei-Photonen-Resonanz einstellen, ohne dass die Strahlen merklich abgeschwächt werden. Würde man dagegen die UV-Strahlung exakt auf die 6^3P -Resonanz einstellen, würde der UV-Strahl komplett absorbiert. Mögliche Verluste durch die Zwei-Photonen-Resonanz und für welche Intensitäten diese signifikant beitragen, wurden anderweitig bereits ausführlich diskutiert [SAH88, SA87]. Solche Verluste sind z.B. verstärkte spontane Emission, stimulierte Raman-Prozesse, parametrische Prozesse und der Transfer von Population in angeregte Zustände. Einige dieser Prozesse treten auch bei uns auf, wie in Kapitel 4.5 gezeigt wird. Die entstehenden Verluste spielen aber für uns, wegen der geringeren Leistungen von kontinuierlichen gegenüber gepulsten Systemen, keine Rolle [SA87]. Als oberes Niveau für die Zwei-Photonen-Resonanz wird das 7^1S -Level gewählt (siehe auch Abbildung 1.3). Durch die Energie des 7^1S -Niveaus und die Wellenlänge der UV-Strahlung ergibt sich eine benötigte Wellenlänge für den zweiten La-

ser von 407,9 nm. Für diese Wellenlänge wird ein frequenzverdoppelter Titan:Saphir Laser (Ti:Sa) mit einer Wellenlänge von 815,8 nm verwendet. Der Aufbau ist in Abbildung 3.11 gezeigt.

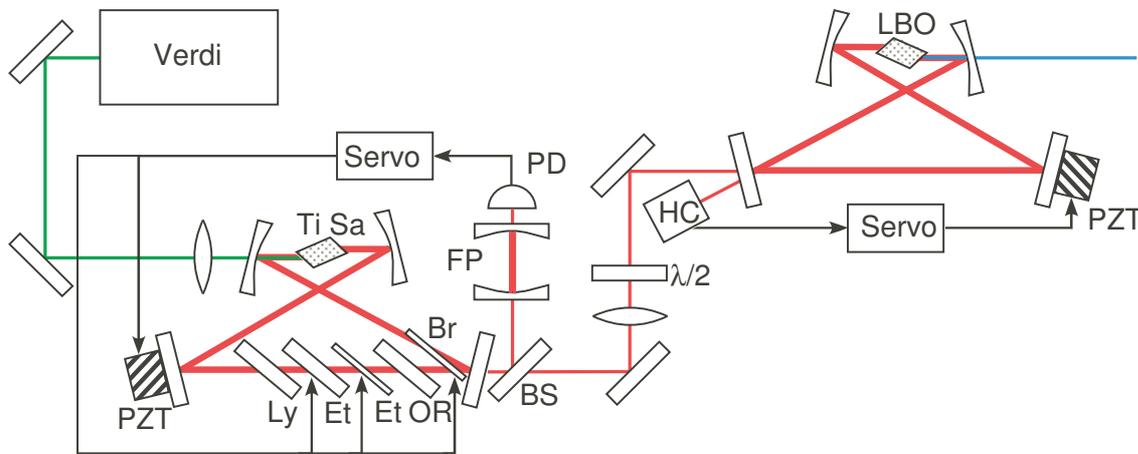


Abbildung 3.11: Aufbau des 408 nm Lasersystems. Der durch den frequenzverdoppelten Nd:YVO₄ Laser (Verdi) gepumpte Titan:Saphir Laser enthält zur Frequenzselektion und Stabilisierung ein Lyot-Filter (Ly), zwei Etalons (Et) unterschiedlicher Dicke, eine Brewster-Platte (Br), einen Piezo-Aktuator (PZT) und wird über eine Fabry-Perot Resonator (FP) stabilisiert. Die optische Diode (OR) erlaubt den Umlauf nur in eine Richtung. Das Licht wird in einem Verdopplungsresonator frequenzverdoppelt. Dieser enthält einen LBO Kristall und mit einem Hänsch-Couillaud Lock (HC) über einen Piezo-Spiegel stabilisiert. Spiegel und Linsen zur Modenanpassung sind nicht beschriftet. (BS: Strahlteiler; $\lambda/2$: Wellenplatte)

Der Titan:Saphir Laser (Coherent Modell 899-21) wird von einem intern frequenzverdoppelten Neodym:Vanadat (Nd:YVO₄) Laser (Coherent Verdi V10) mit 10,5 W Ausgangsleistung gepumpt. Zur Wellenlängenselektion im Laser dienen ein Lyot-Filter, ein dünnes und ein dickes Etalon. Die optische Diode sorgt für unidirektionalen Umlauf. Die Brewster-Platte und der Piezo-Kristall werden zum Stabilisieren beziehungsweise Durchstimmen der Wellenlänge verwendet. Die Wellenlänge wird auf ein Fabry-Perot Interferometer stabilisiert. Die maximal damit erreichte single-frequency Leistung des Titan:Saphir Lasers beträgt 1,6 W. Typischerweise stehen für die tägliche Nutzung ohne Justageaufwand etwa 1,3 W zur Verfügung. Der modensprungfreie Durchstimmbereich des Lasers umfasst 30 GHz. Zur Verdopplung wird wieder ein Bow-Tie Resonator mit Hänsch-Couillaud Stabilisierung verwendet. Der nichtlineare Kristall ist ein Brewster-geschnittener, Typ I winkelphasenangepasster LBO-Kristall (Crystals of Sibiria). Zum Schutz gegen Feuchtigkeit wird er auf 45°C geheizt. Die maximal erreichte verdoppelte Leistung bei 407,9 nm ist 450 mW. Das entspricht einer Konversionseffizienz von 28 %. Die Einkoppeleffizienz in den Resonator beträgt 75 %. Typischerweise stehen für die tägliche Nutzung ohne Justage ca. 300 mW zur Verfügung. Der Verdopplungsresonator kann dem Durchstimmen des Titan:Saphir Lasers für 3,4 GHz folgen. Wird der

Laser weiter durchgestimmt, springt der Verdopplungsresonator kurz aus der Stabilisierung, wird von der Elektronik automatisch erneut stabilisiert und folgt dann dem Durchstimmen auf einer anderen longitudinalen Mode. Das einfache Durchstimmen der Wellenlänge über die Zwei-Photonen-Resonanz ist eine wichtige Voraussetzung für die Messungen in Kapitel 4.3 zum Einfluss der Zwei-Photonen-Resonanz auf die Lyman- α Erzeugung. Die Linienbreite des blauen Lichts kann aus der vom Hersteller angegebenen Linienbreite des Fundamental-Lasers (<500 kHz) zu ungefähr zu 1 MHz abgeschätzt werden. Das Strahlprofil des Lichts bei 407,9 nm wird in Abbildung 3.12 gezeigt. Die Strahlverformung durch den Walk-off-Effekt des doppelbrechenden Kristalls ist klar zu erkennen. Die Verformung fällt aber im Vergleich zum UV-Strahl wesentlich geringer aus, da auch der Walk-off-Winkel mit 15,7 mrad deutlich kleiner ist (vergleiche Abbildung 3.3).

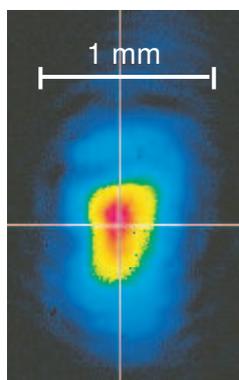


Abbildung 3.12: Strahlprofil des blauen Laserstrahls. Gezeigt ist das Strahlprofil des 407,9 nm Strahls im aufgeweiteten Zustand. Auch hier ist der Strahl durch den Walk-off-Effekt des nichtlinearen Kristalls verformt. Allerdings ist der Walk-off-Winkel deutlich geringer als für den UV-Strahl und damit das Strahlprofil besser.

Als Alternative zum vorgestellten Titan:Saphir Lasersystem wurde in unserer Arbeitsgruppe eine kohärente Strahlüberlagerung zweier Halbleiter-Trapezverstärker entwickelt [Kol07]. Beide Trapezverstärker verwenden dieselbe Seed-Diode. Damit konnten ebenfalls bis zu 1,3 W bei 815,8 nm erreicht werden. Allerdings mit einem im Vergleich zum Ti:Sa Laser wesentlich schlechteren Strahlprofil. Das erschwert die Einkopplung in den Verdopplungsresonator. Von den von einem einzelnen Trapezverstärker gelieferten 800 mW konnten bis etwa 50 % eingekoppelt werden. Damit wurden 80 mW blaues Licht bei 407,9 nm erzeugt. Mit diesem System wurden in [Bey08] Messungen zur Zwei-Photonen-Resonanz durchgeführt und unter anderem geschwindigkeitsabhängige Doppelresonanzen (velocity selective double resonance) gefunden [BKS⁺09]. Da lediglich einstufige Faraday Isolatoren verwendet wurden, um auf vergleichbare Leistungen zum Titan:Saphir Laser zu kommen, war die typische Laborlebensdauer der Trapezverstärker zu gering für ernsthafte Versuche zur Verdopplung der kohärent addierten Strahlung. Außerdem war die Stabilisierung des Verdopplungsresonators bei hohen

Leistungen nur durch Verwendung eines in die Seed-Diode zurückgeführten Strahls (feed-back) aus dem Verdopplungsresonator möglich [BWS⁺97]. Das erschwert das Durchstimmen des Diodenlasers sehr, da dieser zunächst durch das feed-back auf der ursprünglichen Frequenz bleibt. Aus diesen Gründen wurde für die Messungen dieser Arbeit ausschließlich das vorgestellte frequenzverdoppelte Ti:Sa Lasersystem verwendet.

3.3 Das grüne Lasersystem

Der verbleibende Energieunterschied zwischen dem 7^1S -Niveau der Zwei-Photonen-Resonanz und der angestrebten Lyman- α Strahlung entspricht einer Wellenlänge von 545,5 nm (siehe auch Abbildung 1.3). Dafür wurde als Ersatz für den früher verwendeten Farbstofflaser [EWH99, EWH01] ein modernes Festkörperlasersystem aufgebaut. Dieses System besteht aus einem Faseroszillator bei 1091 nm, auf den zwei Faserverstärkerstufen folgen. Zur Verdopplung auf die benötigten 545,5 nm wird wieder ein Frequenzverdopplungsresonator verwendet. Das System wird im Detail in [Mar09] beschrieben und soll hier nur kurz referiert werden. Der Aufbau ist in Abbildung 3.13 gezeigt.

Startpunkt ist der Faseroszillator (Koheras Adjustik). Dieser liefert bis zu 127 mW Leistung bei Wellenlängen zwischen 1090,81 nm und 1091,2 nm. Danach wird der Strahl für eine kurze Strecke aus der Faser ausgekoppelt um mit einem Phasenmodulator Seitenbänder für die Pound-Drever-Hall Stabilisierung [DHK⁺83] des Verdopplungsresonators aufzuprägen. Das Aufmodulieren der Seitenbänder muss vor dem Hauptverstärker erfolgen, da der verstärkte Strahl bereits Intensitäten jenseits der Zerstörschwelle des Phasenmodulators besitzt. Der Strahl wird wieder in eine Faser eingekoppelt und die Verluste in einem Vorverstärker (Koheras Boostik) ausgeglichen. Schließlich wird der Strahl im Hauptverstärker von zwischen 90 mW und 120 mW Eingangsleistung auf bis zu 9,3 W Ausgangsleistung verstärkt. Da nicht polarisationserhaltende Fasern verwendet werden, kann die Polarisation mit Verzögerungsplatten auf die für den Verdopplungsresonator passende Polarisation gedreht werden. Die Frequenzverdopplung ist ein kommerzieller Aufbau (Spectra Physics Wavetrain). Das so genannte Delta Konzept ([ZMLG99]) verwendet ein Prisma zur Umlenkung der Strahlen. Der Resonator enthält somit nur noch einen Einkoppel- und einen Auskoppelspiegel und wird daher sehr kompakt. Zur Stabilisierung wird das Fehlersignal der Pound-Drever-Hall Stabilisierung auf das auf einem Piezo befestigte Prisma gegeben. Als nichtlinearer Kristall kommt ein Brewster-geschnittener, Typ I winkelphasenangepasster LBO-Kristall zum Einsatz. Dieser wird, wieder um Kondensation von Wasserdampf zu vermeiden, auf 35° Celsius geheizt. Zum Schutz vor Rückreflexen wird ein Faraday-Isolator verwendet. Aus der nach dem Faraday-Isolator noch zur Verfügung stehenden 8,3 W Infrarot-Strahlung werden bis zu 4,1 W grünes Licht bei 545,5 nm gewonnen. Dies entspricht einer Konversionseffizienz von 49 %. Da im Faseroszillator und Verstärker single-mode Fasern

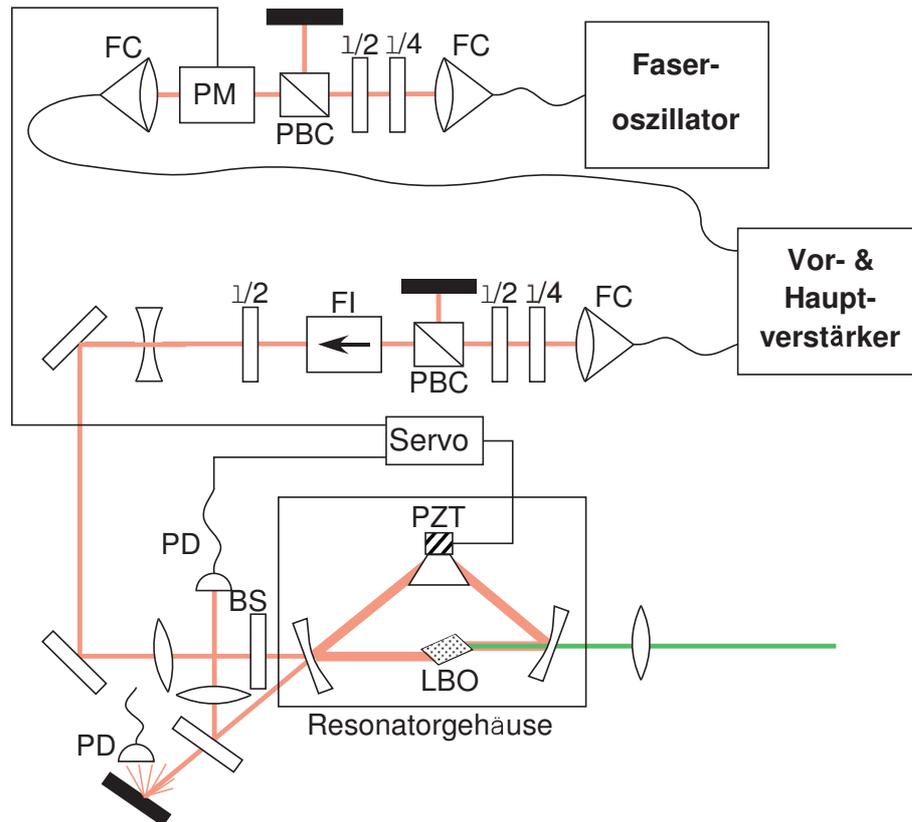


Abbildung 3.13: Aufbau des 545,5 nm Lasersystems. Der Strahl des Faseroszillators wird mit Faserkopplern (FC) ein- und ausgekoppelt. Mit einem Phasenmodulator (PM) werden Seitenbänder für das Fehlersignal aufmoduliert. Mit den $\lambda/4$ und $\lambda/2$ Wellenplatten kann die Polarisation angepasst werden, da diese in den Fasern nicht erhalten wird. Die Strahlung wird dann im Verstärker verstärkt. Dieser wird mit einem Faraday-Isolator (FI) vor Rückreflexen geschützt. Im Frequenzverdopplungsresonator wird das Licht in einem LBO Kristall verdoppelt. Zur Stabilisierung wird das Pound-Drever-Hall Verfahren verwendet. Die Photodioden (PD) nehmen das Fehler- und Referenzsignal auf. (PBC: polarisierende Strahlteilerwürfel; BS: Strahlverschieber; PZT: Piezokeramik; nicht bezeichnet sind Linsen und Spiegel)

eingesetzt werden, hat das Faserlasersystem ein sehr gutes Strahlprofil. Das erleichtert die Einkopplung in den Resonator. Da der im Resonator umlaufende Strahl elliptisch ist, wird die Linse zur Modenanpassung leicht schräg gestellt. Das Strahlprofil des verdoppelten, grünen Strahls ist in Abbildung 3.14 gezeigt. Durch den geringen Walk-off-Winkel von 5,61 mrad des LBO-Kristalls bei dieser Wellenlänge ergibt sich ein, im Vergleich zu den anderen beiden Laserstrahlen, sehr gutes Strahlprofil. In [MSKW07] wird das Durchstimmen des Lasersystems über den gesamten zugänglichen Bereich von 545,4 nm-545,6 nm mit einer Jod-Spektroskopie demonstriert. Das Durchstimmen über diesen Bereich wird über die Temperatur der Oszillatorfaser realisiert. Dazu wird die Faser von 20° C auf 50° C erwärmt. Ein schnelles Durchstimmen um bis zu 8,4 GHz bei der fundamentalen Frequenz kann zusätzlich über einen Piezo, der die Faser des

Oszillators dehnt, bewerkstelligt werden. Damit wurde in [MSKW07] eine Doppler-freie Iod-Spektroskopie eines kleineren Ausschnitts des obigen großen Durchstimmbereichs aufgenommen.

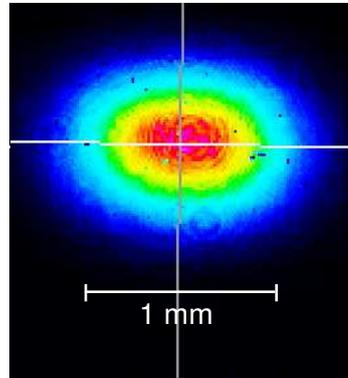


Abbildung 3.14: Strahlprofil des grünen Strahls. *Gezeigt ist das Strahlprofil des 545,5 nm Strahls im aufgeweiteten Zustand. Der grüne Strahl hat nur einen minimalen Walk-Off und daher das beste Strahlprofil unserer fundamentalen Strahlen.*

Leider müssen zum Faserlasersystem zwei einschränkende Ergänzungen gemacht werden. Zum Einen heizt sich der LBO Kristall im Resonator durch lineare Absorption der umlaufenden Infrarotstrahlung auf, was den Winkel der Phasen Anpassung ändert. Dies kann nachträglich korrigiert werden. Dadurch ist die ideale Phasen Anpassung aber ohne Neujustage nur bei der dabei eingestellten Leistung des Faserverstärkers möglich. Bei stärker abweichenden Leistungen verzieht sich das Strahlprofil, und die Konversionseffizienz sinkt. Zum Anderen mussten wir feststellen, dass beim Faserverstärker bei hohen Leistungen die Eintrittsfacette durch verstärkte Emission in Gegenrichtung zerstört werden kann. Die Verzögerungen durch zum Teil mehrmonatige Reparaturzeiten durch den Hersteller stellten ein großes Hindernis dar. Deshalb wurde der Faserverstärker für die Messungen dieser Arbeit äußerst konservativ mit einer Ausgangsleistung von 800 mW betrieben. Daraus ergeben sich bis zu 300 mW verdoppelte grüne Leistung. Mit dieser Einschränkung um mehr als das 10-fache an zur Verfügung stehender Leistung bei 545,5 nm sind hohe absolute Lyman- α Leistungen wesentlich schwerer zu realisieren. Deshalb steht in dieser Arbeit die Erhöhung der relativen Konversionseffizienz im Vordergrund, bei der die Lyman- α Leistung auf die eingehenden fundamentalen Leistungen normiert wird. Diese Ergebnisse können mit höheren Leistungen bei 545,5 nm und auch generell für spätere Experimente zum Beispiel in einem Drei-Farben-Überhöhungs Resonator genutzt werden. Um verlässlich höhere Leistungen bei 545,5 nm zu ermöglichen befindet sich in unserer Arbeitsgruppe ein eigener Faserverstärker im Aufbau [Ste09].

3.4 Strahlüberlagerung

Nach Gleichung 2.11 aus Kapitel 2.2 ist klar, dass für ein effizientes Vier-Wellen-Mischen die fundamentalen Strahlen möglichst klein fokussiert werden müssen. Außerdem müssen die drei fundamentalen Strahlen kollinear sein, möglichst keinen Astigmatismus aufweisen und ihren Fokus am gleichen Ort entlang der Strahlachse haben. Um diese Anforderungen zu erfüllen, wurde eine Strahlüberlagerung aufgebaut, die in Abbildung 3.15 gezeigt wird.

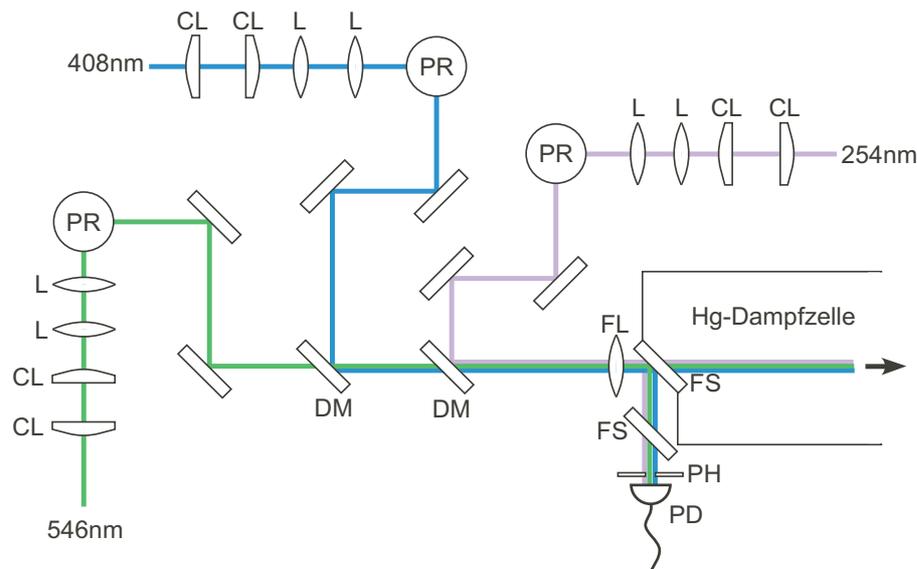


Abbildung 3.15: Strahlüberlagerung der Fundamentalstrahlen. *Mit Hilfe von Zylinderlinsen (CL) wird der Astigmatismus der fundamentalen Strahlen kompensiert. Anschließend werden sie mit Teleskopen (L) aufgeweitet, um nach der Überlagerung durch dichroitische Spiegel (DM) möglichst groß auf der Fokussierlinse (FL) zu sein. Mit jeweils zwei Spiegeln werden die Strahlen vorher senkrecht zur Abbildung auf die richtige Höhe gehoben (PR). Durch das Quarzfenster (FS) gelangen die Strahlen in die Apparatur. Zur Justage der Strahlüberlagerung dienen ein Pinhole (PH) eine Photodiode (PD). Das zweite Quarzfenster simuliert den Astigmatismus des Eintrittsfensters.*

Zunächst wird der Astigmatismus für jeden der drei fundamentalen Strahlen mit einem Zylinderlinsen-Teleskop kompensiert. Kompensiert heißt hierbei, dass der Astigmatismus des Fokus in der Quecksilberzelle minimiert wird. Das 3 mm dicke Eintrittsfenster der Quecksilberdampfzelle aus UV-fused-silica steht im 45° Winkel zum Strahl. Daher verursacht es in den auf den Fokus zulaufenden Fundamentalstrahlen einen zusätzlichen Astigmatismus zu dem durch den walk-off der nichtlinearen Kristalle verursachten. Auch dieser muss kompensiert werden. Um einen harten Fokus zu erreichen wird eine möglichst kleine Brennweite der Fokussierlinse vor der Dampfzelle gewählt. Durch den Abstand der Quecksilberdampfregion zum Eintrittsfenster der Zelle ist die Brennweite der Fokussierlinse auf minimal 15 cm limitiert. Um trotzdem harte Foki zu erreichen werden die Fundamentalstrahlen jeweils mit einem Teleskop aufgeweitet.

Wegen der Dispersion der Fokussierlinse aus unbeschichtetem UV-fused-silica muss der grüne Strahl leicht vorfokussiert und der UV-Strahl leicht defokussiert werden. Nur dann können die Foki überlagert werden. Um die Strahlen auf die für die Quecksilberdampfzelle nötige Höhe zu bringen, werden sie mit Strahlaufzügen, bestehend aus je zwei Spiegeln auf eine stabile Plattform vor der Zelle gehoben. Die Strahlaufzüge drehen auch gleich die Polarisation auf p-polarisiert, um die Verluste am Eintrittsfenster zu vermindern. Oben auf der Plattform werden die Strahlen an dichroitischen Spiegeln überlagert. Der erste dichroitische Spiegel transmittiert grüne Strahlung und reflektiert blaue. Der zweite dichroitische Spiegel transmittiert grüne und blaue Strahlung und reflektiert UV-Strahlung. Die Justagespiegel zur transversalen Strahlüberlagerung befinden sich ebenfalls auf der Plattform, um schwingungsanfällige, lange Spiegelhalter zu vermeiden. Es werden piezoelektrisch gesteuerte Spiegelhalter verwendet, um die nötige Feinjustage zu erleichtern. Schließlich werden die fundamentalen Strahlen mit der Fokussierlinse in die Quecksilberdampfzone fokussiert. Der Reflex vom Eintrittsfenster wird als Justagehilfe genutzt. Dazu wird auch hier ein baugleiches UV-fused-silica Fenster in den Strahl gestellt. Durch das Fenster haben die Strahlen im Reflex den gleichen Astigmatismus wie die Strahlen in der Zelle. Die drei Fundamentalstrahlen bekommen im Eintrittsfenster durch die verschiedenen Brechungsindizes für die drei Farben einen relativen Strahlversatz von ca. $50\ \mu\text{m}$. Der gleiche Effekt tritt auch in dem Fenster im seitlichen Reflex auf. Damit entspricht die Fokusüberlagerung der seitlichen Reflexe der Fokusüberlagerung in der Zelle. In den Fokus der seitlichen Reflexe wird eine Aperturblende mit $20\ \mu\text{m}$ Durchmesser gestellt. Die Strahlüberlagerung kann dann durch eine Photodiode hinter der Aperturblende bereits sehr gut vorjustiert werden. Um auch quantitative Aussagen über die Strahlüberlagerung und die erreichten b-Parameter zu ermöglichen, kann die Aperturblende durch eine Rasierklinge auf einem motorisierten Verschiebetisch ersetzt werden. Damit kann in teilautomatisierter Weise das Strahlprofil der Fundamentalstrahlen nach der so genannten Knife-edge Methode [WGFA92] vermessen werden. Dazu wurden alle drei Strahlen entlang des Fokus, einmal in horizontaler x-Richtung und einmal in 45° gedrehter x/y-Richtung, vermessen. Der gemessene Astigmatismus wurde dann mit den Zylinderlinsen kompensiert. Die gemessenen Strahlverläufe nach der Astigmatismuskompensation werden in Abbildung 3.16 gezeigt.

Der b-Parameter eines Strahls beschreibt den Bereich um den Fokus, bis der Strahl sich um einen Faktor $\sqrt{2}$ aufgeweitet hat. Für den b-Parameter eines Gauß-Strahls gilt [Sve98]:

$$b = \frac{\pi\omega_0^2}{\lambda} \quad . \quad (3.4)$$

Daher sollte bei gleichem b-Parameter der UV-Strahl einen kleineren Fokus aufweisen als der blaue Strahl und der wiederum einen kleineren Fokus als der grüne Strahl. Dies ist in x/y-Richtung zu erkennen. In x-Richtung werden die Strahlen aber durch

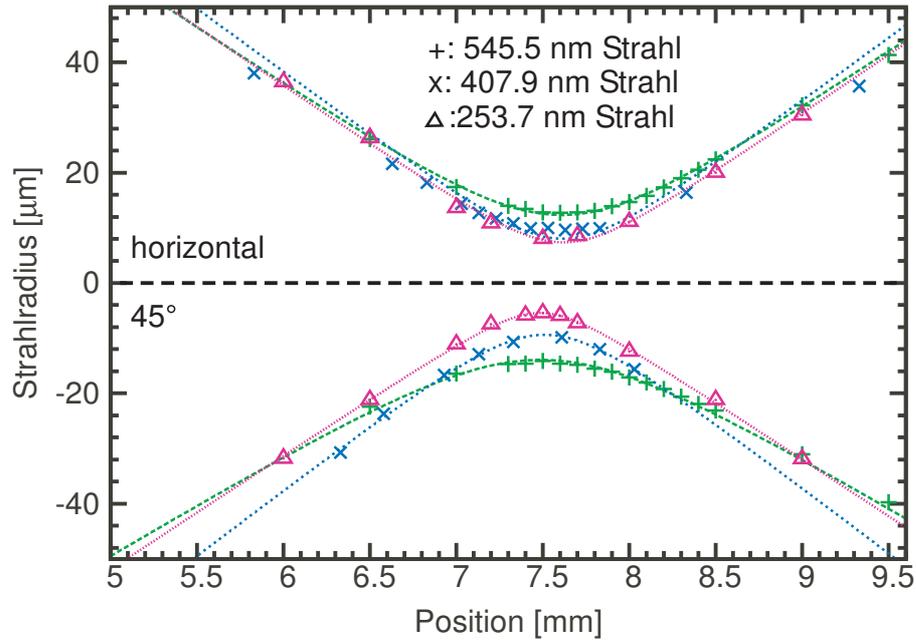


Abbildung 3.16: Fokusüberlagerung der fundamentalen Strahlen. Aufgetragen ist der Strahlradius in horizontaler Richtung (positive Werte) und in 45° gedrehter Richtung (negative Werte) gegen die Position. Die Werte wurden mit der Knife-Edge Methode gemessen. Die grünen Kreuze sind die Messwerte des grünen Laserstrahls, die blauen Datenpunkte (X) sind die Messwerte des blauen Strahls und die lila Dreiecke sind die des UV-Strahls. Die eingezeichneten Linien wurden nach Gleichung 3.6 an die Daten angepasst, um die Strahlparameter zu bestimmen. Gezeigt ist nur der interessante Ausschnitt um den Fokus. Es wurden auch weiter entfernte Punkte aufgenommen und für die Fits verwendet.

den walk-off Effekt der nichtlinearen Verdopplungskristalle verformt, speziell der UV-Strahl. Gleichung 3.4 gilt für solche nicht-Gaußschen Strahlen nicht mehr und der Fokus des UV-Strahls wird größer bei gleichem b-Parameter. Solche nicht-Gaußschen Strahlen lassen sich mit Hilfe des M^2 -Parameters beschreiben, der angibt, wie weit der reale Strahl vom idealen Gauß-Strahl abweicht:

$$M^2 = \frac{\omega_{0R}\Theta_R}{\omega_0\Theta} \quad . \quad (3.5)$$

Dabei ist ω_{0R} beziehungsweise Θ_R der tatsächlich gemessene Fokusradius beziehungsweise der gemessene Divergenzwinkel und ω_0 bzw. Θ die Werte für einen idealen Gauß-Strahl. Damit kann nun der Strahlradius eines realen Strahls während seiner Propagation wie folgt beschrieben werden [Sve98]:

$$\omega_R = \omega_{0R} \sqrt{1 + \left(\frac{z\lambda M^2}{\pi\omega_{0R}^2} \right)^2} \quad . \quad (3.6)$$

Betrachtet man nun die Strecke nach der sich der reale Strahl um einen Faktor $\sqrt{2}$ aufgeweitet hat, läßt sich ein effektiver b-Parameter bestimmen:

$$b_{eff} = \frac{\pi\omega_{0R}^2}{\lambda M^2} \quad (3.7)$$

In [Sve98] wird das Konzept des eingebetteten Gauß-Strahls vorgestellt. Dabei beschreibt man den realen Strahl durch einen eingebetteten Gauß-Strahl mit M -fach kleinerem Fokus und M -fach kleinerer Divergenz. Dieses Konzept ist insbesondere für die in Kapitel 4.1 vorgestellte Messung und Berechnung der Phasenanpassungstemperatur relevant. Mit Gleichung 3.6 kann ein Fit an den mit der Knife-Edge Methode gemessenen Verlauf des Strahlprofils gelegt werden. Die daraus resultierenden Kurven sind in Abbildung 3.16 mit eingezeichnet. Die sich daraus ergebenden Werte der Fundamentalstrahlen sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst. Die mit aufgeführten Werte für den M^2 -Parameter in x/y -Richtung besitzen wegen des Restastigmatismus aber nur eine begrenzte Aussagekraft. Hier sind die beiden Achsen miteinander gekoppelt. Insgesamt konnte mit der angewendeten Methode ein gutes Bild der verwendeten Fundamentalstrahlen gewonnen werden.

Tabelle 3.1: Strahlparameter der fundamentalen Strahlen im Fokus der Quecksilberdampfzelle. ω_{0Rx} bezeichnet den gemessenen Strahlradius des Fokus in x -Richtung, b_x den effektiven b -Parameter in x -Richtung und M_x^2 den M^2 -Parameter in x -Richtung. Die entsprechenden Werte für die in 45° gedrehte x/y -Richtung werden der Vollständigkeit halber ebenfalls angegeben. Die Werte wurden durch einen Fit an die Daten aus Abbildung 3.16 gewonnen.

| Lasert | ω_{0Rx} [μm] | b_x [mm] | M_x^2 | $\omega_{0Rx/y}$ [μm] | $b_{x/y}$ [mm] | $M_{x/y}^2$ |
|--------|----------------------------------|------------|---------|------------------------------------|----------------|-------------|
| grün | 12.3 | 1.16 | 1.5 | 13.9 | 1.46 | 1.5 |
| blau | 8.8 | 0.78 | 1.5 | 9.4 | 0.78 | 1.7 |
| UV | 7.3 | 0.68 | 2 | 5.4 | 0.52 | 1.4 |

3.5 Lyman- α Produktion, Detektion und Datenaufnahme

In der Quecksilberdampfzelle wird das nichtlineare Medium für das Vier-Wellen-Mischen zur Lyman- α Erzeugung zur Verfügung gestellt. Der gesamte Aufbau der Zelle ist in Abbildung 3.17 gezeigt.

Die eigentliche Zelle besteht aus zwei Teilen. Im unteren breiteren Teil befindet sich das Quecksilberreservoir mit etwa 200 g Quecksilber mit natürlichem Isotopengemisch. Dieser Bereich wird mit zwei Heizpatronen geheizt. Im oberen Bereich befindet sich die 1,6 cm lange Quecksilberdampfzone mit zwei Öffnungen für den Strahlzugang. Der obere Bereich kann, ebenfalls über zwei Heizpatronen, separat beheizt werden. Über

100 mbar Helium-Puffergas gefüllt, um die Diffusion des Quecksilberdampfes zu vermindern. In [EWH99, EWH01] wurde beobachtet, dass auf der Separationslinse bei hohen Laserleistungen eine VUV-undurchlässige Schicht gebildet wird. Das wird auf eine UV-induzierte Spaltung organischer Restgasmoleküle zurückgeführt. Damit diese nicht auf der Linse kondensieren, werden - zusätzlich zum Heizen der Linse - noch zwei mit Flüssig-Stickstoff gekühlte Bereiche um die Linse angebracht.

Um die produzierte Lyman- α Strahlung detektieren zu können, muss sie zunächst von den fundamentalen Strahlen abgetrennt werden. Dazu werden als erstes mit einer Blende die äußeren Bereiche der nach Gleichung 3.6 stärker aufgehenden Fundamentalstrahlen ausgeblendet. Die Hauptabtrennung findet mit Hilfe der schon erwähnten Separationslinse statt. Diese ist mit einer Indiumdichtung in dem Vakuumrohr zur Strahlführung angebracht und bildet so auch die Begrenzung der Quecksilberzone. Da Lyman- α Strahlung schon nahe an der Absorptionskante von MgF_2 liegt, hat die Linse wegen der starken Dispersion nahe einer Absorptionskante einen deutlich höheren Brechungsindex für Lyman- α Strahlung als für die Fundamentalstrahlen. Daher hat die MgF_2 Linse auch deutlich unterschiedliche Brennweite für die fundamentalen Strahlen und den erzeugten Lyman- α Strahl ($f_{\text{vis}}=21,5$ cm, $f_{\text{Ly-}\alpha}=13$ cm). Dadurch liegt der Fokus des Lyman- α Strahls vor dem der fundamentalen Strahlen. In deren Fokus wird nun ein kleiner (Durchmesser 3 mm), in 45° abgeschliffener und polierter Metallstift platziert. Dieser Stift reflektiert die fundamentalen Strahlen durch ein Fenster zur Seite aus der Apparatur heraus. Der Lyman- α Strahl ist an dieser Stelle bereits wieder aufgeweitet, so dass der größte Teil transmittiert wird ($T \approx 70\%$). Um das fundamentale Streulicht weiter zu unterdrücken, werden drei Interferenzfilter ($2 \times$ Acton 122-N-1D, $1 \times$ Acton 122-XN-1D) verwendet und die Lyman- α Strahlung schließlich mit einem im sichtbaren unempfindlichen Photomultiplier (Hamamatsu R6835) detektiert. Trotzdem gibt es, insbesondere bei kleinen UV-Verstimmungen, noch einen deutlichen Hintergrund zu der Lyman- α Zählrate. Der Hintergrund wird durch den UV-Laser verursacht (siehe dazu auch Kapitel 4.5). Um diesen Hintergrund zu beseitigen wird der grüne Strahl jeweils für eine Sekunde eingestrahlt und dann geblockt. Der gemessene Hintergrund ohne grünen Strahl wird dann vom Gesamtsignal abgezogen, und man erhält die reine Lyman- α Zählrate.

Auch der Separations- und Detektionsbereich wird bis zu 100 mbar Puffergas gefüllt, um auch von dieser Seite die Bildung einer VUV-undurchlässigen Schicht auf der Separationslinse zu verhindern. Als Puffergas wird hier Argon verwendet, da Helium durch das Fenster des Photomultipliers diffundieren und diesen beschädigen kann [BKV00]. Aus den mit dem Metallstift herausreflektierten Strahlen lassen sich wichtige Informationen gewinnen. Zum Einen wird mit einem dichroitischen Spiegel die UV-Strahlung abgetrennt und mit einem Leistungsmesskopf detektiert. Daraus und aus der ebenfalls aufgenommenen UV-Leistung vor der Quecksilberdampfzelle kann die Absorption aufgrund der $6^1\text{S}-6^3\text{P}$ Resonanz ermittelt werden. Zum Anderen wird mit dem Metallstift auch ein winziger Anteil des in der Dampfzone erzeugten und in 4π ab-

gestrahlten infraroten Streulichts herausreflektiert. Das Streulicht entsteht durch den $7^1\text{S}-6^1\text{P}$ Zerfall des durch die Zwei-Photonen-Resonanz angeregten 7^1S Niveaus (siehe auch Abb. 1.3). Um dieses IR-Streulicht bei 1014 nm detektieren zu können, wird es mit einem IR-Filter und einem Interferenzfilter für 1014 nm von den verbleibenden grünen und blauen Fundamentalstrahlen abgetrennt. Zusätzlich kann die UV-Strahlung mit einem Unterbrecher-Rad periodisch unterbrochen werden. Das dann ebenfalls periodische IR-Streulicht kann mit Hilfe der Lock-In Technik vom Untergrund abgetrennt werden. Die Verwendung der Lock-In Technik ist notwendig, da das IR-Signal bei großen UV-Verstimmungen sehr klein ist. Das IR-Streulicht kann als wichtige Justagehilfe für die Überlagerung des blauen und des UV-Fokus genutzt werden. Außerdem hat man dadurch eine zusätzliche vom Lyman- α Signal unabhängige Information über die Zwei-Photonen-Resonanz. Es können während des Durchstimmens über die Zwei-Photonen-Resonanz gleichzeitig das IR-Streulicht und die Lyman- α Strahlung aufgenommen werden. Die Ergebnisse dieser Messungen werden in Kapitel 4.3 diskutiert. Da Lyman- α Strahlung von Luft absorbiert wird, muss die gesamte Apparatur vor dem Befüllen mit Puffergas evakuiert werden. Dazu wird eine Scroll-Pumpe als Vorpumpe und eine Turbo-Pumpe als Hauptpumpe verwendet. Um zu verhindern, dass durch den Quecksilberpartialdruck ($p_{\text{Hg}}(20^\circ\text{C})=1,63 \times 10^{-3}$ mbar) beständig Quecksilber aus der Zelle in das Labor gepumpt wird, ist in die Pumpstrecke eine Flüssig-Stickstoff Falle integriert, in welcher der Quecksilberdampf kondensiert. Wegen des Quecksilbers war es nicht möglich die Zelle auszuheizen. Typischerweise werden Vakuumdrücke von 10^{-7} mbar erreicht. Gemessen wird mit einem Magnetron Messgerät auf der zu den Pumpen zeigenden Seite der Kühlfalle. Auf der Quecksilberseite der Kühlfalle befindet sich nur ein ungenaues Membran-Vakuummessgerät für die Bestimmung des Puffergasdrucks. Das Magnetron könnte durch den heißen Quecksilberdampf beschädigt werden. Daher ist der genaue Restgasdruck in der Quecksilberdampfzelle nicht bekannt. Für die Zukunft wäre es interessant, das Magnetron auf die Quecksilberseite der Kühlfalle zu stellen und mit einem zusätzlichen Ventil vor dem Aufheizen der Zelle von der Dampfregion abzutrennen.

Um für die spätere Auswertung alle relevanten Daten zur Verfügung zu haben, werden diese mit einem Rechner aufgenommen und gespeichert. Eine Darstellung der aufgenommenen Daten, wie sie von uns direkt während der Messungen im Labor verwendet wird, ist in Abbildung 3.18 gezeigt. Aufgenommen werden die drei Wellenlängen der fundamentalen Laser, im Bild bezeichnet mit *Wellenlänge UV*, *Wellenlänge blau* und *Wellenlänge grün*. Angegeben ist eine Abweichung in nm. Gemessen wurde mit dem High Finesse Wavemeter WS7. Aus der UV-Wellenlänge kann die Verstimmung des UV-Lasers zur 6^3P Resonanz berechnet werden. Aus der blauen und der UV-Wellenlänge kann die Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz berechnet werden und aus der grünen Wellenlänge die Wellenlänge der erzeugten VUV-Strahlung. Des Weiteren werden die Leistungen der fundamentalen Strahlen vor der Zelle an Photodioden überwacht und aufgenommen, im Bild bezeichnet mit *Leistung UV*, *Leistung blau* und

Leistung grün. Angegeben ist die Photodiodenspannung in V. Damit können später Datenpunkte, bei denen einer der fundamentalen Laser keine Leistung hatte, etwa weil ein Resonator aus der Stabilisierung geworfen wurde, aussortiert werden. Generell kann damit das Lyman- α Signal auf die fundamentalen Leistungen normiert werden. Das ist deshalb wichtig, da man so Aufschluss erhält, wie man prinzipiell die Effizienz der Lyman- α Erzeugung erhöhen kann. Natürlich wird auch die Zahlrate des Photomultipliers mitgeschrieben, im Bild angegeben als *Photomultiplier counts*. Gemessen wird die Zählrate pro Sekunde. Durch Abziehen der jeweils aufeinander folgenden Zahlen erhält man die Lyman- α Zählrate ohne Hintergrund (*Ly-a counts*; Zählrate in 1/s). Auch die acht nicht zur Regelung verwendeten Typ K Thermoelemente werden mitgeschrieben (*Temperatur*; Temperatur in °C). Aus den gemittelten Temperaturdaten wird die Zelltemperatur für die Messungen zur Phasenanpassungstemperatur berechnet. Schließlich wird noch das Lock-In Signal der Photodiode für das IR-Streulicht in Volt mitgeschrieben, im Bild als *IR Signal* bezeichnet und die transmittierte UV-Leistung, im Bild als *UV Transmission* bezeichnet, ebenfalls in Volt. Auf der x-Achse ist die Zeit in Sekunden angeben. Die Abbildung zeigt alle diese Daten während des Durchfahrens der Zelltemperatur über die Phasenanpassungstemperatur. Die Abbildung ist damit die Überleitung zum nächsten Kapitel, in dem die experimentellen Ergebnisse präsentiert werden. Die blaue und die UV-Wellenlänge werden während der Messung stabilisiert, wie in den jeweiligen Abschnitten erklärt. Der Faserlaser des grünen Lasersystems läuft ohne Wellenlängenstabilisierung, da die Abhängigkeit der Lyman- α Leistung von der grünen Wellenlänge in dem mit dem Faserlaser zugänglichen Bereich sehr gering ist. Man erkennt in der Abbildung deutlich das Maximum der Lyman- α Zählrate bei Phasenanpassung. Die UV-Transmission nimmt mit sinkender Temperatur natürlich zu. Das Zwei-Photonen-Signal nimmt ab, da weniger Atome am Prozess teilnehmen.

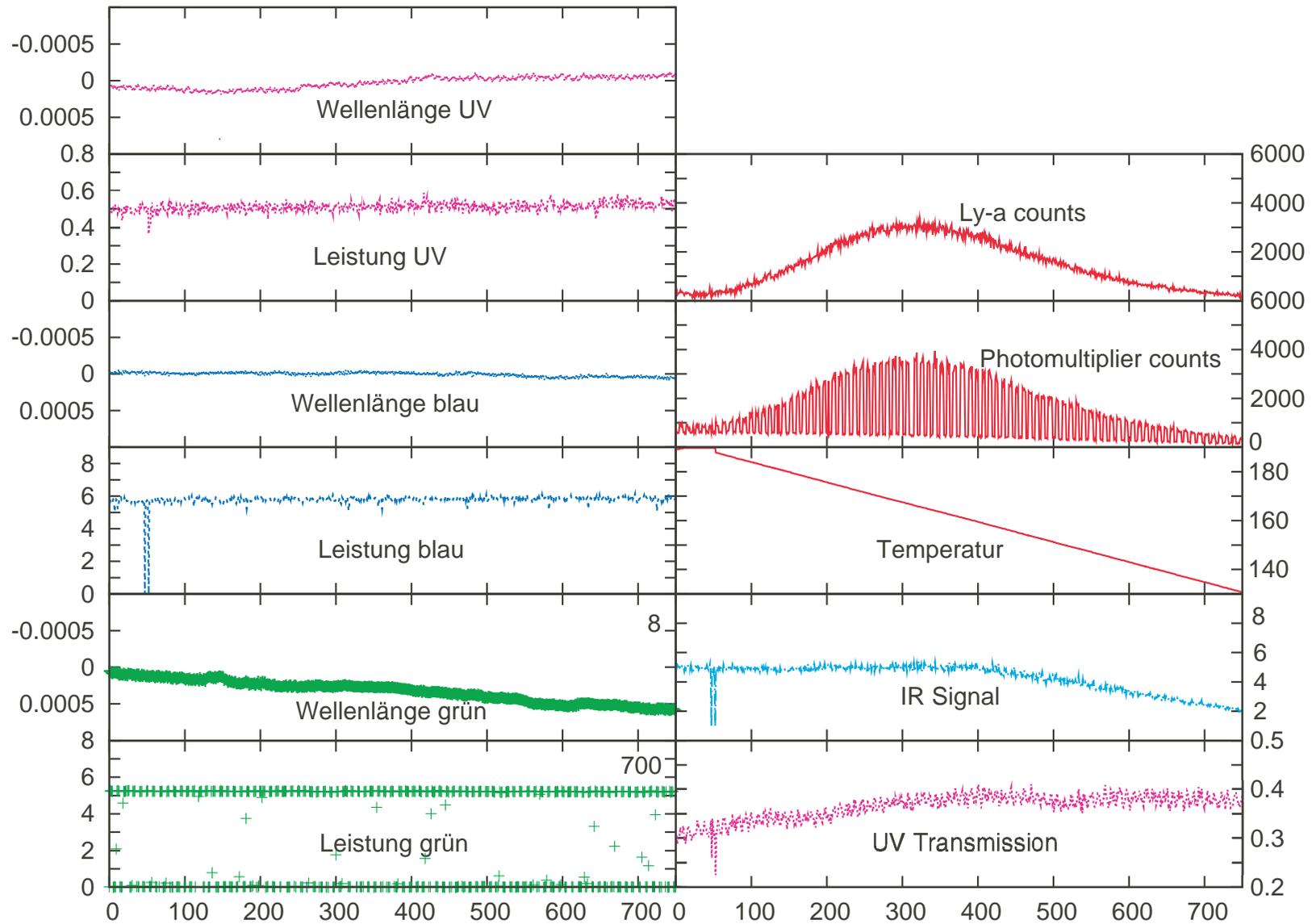


Abbildung 3.18: Darstellung der aufgenommenen Daten wie sie im Labor verwendet wird. Weitere Informationen werden im Text gegeben.

Kapitel 4

Experimentelle Ergebnisse

Im folgenden Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse zur Lyman- α Erzeugung präsentiert, wobei speziell auf den Einfluss des fundamentalen Lasers nahe der 6^3P Resonanz in Quecksilber eingegangen wird. Zunächst wurden als Grundlage für die folgenden Messungen und auch generell für spätere Experimente die unterschiedlichen Phasen Anpassungstemperaturen für verschiedene UV-Verstimmungen gemessen und mit der Theorie verglichen. Diese Ergebnisse finden sich in Abschnitt 4.1. Im zweiten Abschnitt wird der Einfluss der Fokusposition der Fundamentalstrahlen in der Quecksilberdampfzelle untersucht, und im dritten Abschnitt werden Durchstimmkurven über die 6^1S - 7^1S Zwei-Photonen-Resonanz vorgestellt, beides insbesondere wieder im Hinblick auf verschiedene UV-Verstimmungen. Außerdem wird in Abschnitt 4.3 der Einfluss des Helium-Puffergases gemessen. In Abschnitt 4.4 geht es um die Effizienzsteigerung der Lyman- α Erzeugung durch Annäherung an die 6^3P Resonanz, die erreichte Leistung und die noch vorhandenen Beschränkungen. Im Abschnitt 4.5 geht es abschließend um andere Strahlungsfelder, die neben der Lyman- α Strahlung durch Einstrahlen eines oder mehrerer der fundamentalen Laser erzeugt werden. Dies umfasst den VUV-Hintergrund, inkohärente sichtbare Strahlung und, als besonderes Bonbon, die erstmalige Erzeugung von kontinuierlicher, kohärenter Strahlung auf der $6^1\text{P} - 7^1\text{S}$ Linie durch stimulierte Emission induziert von Zwei-Photonen-Absorption.

4.1 Abhängigkeit der Phasen Anpassungstemperatur von der UV Verstimmung

Aus der Theorie in Kapitel 2.4 ist bereits klar, dass die Phasen Anpassungstemperatur aufgrund der steigenden Dispersion für kleinere UV-Verstimmungen zur 6^3P Resonanz sinken wird. So war es in früheren Arbeiten [EWH01] mit der großen Verstimmung von 16 THz durch den frequenzverdoppelten Argon-Ionen Laser nicht möglich, Temperaturen jenseits der Phasen Anpassungstemperatur zu erreichen. Die Phasen Anpassungstemperatur lag sehr dicht an der maximalen Temperatur der Zelle. Über dieser Temperatur beginnen die Optiken mit Quecksilber zu beschlagen. Mit unserem neuen

Lasersystem konnte erstmals bei einer UV-Verstimmung von 400 GHz eine komplette Phasenanpassungskurve aufgenommen werden [SKM⁺09, Mar09]. Allerdings ergab sich mit 39°C eine hohe Differenz zu dem theoretisch berechneten Wert.

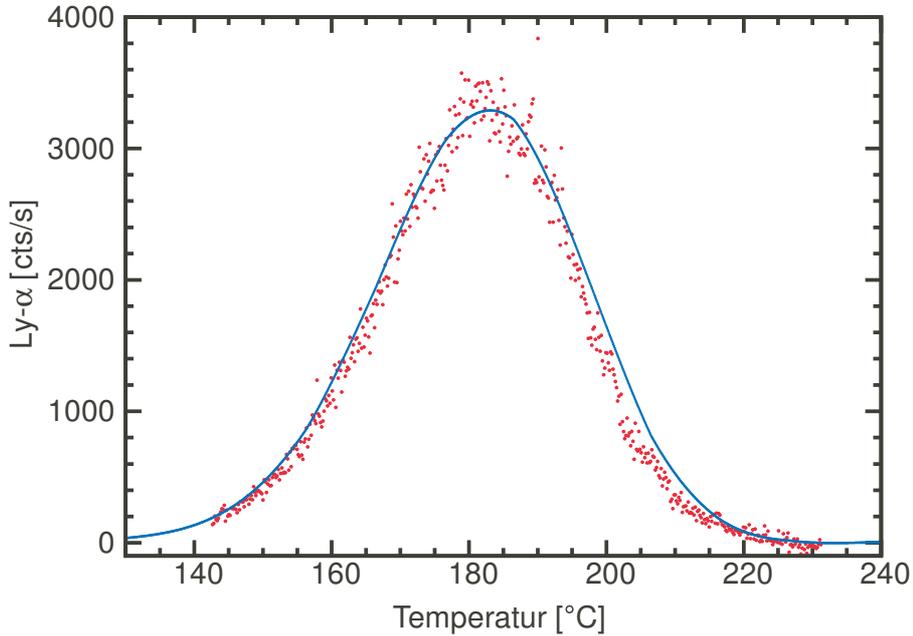


Abbildung 4.1: Phasenanpassungskurve für eine UV-Verstimmung von 400 GHz. Die Datenpunkte sind die gemessene Lyman- α Zählrate über der gemittelten Temperatur der Quecksilberdampfzelle. Deutlich ist das Maximum der Phasenanpassung bei 181 °C zu erkennen. Die Theoriekurve wurde nach Kapitel 2.4 berechnet und enthält die relative Höhe als einzigen freien Parameter. Um die Kurven zur Deckung zu bringen, musste die Theoriekurve um lediglich 6 °C zu höheren Temperaturen verschoben werden. Die Abkürzung cts steht für counts.

In Abbildung 4.1 wird eine neue Messung der Phasenanpassungstemperatur gezeigt, wieder bei einer UV-Verstimmung von 400 GHz aufgenommen. Ebenfalls eingezeichnet ist eine nach Gleichung 2.20, theoretisch berechnete Kurve, wobei die Höhe der Kurve an die Datenpunkte angepasst wurde. Um die beiden Kurven zur Deckung zu bringen war nur noch eine Verschiebung von 6 °C der Theoriekurve zu höheren Temperaturen hin nötig. Die deutlich bessere Übereinstimmung von Theorie und Experiment ergibt sich aus zwei Beiträgen. Zum Einen wurde in [SKM⁺09, Mar09] mit idealen Gauß-Strahlen gerechnet, deren b -Parameter aus dem Strahlradius des grünen Strahls im Fokus abgeschätzt wurden. Die genauere Messung in Abbildung 3.16 ergibt wegen der nicht-Gaußschen Strahlen ($M^2 > 1$) kleinere b -Parameter. Dies verschiebt die berechnete Phasenanpassungstemperatur nach oben. Die Gleichung 2.20 wurde für nicht elliptische, perfekte Gauß-Strahlen hergeleitet. Für die berechnete Theoriekurve in Abbildung 4.1 wurden die gemessenen b -Parameter der nicht-Gaußschen Strahlen eingesetzt. Diese stimmen mit den b -Parametern der eingebetteten Gauß-Strahlen überein, und es wurde angenommen, dass diese den Hauptteil der Lyman- α Produktion tragen. Außerdem verlaufen die Phasenfronten des eingebetteten Gauß-Strahls und die des

tatsächlichen, nicht-Gaußschen Strahls beim Durchgang durch den Fokus stets gleich [Sve98], und eben dieser Verlauf der Phasenfronten war die Ursache der Abweichung von $\Delta k = 0$ bei ebenen Wellen zu $b\Delta k = -4$ bei fokussierten Gauß-Strahlen. Da für die Rechnung runde Strahlen benötigt werden, wurden die verwendeten b -Parameter aus den Werten der x - und der 45° gedrehten x/y b -Parameter gemittelt (vgl. Tab. 3.1). Die Rechnung hat daher eher den Charakter einer Abschätzung auf ein paar Grad Celsius.

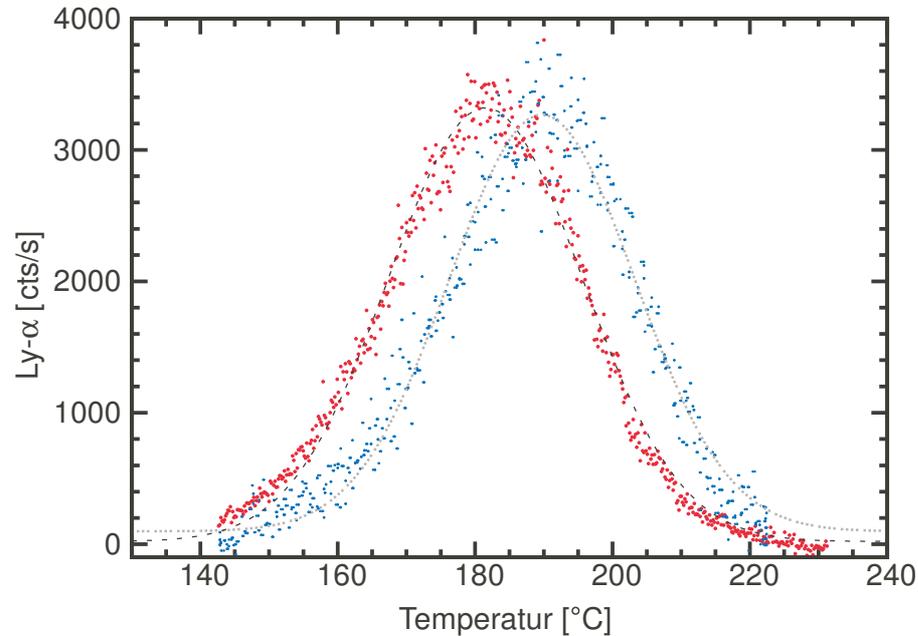


Abbildung 4.2: Hysterese der Lyman- α Phasenangepasstemperatur. *Aufgetragen ist die gemessene Lyman- α Zählrate bei einer UV-Verstimmung von 400 GHz über der Temperatur der Zelle. Die roten Punkte (linke Kurve) sind bei einem langsamen Durchstimmen der Temperatur von oben nach unten aufgenommen, die blauen (rechte Kurve) bei einem schnellen Durchstimmen von unten nach oben. Sie wurden der besseren Vergleichbarkeit halber mit einem Faktor sieben multipliziert. Die eingezeichneten Linien sind einfache Gauß-Fits, um die Phasenangepasstemperatur zu bestimmen.*

Der zweite Beitrag zur Verminderung der Temperaturdifferenz zwischen Experiment und Theorie kommt dadurch zustande, dass die Temperatur in Abbildung 4.1 deutlich langsamer durchgestimmt wird als in der alten Messung. Das Quecksilber kann wegen der schlechten Benetzung des Edelmetalls dem Durchstimmen der Temperatur der Zelle nicht so schnell folgen [SA86]. Um dies zu illustrieren wurde in Abbildung 4.2 ein schnelles Durchstimmen der Temperatur der Zelle von unten nach oben ($0,08^\circ\text{C/s}$) mit einem langsamen Durchstimmen von oben nach unten ($0,008^\circ\text{C/s}$) verglichen. Aus den Maxima von $189,8^\circ\text{C}$ für das schnelle und $181,5^\circ\text{C}$ für das langsame Durchstimmen ergibt sich eine Hysterese von $8,3^\circ\text{C}$. Geschwindigkeit und Richtung des schnellen Durchstimmens entsprechen dem Durchstimmen der alten Messung [SKM⁺09, Mar09]. Würde mit der selben Geschwindigkeit von oben nach unten durchgestimmt werden, wäre die Hysterese natürlich noch größer. Das zum Vergleich gezeigte langsame Durchstimmen der Temperatur von oben nach unten wurde für alle weiteren Phasenangepasstmessungen

verwendet. Die für die Messungen verwendeten Leistungen der Fundamentalstrahlen werden, soweit nicht explizit im Text genannt, in Tabelle B.1 im Anhang B zusammengefasst.

Um den Verlauf der Phasenangepassungstemperatur bei verschiedenen UV-Verstimmungen zur 6^3P Resonanz zu ermitteln, wurden solche Phasenangepassungskurven bei verschiedenen UV-Verstimmungen aufgenommen. Abbildung 4.3 zeigt eine Serie solcher Messungen bei UV-Verstimmungen von 400-, 200- und 100 GHz. Wegen des benötigten langsamen Durchstimmens der Temperatur dauerten die Messungen viele Stunden lang. Um das Abfallen der Laserleistungen während dieser Zeit auszugleichen, wurden die Datenpunkte auf die Leistungen zu Beginn der Messung skaliert. Dazu wurde die Kurve bei 200 GHz mit 1,08 und die Kurve bei 100 GHz mit 2,1 multipliziert. Nach Gleichung 2.36 erhöht sich die Dispersion pro Atomdichte bei kleinerer Verstimmung des UV-Lasers zur 6^3P Resonanz. Daher wird nur noch eine geringere Dichte der Quecksilberatome benötigt, um auf den durch die b -Parameter der Fundamentalstrahlen festgelegten idealen Wert für Δk zu kommen. Die Phasenangepassungstemperatur sinkt daher für kleinere UV-Verstimmungen, wie in der Abbildung zu erkennen ist.

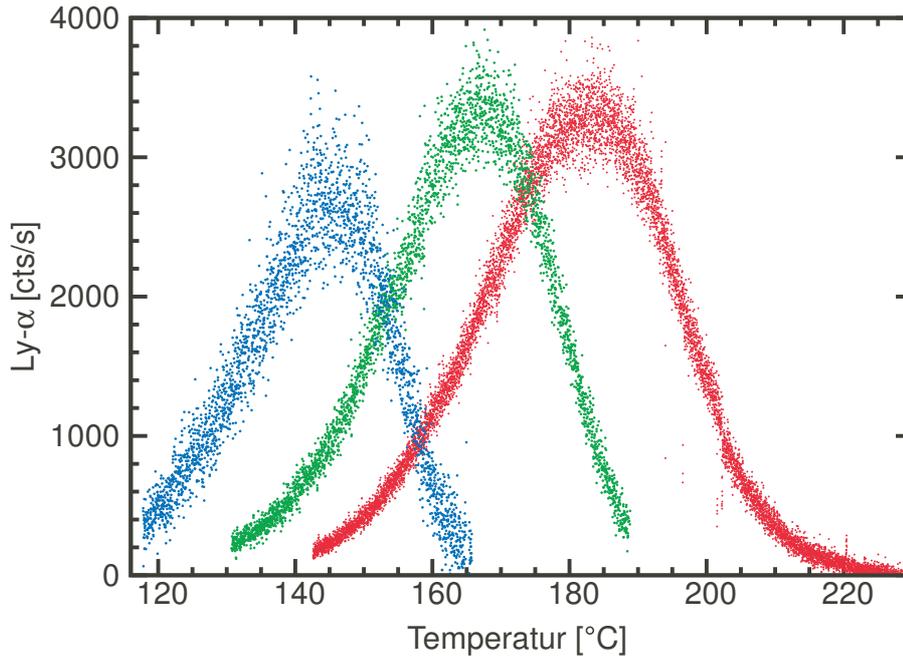


Abbildung 4.3: Phasenangepassungskurven für verschiedene UV-Verstimmungen.

Aufgetragen ist die gemessene Lyman- α Zählrate über der Temperatur der Zelle. Die roten Datenpunkte (erste Kurve von rechts) wurde bei 400 GHz aufgenommen die grünen Datenpunkte (Mitte) bei 200 GHz und die blauen Datenpunkte (linke Kurve) bei 100 GHz. Die Phasenangepassungstemperatur sinkt für kleinere UV-Verstimmungen.

In Abbildung 4.4 werden alle gemessenen Phasenangepassungstemperaturen über der UV-Verstimmung zur 6^3P Resonanz aufgetragen. Es sei noch einmal darauf hingewiesen, dass die UV-Verstimmung als $\Delta_{UV} = \nu_{6^3P} - \nu_{UV}$ definiert ist. Die für die Phasenangepassung notwendige Rotverstimmung entspricht also einer positiven UV-Verstimmung.

Die eingezeichnete Theoriekurve wurde mit Gleichung 2.20 und den, wie oben beschrieben, abgeschätzten b -Parametern berechnet. Die numerische Rechnung wurde dazu bei den vermessenen UV-Verstimmungen durchgeführt und dazwischen interpoliert. Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung über den gesamten gemessenen Bereich. Bei späteren Messungen wurde für manche UV-Verstimmungen zusätzlich zu den oben gezeigten Durchstimmkurven noch in einem engen Bereich um das Maximum herum in kleinen Schritten die Temperatur verändert. Dabei wurden zum Teil kleine Abweichungen von 1-3 °C zu den oben gezeigten großen Temperaturdurchstimmkurven gesehen. Wo solche zusätzlichen Daten vorhanden waren, wurde für Abbildung 4.4 ein Mittelwert der gemessenen Phasen Anpassungsmaxima genommen. Die eingezeichneten Fehler wurden aus den Abweichungen der einzelnen Thermoelemente und der Temperaturdifferenz, bei der die Lyman- α Leistung um mehr als halbe Schwankungsbreite des Maximums abgefallen ist, abgeschätzt.

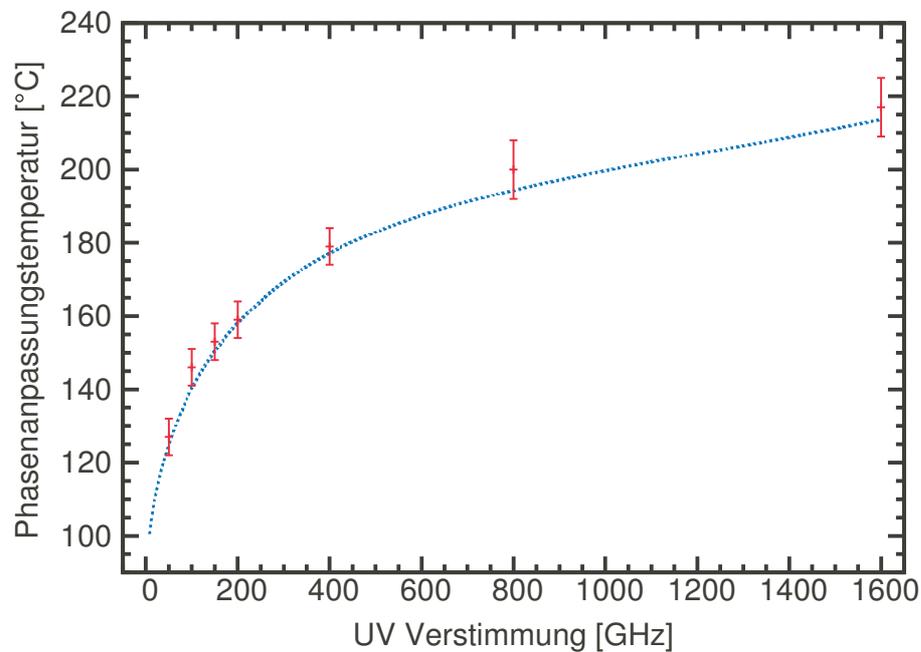


Abbildung 4.4: Abhängigkeit der Phasen Anpassungstemperatur von der UV-Verstimmung. Aufgetragen ist die gemessene Lyman- α Phasen Anpassungstemperatur über der Verstimmung des UV-Lasers zur 6^3P Resonanz $\Delta_{UV} = \nu_{6^3P} - \nu_{UV}$. Die Linie ist eine theoretische Berechnung der Phasen Anpassungstemperatur.

Statt für jede UV-Verstimmung numerisch die Rechnung nach Gleichung 2.20 durchzuführen, kann man auch ein alternatives Vorgehen wählen. Man nimmt die Phasen Anpassungstemperatur einer Verstimmung als Referenz und sucht dann mit der einfacheren Gleichung 2.12, die nur einen b -Parameter enthält, den effektiven b -Parameter, der diese Phasen Anpassungstemperatur ergibt. Mit diesem effektiven b -Parameter kann man nun mit der einfacheren Gleichung 2.12 auch für die anderen UV-Verstimmungen die Phasen Anpassungstemperatur berechnen. Die so gewonnenen Werte geben die mit der komplizierteren Rechnung berechneten Werte mit etwa 1 K Abweichung wieder.

Man kann das Ganze also auch so sehen, dass eine bestimmte Fokusanordnung der Fundamentalstrahlen ein bestimmtes festes Δk zur Phasenanpassung erfordert. Dieses Δk bleibt auch bei anderen UV-Verstimmungen aber gleichen Foki fest. Die Phasenanpassungstemperatur ergibt sich dann daraus, dass bei dieser Temperatur $\Delta k_a N$ gleich der geforderten Phasenfehlanspassung Δk ist.

Wegen der guten Übereinstimmung von Theorie und Experiment kann man davon ausgehen, dass sich die Rechnung auch für andere Foki anwenden lässt. Das würde für spätere Experimente viel Arbeit ersparen, da die zeitaufwendigen Messungen der Phasenanpassungstemperatur entfallen. Im Ausblick wird zum Beispiel die Idee eines Überhöhungsresonators vorgestellt, in dem die fundamentalen Strahlen überhöht werden, um die Lyman- α Leistung zu erhöhen. Die niedrigen Temperaturen für kleine UV-Verstimmungen sind für diese Anwendung generell von Vorteil. Die Zelle für den Überhöhungsresonator muss wesentlich kompakter sein als die bisher verwendete. Wegen des niedrigeren Dampfdrucks bei kleineren UV-Verstimmungen ist es dann leichter möglich, die Fenster dieser Zelle vor Kontamination mit Quecksilber zu schützen.

4.2 Veränderung der Fokusposition

Bei immer kleineren UV-Verstimmung zu 6^3P Resonanz macht sich zunehmend die Absorption der UV-Strahlung durch diese Resonanz bemerkbar. Bei den bisher präsentierten Messungen war immer der Fokus der fundamentalen Strahlen in etwa in der Mitte der 15 mm langen Zelle. Für kleinere UV-Verstimmungen wird der UV-Strahl aber dann bis zum Fokusort schon auf der halben Länge der Zelle absorbiert. Es ist daher zweckmäßig den Fokusort der Fundamentalstrahlen für kleine UV-Verstimmungen möglichst weit vorne in die Zelle zu legen. Dazu ist die Fokussierlinse vor der Zelle auf einem Linearverschiebetisch platziert.

In Abbildung 4.5 wird die gemessene Lyman- α Zählrate bei unterschiedlichen Linsenpositionen gezeigt. Die UV-Verstimmung betrug bei dieser Messung 50 GHz und die Temperatur der Zelle 137 °C. Man erkennt die Ränder der Dampfzone bei 0-2 mm beziehungsweise 16-18 mm. Wie zu erwarten ist es günstig, den Fokus weit nach vorne in die Zelle zu legen. Da mit nur schwach fokussierten beziehungsweise defokussierten Fundamentalstrahlen auf die Fokussierlinse gegangen wird, kann näherungsweise davon ausgegangen werden, dass die Verschiebung der Linse gleich der resultierenden Verschiebung der Foki ist. Ebenfalls kann davon ausgegangen werden, dass sich die relative Fokusüberlagerung der Fundamentalstrahlen zueinander entlang der Strahlachse nicht ändert. Da die Fundamentalstrahlen nicht perfekt kollinear sind, bewirkt eine Verschiebung der Linse eine transversale Verschiebung der Foki gegeneinander. Deshalb muss die transversale Überlagerung nach einer Verschiebung der Linse mit den Justagespiegeln korrigiert werden. Das macht die Messung zeitaufwendig und fehleranfällig. Um die Leistungsschwankungen der Fundamentalstrahlen herauszurechnen, wurde die Lyman- α Zählrate auf die Eingangsleistungen der Fundamentalstrahlen vor

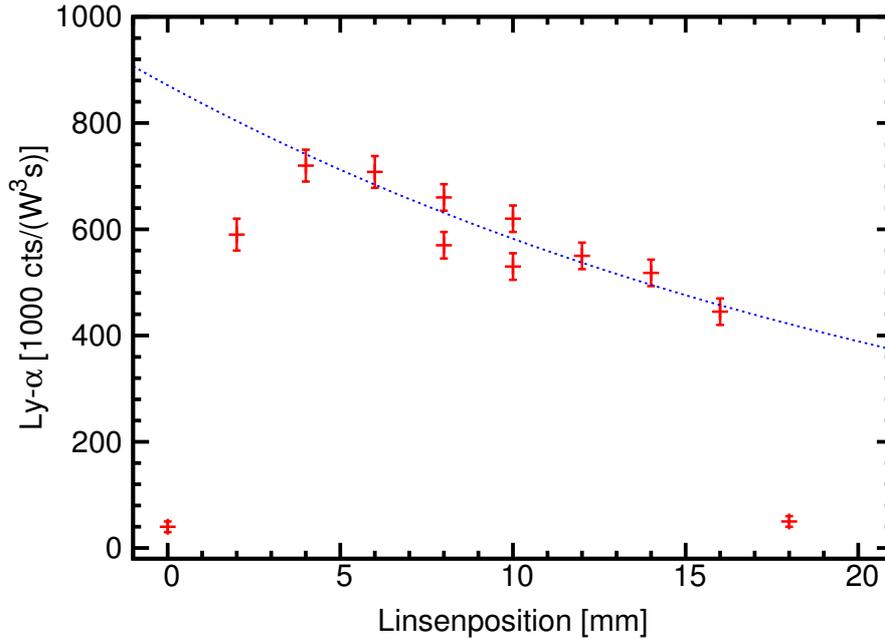


Abbildung 4.5: Durchfahren der Fokusposition bei $\Delta_{UV} = 50$ GHz. Aufgetragen ist die auf die Eingangsleistungen normierte Lyman- α Zählrate über der Position der Fokussierlinse. Mit der Fokussierlinse wird der Fokusort in der Zelle durchgefahren. Wegen der Absorption der UV-Strahlung bringt ein Fokusort im vorderen Teil der Zelle mehr Lyman- α Leistung. Die gestrichelte Linie ist ein exponentieller Fit an die Daten zwischen 4 mm und 16 mm.

der Zelle und vor der Fokussierlinse normiert. Da die Fokussierlinse sehr dicht an der Zelle steht, passt der Leistungsmesskopf nicht mehr dazwischen. Wenn im Folgenden von normierten Zählraten die Rede ist, bezieht sich das, wenn nicht ausdrücklich anders erwähnt, immer auf die Eingangsleistungen vor der Zelle und vor der Linse. Die eingezeichneten Fehlerbalken, sind eine Fehlerabschätzung aus der Schwankungsbreite des Lyman- α Signals und enthalten nicht die Fehler durch die Justage. Die gestrichelte Linie in Abbildung 4.5 ist der Fit einer Exponentialfunktion an die Datenpunkte zwischen 4 mm und 16 mm. Daraus ergibt sich eine Absorptionskonstante der UV-Strahlung von $\alpha = 0,04 \text{ mm}^{-1}$. Wenn die Dampfzone als homogenes Rechteck der Länge $L = 15 \text{ mm}$ angenommen wird, ergibt sich damit eine Absorption über die Länge der Zelle von 55%. Das stimmt gut mit der direkt gemessenen UV-Transmission bei dieser UV-Verstimmung überein, die im weiteren Verlauf des Kapitels vorgestellt wird und 52% ergab.

In Abbildung 4.6 zeigen die roten Kreuze die selbe Messung bei einer UV-Verstimmung von 1600 GHz, wo es keine Absorption mehr geben sollte. Der Verlauf fällt deutlich langsamer über die Zelle ab als bei 50 GHz. Man erkennt wieder das deutlichen Abfallen der Lyman- α Leistung an den Rändern der Zelle. Der Verlauf in der Zelle ist nicht ganz gerade, wie für eine homogene rechteckige Zelle erwartet. Dies kann auf einen tatsächlich etwas abweichenden Verlauf der Dampfzone hinweisen, liegt aber auch noch durchaus in dem durch Justage erkläraren Bereich. Die eingezeichneten Fehlerbalken sind wieder

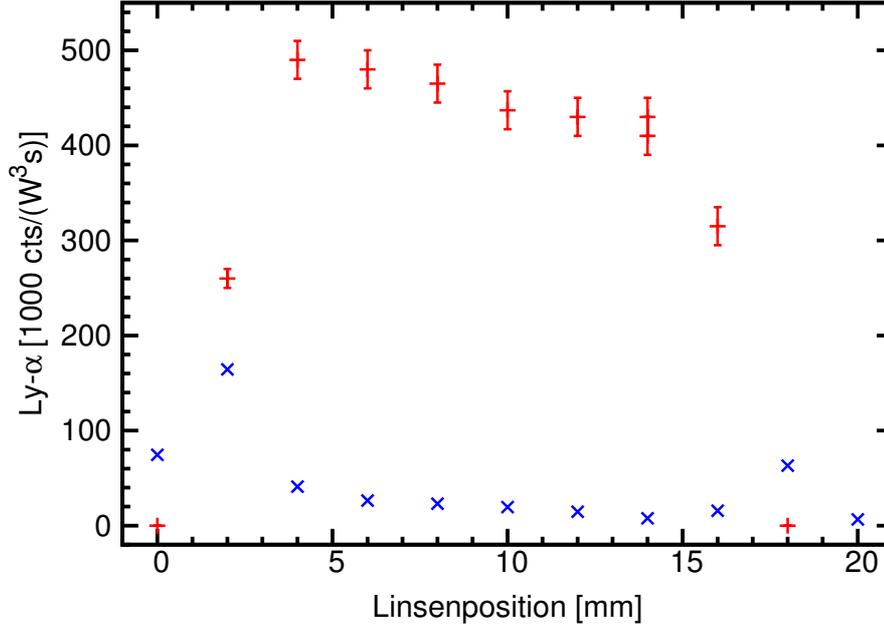


Abbildung 4.6: Durchfahren der Fokusposition bei $\Delta_{UV} = 1600$ GHz. Die roten Kreuze sind die auf die Eingangsleistungen normierte Lyman- α Zählrate über der Position der Fokussierlinse bei $\Delta_{UV} = 1600$ GHz. Es zeigt sich, dass in recht guter Näherung ein rechteckiges, homogenes Dichteprofil angenommen werden kann. Die blauen Datenpunkte (X) sind für $\Delta_{UV} = 400$ GHz bei $T=230$ °C gemessen und wurden mit 5 multipliziert. Bei dieser zu hohen Temperatur kann nur an den Randbereichen Lyman- α erzeugt werden.

nur die Schwankungsbreite des Lyman- α Signals. Der tatsächliche Fehler durch Justage kann größer sein. Die blauen Datenpunkte (X) sind eine Messung bei $\Delta_{UV} = 400$ GHz, aber mit einer Temperatur der Zelle von 230 °C. Das liegt erheblich über der Phasen-anpassungstemperatur von 178 °C. Die Phasen-anpassungsbedingung ist dann nur an den Rändern der Zelle erfüllt. Dort tritt der Quecksilberdampf durch die Öffnungen für die Strahlführung aus, und die Dichte verringert sich. Um die Datenpunkte besser erkennen zu können wurden die Lyman- α Werte für diese Messung mit 5 multipliziert. Man kann aus dieser Messung auf recht gut begrenzte Ränder der Dampfzone schließen, da für jeweils einen Messpunkt so etwas wie Phasen-anpassung möglich wird. Für diese Messung wurde auf die Korrektur der transversalen Fokusposition verzichtet, da der Effekt der Fehljustage von der Phasen-anpassung überdeckt wird.

In [Mar09] werden auch andere Formen der Dampfzone diskutiert, wie zum Beispiel eine Lorentz-förmige Dampfzone, oder ein Rechteck mit langen exponentiell abfallenden Flanken. Solche Formen der Dampfzone können aufgrund der präsentierten Messungen ausgeschlossen werden. Für die Rechnungen wurde stets mit einer homogenen rechteckigen Dichteverteilung der Länge 15 mm gerechnet.

4.3 Einfluss der Zwei-Photonen-Resonanz

Da die 6^1S-7^1S Zwei-Photonen-Resonanz die einzige Resonanz in dem verwendeten Vier-Wellen-Mischschema ist, die ohne lineare Absorption exakt eingestellt werden kann, spielt sie eine extrem wichtige Rolle. Dies wird in Abbildung 4.7 gezeigt [SKM⁺09]. Hier wurde gleichzeitig das Lyman- α Signal und eine IR-Fluoreszenz aus der Zwei-Photonen-Resonanz gemessen, während die Frequenz des blauen Laserstrahls über die Zwei-Photonen-Resonanz durchgestimmt wurde. Die IR-Fluoreszenz stammt aus dem $7^1S - 6^1P$ Zerfall des durch die Zwei-Photonen-Resonanz angeregten 7^1S Niveaus und hat eine Wellenlänge von 1014 nm (siehe auch Abb. 1.3). Die IR-Fluoreszenz zeigt demnach die Besetzung des 7^1S Niveaus. Die Verstimmung des UV-Lasers zur 6^3P Resonanz betrug bei dieser Messung 974 GHz, die Temperatur der Zelle 225 °C. Am sehr ähnlichen Verlauf der beiden Kurven erkennt man die massive Erhöhung des Lyman- α Erzeugung durch die Zwei-Photonen-Resonanz. Die Balken im oberen Teil der Abbildung zeigen die Linienpositionen und relativen Linienstärken der einzelnen Quecksilberisotope. Da es im Gegensatz zur 6^3P Resonanz keine Hyperfeinstrukturaufspaltung gibt, entsprechen die Linienstärken bei großen UV-Verstimmungen gerade den relativen Häufigkeiten der Quecksilberisotope.

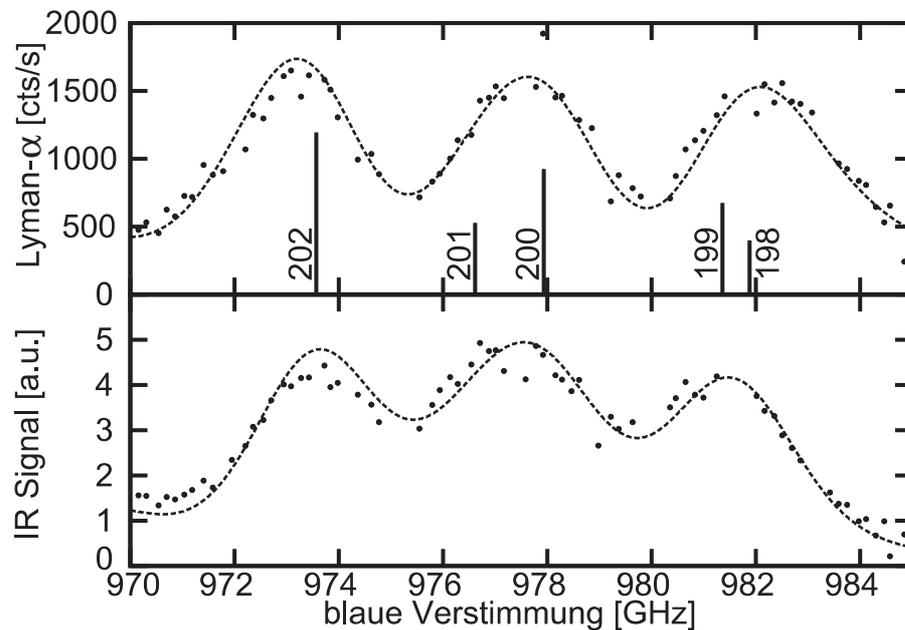


Abbildung 4.7: Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal und in der IR-Fluoreszenz. Aufgetragen ist die Lyman- α Rate (oberer Teil) und die IR-Fluoreszenz der Zwei-Photonen-Resonanz (unterer Teil) beim Durchstimmen über die Zwei-Photonen-Resonanz. Auf der x-Achse ist die Verstimmung zur 6^3P-7^1S Resonanz des ^{202}Hg Isotops aufgetragen. Die Verstimmung der UV-Strahlung zur 6^3P Resonanz betrug 974 GHz. Die Linien markieren die Lage und relative Häufigkeit der einzelnen Isotope. Im Wesentlichen folgt das Lyman- α Signal der Zwei-Photonen-Resonanz. Auf die Unterschiede wird im Text näher eingegangen.

Außerdem ist in die Abbildung jeweils eine theoretische Berechnung des Lyman- α Signals und der IR-Fluoreszenz der Zwei-Photonen-Resonanz mit eingezeichnet. Die Höhe der berechneten Kurve wurde an die Datenpunkte angepasst. Die Form des Lyman- α Signals wird durch die Funktion $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ gegeben (Kap. 2.3). Wegen der großen UV-Verstimmung kann die einfache Funktion nach Gleichung 2.26 gewählt werden. Die unterschiedlichen Verstimmungen des UV-Lasers zu der 6^3P Resonanz der verschiedenen Isotope spielen bei der großen Gesamtverstimmung keine Rolle. Für die Berechnung der Lyman- α Kurve wurde mit $\Delta\nu_{Doppler} = 2,11$ GHz die 225°C entsprechende Dopplerbreite angenommen. Die zusätzliche homogenen Verbreiterung wurde durch Anpassen an die experimentelle Kurve zu $\Delta\nu_{hom} = 1,25$ GHz bestimmt. Für die Theoriekurve der IR-Fluoreszenzstrahlung der Zwei-Photonen-Resonanz wurden die optischen Blochgleichungen für ein Drei-Niveau System aufgestellt [BH75] und die Besetzung des 7^1S Zustands im stationären Zustand berechnet [Bey08]. Diese ist proportional zur IR-Fluoreszenz. Um die gemessene Kurve wiederzugeben wurde neben der Dopplerverbreiterung ($\Delta\nu_D = 2,11$ GHz) eine homogene Linienbreite von $\Delta\nu_{hom} = 2,5$ GHz benötigt. Das ist ein Faktor zwei mehr als die entsprechende Linienbreite des Lyman- α Signals. In der bisherigen Veröffentlichung [SKM⁺09] wurde angemerkt, dass dieser Unterschied noch untersucht werden muss. Für den vorliegenden, weit verstimmtten Fall kann die Kurve der Zwei-Photonen-Resonanz aber auch durch eine einfache Überlagerung aus Voigtprofilen, mit den Häufigkeiten der Isotope gewichtet, wiedergegeben werden. Dann wird ebenfalls nur eine homogene Linienbreite von $\Delta\nu_{hom} = 1,25$ GHz benötigt, um den Verlauf der experimentellen Datenpunkte wiederzugeben. Deshalb kann von einem Rechenfehler in [Bey08] ausgegangen werden. Die homogene Breite der Zwei-Photonen-Resonanz entspricht also der des Lyman- α Signals.

Bei genauerer Betrachtung von Abbildung 4.7 fallen auch Unterschiede auf. Zum Einen wirkt die Lyman- α Kurve trotz der gleichen Verbreiterung schmaler. Zum Anderen sind die Maxima der Lyman- α Kurve zu denen der IR-Fluoreszenzstrahlung der Zwei-Photonen-Resonanz verschoben. Dieser Unterschied findet sich sowohl in den Theoriekurven als auch in den experimentellen Daten. Die Maxima der IR-Fluoreszenzstrahlung der Zwei-Photonen-Resonanz liegen wo sie - von der Lage der Isotope her - erwartet werden. Die beiden äußeren Maxima der Lyman- α Kurve sind dagegen nach außen verschoben. Die Erklärung dafür liegt darin, dass sich die Anteile der einzelnen Isotope zur IR-Fluoreszenz der Zwei-Photonen-Resonanz einfach inkohärent addieren. Die Kurve ist, wie schon erwähnt, einfach die Addition der entsprechenden Voigt-Profile. Für das Lyman- α Signal können die von den verschiedenen Isotopen produzierten Anteile miteinander interferieren, da die Lyman- α Produktion ein kohärenter Prozess ist.

Dies wird in Abbildung 4.8 noch einmal erläutert. Gezeigt ist die Rechnung für den vereinfachten Fall von lediglich zwei Isotopen (^{202}Hg und ^{200}Hg). Die durchgezogene Linie entspricht der tatsächlichen Situation mit der kohärenten Addition der Beiträge beider Isotope nach $|S_{ges}|^2 = |H_{202}S_{202} + H_{200}S_{200}|^2$. Dabei ist H_{202} die Häufigkeit des ^{202}Hg Isotops. Die gestrichelte Linie ist eine hypothetische inkohärente Addition

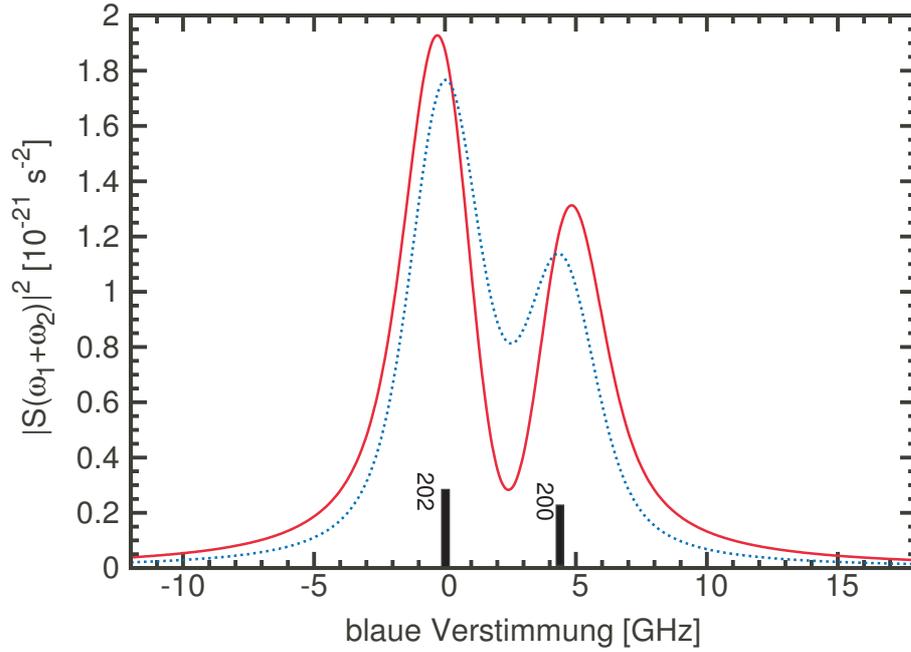


Abbildung 4.8: Linienverschiebung im Lyman- α Signal durch die Interferenz der Isotope. Die durchgezogene Linie (rot) ist die korrekt berechnete Linienform der Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal bei nur zwei beitragenden Isotopen (^{200}Hg und ^{202}Hg). Aufgetragen wird über die Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg Isotops $\Delta_{2\gamma} = \nu_{\text{blau}} + \nu_{\text{UV}} - \nu_{71S}$. Für die gestrichelte Linie (blau) wurden die Lyman- α Leistungen der beiden Isotope addiert und so die Interferenz der Anteile beider Isotope nicht berücksichtigt. Die Interferenz drückt die Maxima auseinander.

der beiden Anteile der Isotope nach $|S_{\text{ges}}|^2 = |H_{202}S_{202}|^2 + |H_{200}S_{200}|^2$. Im Gegensatz zu Abbildung 4.7 wird hier über die Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg Isotops aufgetragen. Die Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz ist wie im Theoriekapitel definiert als $\Delta_{2\gamma} = \nu_{\text{blau}} + \nu_{\text{UV}} - \nu_{71S}$. Bei Null Verstimmung befindet sich also die Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg Isotops. Die Temperatur wurde wieder mit 225°C und die homogene Linienbreite mit $\Delta\nu_{\text{hom}} = 1,25\text{ GHz}$ angenommen. Man sieht, dass die kohärente Addition zu einer destruktiven Interferenz zwischen den Isotopen und einer konstruktiven Interferenz außerhalb führt. Dadurch werden die Maxima des Lyman- α Signals relativ zu den Positionen der einzelnen Isotope auseinander gedrückt. Diese Interferenz wird in Abbildung 4.9 zusätzlich illustriert. Dazu werden die Phasen der Lyman- α Wellen für beide Isotope untersucht. Die gestrichelte Linie ist die Phase von S_{202} , also des Beitrags des ^{202}Hg Isotops. Über der Resonanz ändert sich die Phase von 0 nach π . Die durchgezogene Linie ist die Differenz der Phasen von S_{202} und S_{200} der beiden betrachteten Quecksilberisotope. Jenseits beider Isotope sind die Beiträge in Phase. Die Lyman- α Wellen addieren sich konstruktiv. Zwischen den Isotopen sind die Anteile außer Phase und addieren sich destruktiv. In [SA87] wird die Funktion $S(\omega_1 + \omega_1)$ als die Form der Zwei-Photonen-Resonanz bezeichnet. Dies ist wegen der obigen Ausführungen recht irreführend. Besser sollte $|S(\omega_1 + \omega_2)_{\text{ges}}|^2$ als Form der

Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal bezeichnet werden.

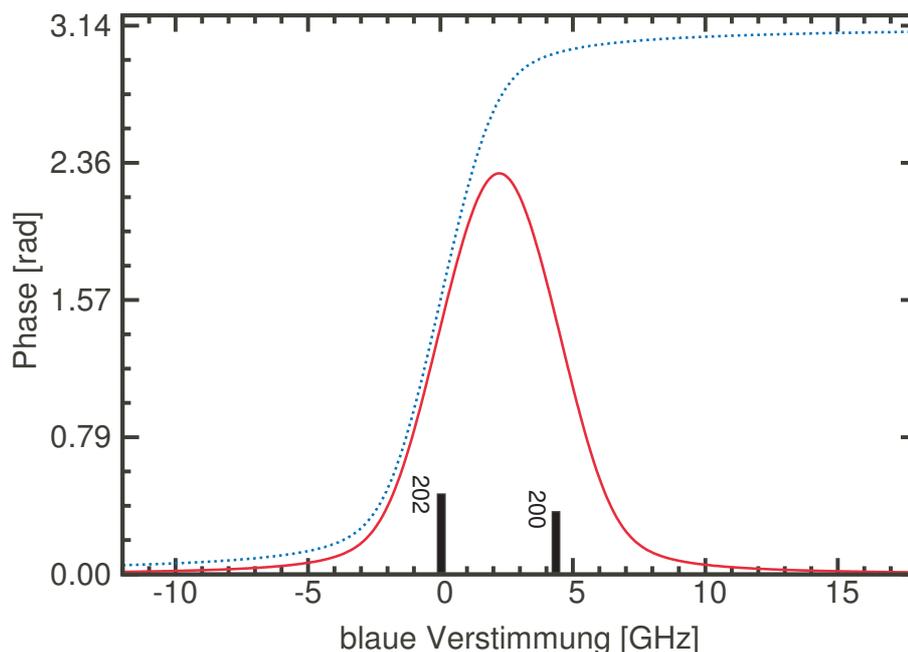


Abbildung 4.9: Relative Phase der Lyman- α Anteile verschiedener Isotope. Die durchgezogene Linie ist die Phasendifferenz der Lyman- α Wellen der beiden Isotope ^{200}Hg und ^{202}Hg . Aufgetragen wird über die Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg Isotops. Zwischen den Isotopen bewirkt die relative Phase eine destruktive Interferenz. Außerhalb interferieren die Lyman- α Wellen konstruktiv. Die gestrichelte Linie (blau) zeigt zur Verdeutlichung den Verlauf der Phase des ^{202}Hg Isotops über den Verlauf der Zwei-Photonen-Resonanz.

Nach der Diskussion in Kapitel 2.3 ist klar, dass die Form der Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal für kleine UV-Verstimmungen zur 6^3P Resonanz nicht mehr durch die einfache Formel nach Gleichung 2.26 beschrieben werden kann, da dort für alle Isotope die gleiche UV-Verstimmung angenommen wird. Stattdessen muss χ_{12} und damit die Verschiebung der 6^3P Resonanz für die verschiedenen Isotope mit in die Form der Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal hineingenommen werden (Gleichung 2.33). Abbildung 4.10 zeigt die Lyman- α Rate über der Verstimmung des blauen Lasers zur Zwei-Photonen-Resonanz für eine UV-Verstimmung von 150 GHz. Die eingezeichnete theoretische Kurve ist mit der einfachen Gleichung 2.26 ohne Berücksichtigung der Aufspaltung der 6^3P Resonanz berechnet und gibt den Verlauf der experimentellen Daten gut wieder. Gerechnet wurde mit der eingestellten Dampftemperatur von 152°C und einer homogenen Linienbreite von $\Delta\nu_{hom} = 1,25$ GHz.

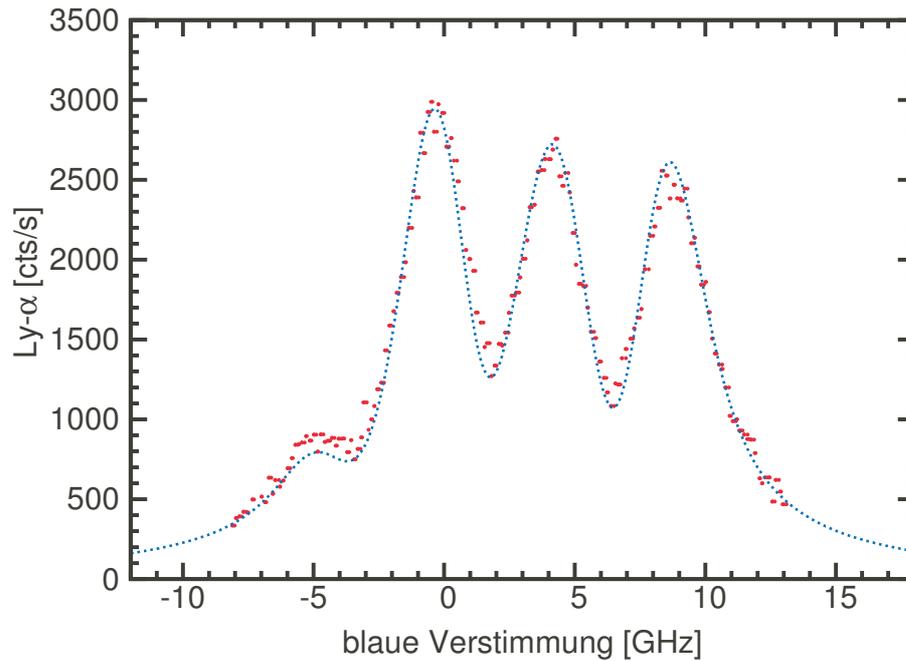


Abbildung 4.10: Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal bei $\Delta_{UV} = 150$ GHz. Aufgetragen ist die Lyman- α Zählrate über der Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg Isotops $\Delta_{2\gamma} = \nu_{\text{blau}} + \nu_{UV} - \nu_{71S}$. Die gestrichelte Kurve (blau) ist ohne die Isotopie- und Hyperfeinstrukturaufspaltung des 6^3P Niveaus gerechnet und gibt den Verlauf gut wieder.

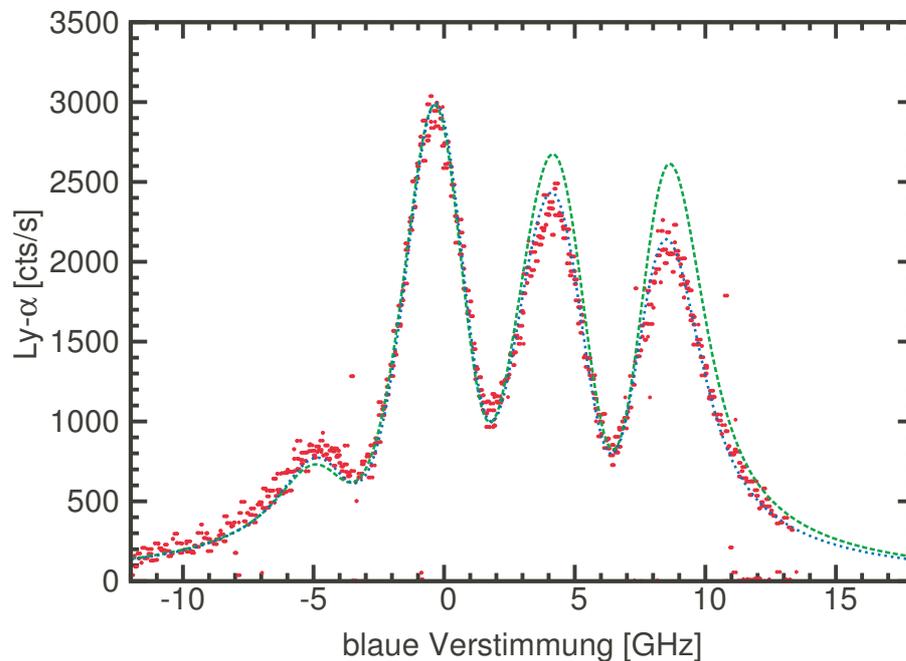


Abbildung 4.11: Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal bei $\Delta_{UV} = 50$ GHz. Aufgetragen ist die Lyman- α Zählrate bei einer UV-Verstimmung von 50 GHz über der Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg Isotops. Die gestrichelte Kurve (grün) ist ohne die Isotopie- und Hyperfeinstrukturaufspaltung des 6^3P Niveaus gerechnet und kann den Verlauf nicht gut wiedergeben. Die gepunktete Linie (blau) ist unter Einrechnung der Isotopie- und Hyperfeinstrukturaufspaltung des 6^3P Niveaus gerechnet.

Abbildung 4.11 zeigt die Lyman- α Rate über der Verstimmung des blauen Lasers zur Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg Isotops für eine UV-Verstimmung von nun nur noch 50 GHz. Die gestrichelte Linie (grün) ist die Berechnung mit Gleichung 2.26 ohne Einfluss der Isotopieverschiebung des 6^3P Niveaus. Damit kann der Verlauf der experimentellen Daten nicht reproduziert werden. Verwendet man stattdessen Gleichung 2.33, verschieben sich die relativen Höhen der Maxima, da jetzt mit eingerechnet wird, dass zum Beispiel das ^{204}Hg Isotop den UV-Laser deutlich weniger verstimmt sieht als das ^{198}Hg Isotop (vergleiche auch Abbildung 3.5). Damit kann der Verlauf der experimentellen Daten gut wiedergegeben werden. In den Rechnungen wird immer die Dopplerverbreiterung entsprechend der Temperatur der Zelle angenommen, in diesem Fall $136\text{ }^\circ\text{C}$, und dann die homogene Linienbreite durch Anpassen an die experimentellen Daten bestimmt. Bei beiden gerechneten Kurven wurde $\Delta\nu_{hom} = 1,25\text{ GHz}$ für die homogene Verbreiterung der 7^1S Linie angenommen. Für die Kurve mit Berücksichtigung der Aufspaltung der 6^3P Resonanz wurde für diese eine homogene Linienbreite von ebenfalls $\Delta\nu_{hom} = 1,25\text{ GHz}$ angenommen.

Die Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal wurde neben den in Abbildung 4.10 und Abbildung 4.11 gezeigten Werten von 50 GHz und 150 GHz noch für weitere UV-Verstimmungen gemessen. In Tabelle 4.1 wird für die von uns gemessenen UV-Verstimmungen zur 6^3P Resonanz jeweils die Dopplerbreite und die, durch die Anpassung an die Daten gewonnene, homogene Linienbreite angegeben. Die Dopplerbreite ergibt sich aus der verwendeten Phasenanstimmungstemperatur für die jeweilige UV-Verstimmung. Sind zwei Werte für die Linienbreiten angegeben, stammen diese aus unterschiedlichen Messungen an verschiedenen Tagen. Dass der Wert der Dopplerverbreiterung für die 800 GHz Messung über dem der Dopplerverbreiterung bei 974 GHz Messung ist, liegt daran, dass die Temperatur bei 800 GHz über der Phasenanstimmungstemperatur und auch über der Temperatur der 974 GHz Messung lag. Ansonsten zeigt sich der erwartete Verlauf der Dopplerbreite. Da die Phasenanstimmungstemperatur sinkt, sinkt auch die Dopplerbreite für kleinere UV-Verstimmungen, allerdings wegen der \sqrt{T} Abhängigkeit sehr langsam. Betrachtet man die homogene Linienbreite, so erkennt man, dass diese, bei deutlichen Schwankungen, unverändert über den betrachteten Bereich bleibt. Es liegt deshalb nahe, die Druckverbreiterung weniger auf die Eigendruckverbreiterung der Quecksilberatome durch Stöße untereinander zurückzuführen, als vielmehr auf die Stöße mit dem Helium-Puffergas. Das Puffergas wurde jeden Tag neu auf Drücke zwischen 70 – 110 mbar eingestellt, im damaligen Unwissen, ohne auf große Genauigkeit zu achten. Der Quecksilberdruck verringert sich im gemessenen Bereich von 48,5 mbar bei 974 GHz bis 1,4 mbar bei 50 GHz. Die Schwankungen in den homogenen Linienbreiten, zum Teil auch bei gleicher UV-Verstimmung, werden mit dem ungenau bestimmten Helium-Puffergasdruck begründet. Die Verbreiterung durch das Helium-Puffergas senkt das Maximum der Zwei-Photonen-Resonanz ab. Gleichzeitig wird auch die 6^3P Resonanz verbreitert und damit die Absorption des UV-Strahls bei kleinen UV-Verstimmungen erhöht. Die geringeren UV-Verstimmungen, die

Tabelle 4.1: Verbreiterung der Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal bei verschiedenen UV-Verstimmungen. Die verwendete Phasen Anpassungstemperatur bei der jeweiligen Verstimmung wird in Klammern gegeben. Damit wurde die Dopplerverbreiterung berechnet. Die homogene Linienbreite wurde durch Anpassung der Theorie an die gemessenen Kurven bestimmt. Der Fehler der Linienbreite beträgt jeweils etwa 0,1 GHz.

| Verstimmung [GHz] | homogene Linienbreite [GHz] | | Dopplerverbreiterung [GHz] | |
|-------------------|-----------------------------|------|----------------------------|--------------|
| 976 | 1,25 | | 2,16 (225°C) | |
| 800 | 1,5 | | 2,17 (234°C) | |
| 400 | 1,65 | | 2,06 (180°C) | |
| 150 | 1,3 | 1,55 | 2,0 (156°C) | 1,99 (152°C) |
| 50 | 1,25 | 1,5 | 1,94 (130°C) | 1,95 (136°C) |

durch das neue UV-Lasersystem ermöglicht werden, senken die Phasen Anpassungstemperatur. Dadurch sinkt auch die Dichte der Quecksilberatome ($T(1600 \text{ GHz})=217^\circ\text{C}$, $N(1600 \text{ GHz})=5,63 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ und $T(50 \text{ GHz})=127^\circ\text{C}$, $N(50 \text{ GHz})=2,45 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$). Es erschien daher aussichtsreich, den Helium-Puffergasdruck bei den kleinen Phasen Anpassungstemperaturen zu senken, um so die Lyman- α Erzeugung zu erhöhen, ohne Quecksilberkondensation auf den Optiken zu bekommen.

In Abbildung 4.12 wird gezeigt, wie sich die Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal verändert, wenn der Helium-Puffergasdruck verringert wird. Die Kurve wird schmaler und deutlich höher. Im Vergleich der höchsten (roten) Kurve bei 0 mbar Helium und der niedrigsten (violetter) Kurve bei 100 mbar Helium ergibt sich eine Erhöhung der Lyman- α Erzeugung um einen Faktor 4,3. Die Messungen fanden direkt hintereinander - ohne Neujustage - statt, da die Strahl Lage sich durch das Einlassen des Heliums nicht ändern sollte. Es wurden dann schrittweise 20 mbar Helium in die Zelle eingelassen. Schwankungen der fundamentalen Laserleistungen wurden durch Normieren so herausgerechnet, dass die Höhe des Maximums durch das ^{202}Hg Isotop der tatsächlich gemessenen Höhe entspricht. Die Erhöhung der Lyman- α Leistung setzt sich aus zwei Beiträgen zusammen. Zum Einen sinkt durch die geringere Druckverbreiterung die Absorption der UV-Strahlung. Zum Anderen führt die geringere Druckverbreiterung zu schmälere und damit höhere Resonanzkurven in der Zwei-Photonen-Resonanz (Gleichung 2.26). In Tabelle 4.2 sind die durch Anpassen an die Zwei-Photonen-Resonanzkurven bei verschiedenen Heliumdrücken gewonnenen homogenen Linienbreiten festgehalten. Es ergibt sich in etwa ein linearer Zusammenhang, wie dies aus einer einfachen Theorie der Druckverbreiterung auch erwartet wird [Dem07].

Es lässt sich also festhalten, dass das Weglassen des Helium-Puffergases, was durch die niedrigere Phasen Anpassungstemperaturen bei kleinen UV-Verstimmungen ermöglicht wird, einen großen Vorteil bringt.

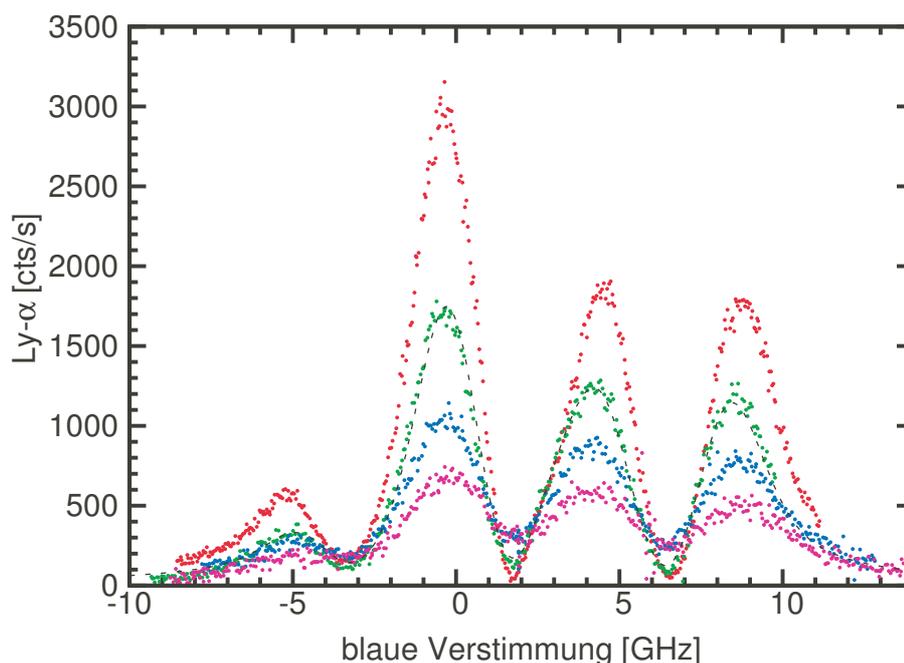


Abbildung 4.12: Einfluss des Helium-Puffergases auf die Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal. Aufgetragen ist die Lyman- α Zählrate über der Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg Isotops für verschiedene Helium-Puffergasdrücke (rot=0 mbar, grün=20 mbar, blau=60 mbar, lila=100 mbar). Das Helium-Puffergas hat einen stark verbreiternden, vermindernenden Einfluss auf die Zwei-Photonen-Resonanz und damit auf die Lyman- α Erzeugung. Für die zweithöchste Kurve (grün) wurde eine Theoriekurve mit eingezeichnet mit $T=130\text{ }^\circ\text{C}$ und $\Delta\nu_{\text{hom}} = 0,3\text{ GHz}$.

Tabelle 4.2: Verbreiterung der Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal durch das Helium-Puffergas. Gezeigt ist die, durch Anpassung der Theorie an die gemessenen Kurven aus Abbildung 4.12, bestimmte homogene Linienbreite bei verschiedenen Puffergasdrücken. Der Fehler der Linienbreite beträgt jeweils etwa 0,1 GHz.

| Helium Druck [mbar] | homogene Linienbreite [GHz] |
|---------------------|-----------------------------|
| 100 | 1,5 |
| 80 | 1,4 |
| 60 | 1,1 |
| 40 | 0,7 |
| 20 | 0,3 |
| 0 | 0,1 |

Für die zweithöchste Kurve (grün, 20 mbar) wurde eine Theoriekurve mit eingezeichnet, die den Verlauf der experimentellen Daten gut wiedergibt. Bei der experimentellen Kurve für 0 mbar Helium erkennt man eine leichte Verschiebung der beiden rechten Maxima vom Maximum des ^{202}Hg Isotop weg. Diese Verschiebung wird in Abbildung 4.13 noch deutlicher. Hier wurde ohne Puffergas bei einer UV-Verstimmung von 25 GHz die Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal vermessen. Die beiden rechten Maxima sind deutlich gegen die mit eingezeichnete Theoriekurve verschoben. Diese Maxima sind jeweils Doppelmaxima aus zwei Quecksilberisotopen. Davon besitzt jeweils eins eine Hyperfeinstruktur. Die Maxima der einzelnen Isotope ohne Hyperfeinstruktur scheinen unverschoben zu sein. Dieses interessante Verhalten ist bis dato nicht verstanden und bedarf einer weiteren Untersuchung sowohl von experimenteller als auch von theoretischer Seite her. In Kapitel 4.5 wird die zu dieser Messung gehörende Kurve der IR-Fluoreszenzstrahlung gezeigt. Auch sie zeigt Auffälligkeiten. Als mögliche Erklärung für diese Verschiebung kommt die AC Stark Verschiebung in Betracht, was in Kapitel 4.5 noch diskutiert wird.

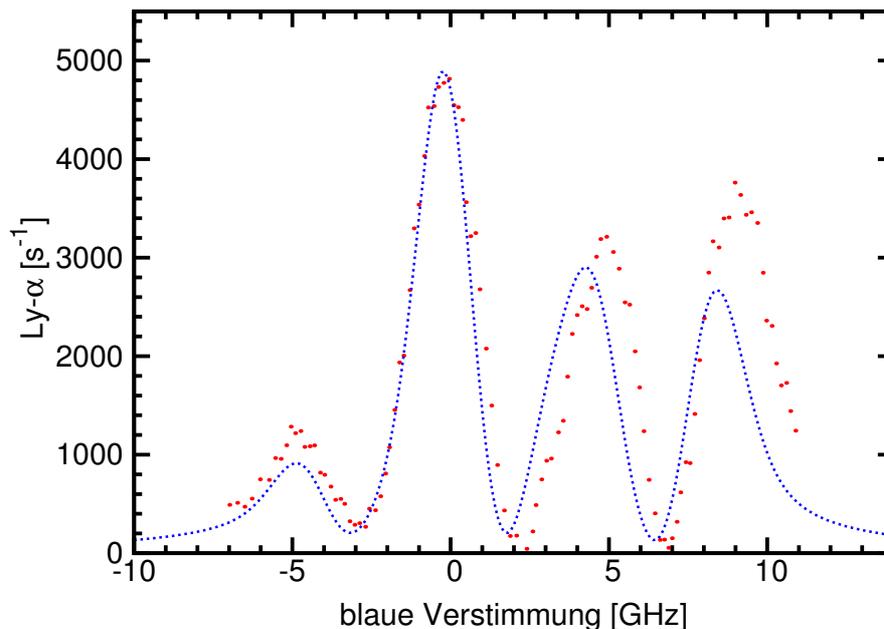


Abbildung 4.13: Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal bei $\Delta_{UV} = 25$ GHz ohne Helium-Puffergas. Aufgetragen ist die Lyman- α Zählrate über der Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg Isotops bei einer Messung ohne Puffergas. Die eingezeichnete Theoriekurve kann den Verlauf trotz Einbeziehung der Isotopie- und Hyperfeinstruktur-Aufspaltung des 6^3P Niveaus nicht wiedergeben ($T=130$ °C, $\Delta\nu_{hom} = 0,1$ GHz).

4.4 Verbesserung der Konversionseffizienz

In diesem Abschnitt wird es um die Frage gehen, inwieweit die Lyman- α Leistung durch die kleineren UV-Verstimmungen des neuen UV-Lasersystems erhöht werden kann. Neben dem Umstieg auf ein Festkörperlasersystem war die Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität dritter Ordnung durch kleinere UV-Verstimmungen nach Gleichung 2.22 eine wesentliche Motivation für den Aufbau dieses Lasersystems. In Abbildung 2.3 wurde gezeigt, dass sich die nichtlineare Suszeptibilität pro Atomdichte um Größenordnungen erhöhen lässt, wenn man mit der UV-Strahlung näher an die 6^3P Resonanz geht. Der Einfluss einer zweiten Resonanz auf einen Vier-Wellen-Mischprozess in Quecksilber wurde bereits untersucht [KE95]. Allerdings war dort, im Unterschied zu unserem Experiment, die erzeugte VUV-Strahlung resonant. Diese Möglichkeit steht uns nicht zur Verfügung, da wir Strahlung genau bei der Wasserstoff Lyman- α Linie benötigen und es dafür keine Resonanz in Quecksilber gibt. Wie zum Teil schon in den vorherigen Abschnitten angesprochen birgt eine Ein-Photon-Resonanz im Gegensatz zur Zwei-Photonen-Resonanz zusätzliche Schwierigkeiten. Zum Einen wird die (nah)resonante Strahlung absorbiert, und es steht weniger Leistung für den Vier-Wellen-Mischprozess zur Verfügung. Zum Anderen ändert sich, durch die starke Dispersion nahe einer Resonanz, auch die Phasen Anpassung. Es gibt also drei Effekte, wenn man mit der UV-Strahlung näher an die 6^3P Resonanz geht: Erhöhung von nichtlinearen Suszeptibilität pro Atomdichte, Änderung der Phasen Anpassung und Absorption der UV-Strahlung. Wie sich diese drei Prozesse auf die Lyman- α Erzeugung auswirken, ist in Abbildung 4.14 gezeigt. Es wurde dort die erzielte Lyman- α Zählrate bei verschiedenen UV-Verstimmung zur 6^3P Resonanz gemessen. Es werden verschiedene Messreihen gezeigt. Um die Messpunkte vergleichbar zu machen, wurde die erzielte Lyman- α Zählrate auf die drei fundamentalen Eingangsleistungen normiert. Die Messreihen wurden bei unterschiedlichen experimentellen Situationen aufgenommen. Die normale Situation ist mit etwa 100 mbar Helium-Puffergas und dem Fokus der Fundamentalstrahlen in der Zellenmitte (rote Kreuze). Man findet experimentell ein Maximum bei $\Delta_{UV}=150$ GHz. Dieses Maximum ist etwa 35% gegenüber der größten gemessenen UV-Verstimmung bei $\Delta_{UV}=1600$ GHz erhöht. Bei $\Delta_{UV}=50$ GHz fällt die Lyman- α Rate durch die UV-Absorption schon wieder deutlich ab. Alle Punkte dieser Messreihe wurden am selben Tag aufgenommen. Um die UV-Absorption zu vermindern, wurde die gleiche Messung an einem anderen Tag mit dem Fokus der Fundamentalstrahlen möglichst weit vorne in der Zelle durchgeführt (blaue Datenpunkte X). Die eingestellte Linsenposition war 4 mm (vgl. Abb. 4.5). Das Maximum der Lyman- α Erzeugung liegt immer noch bei einer UV-Verstimmung von 150 GHz. Insgesamt ist die Kurve deutlich höher als die Kurve, die in der Zellenmitte aufgenommen wurde. Da es bei 1600 GHz kaum Absorption gibt, sollten die Punkte dort aufeinander liegen. Das tun sie nicht. Das zeigt, dass es bei Messungen an verschiedenen Tagen zu Abweichungen kommen kann. Aber auch wenn man diese Abweichungen herausrechnet, indem man die Messungen

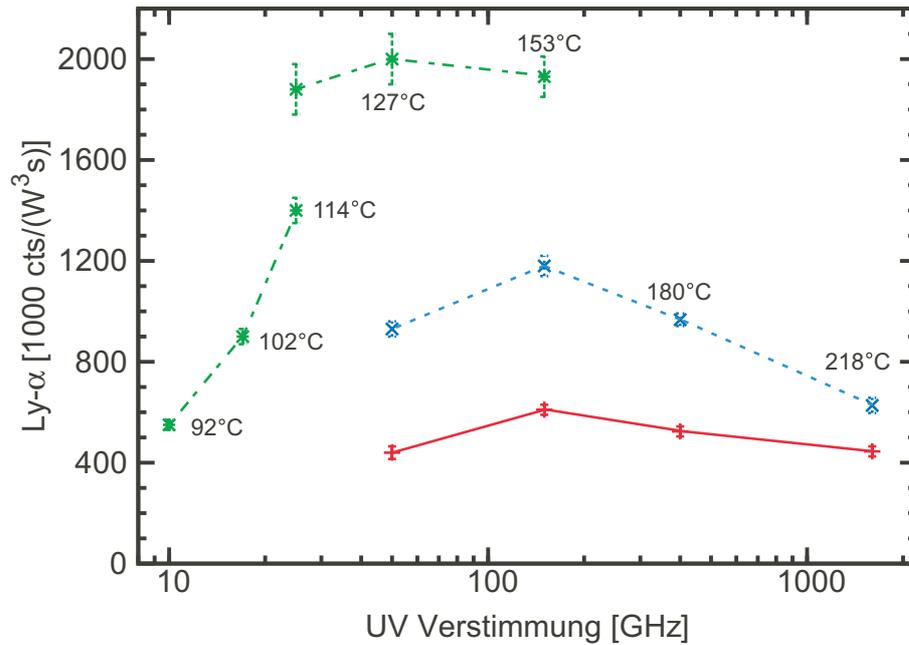


Abbildung 4.14: Ideale UV-Verstimmung zur Lyman- α Erzeugung. Aufgetragen ist die auf die fundamentalen Leistungen normierte Lyman- α Zählrate gegen die Verstimmung der UV-Strahlung zur 6^3P Resonanz $\Delta_{UV} = \nu_{6^3P} - \nu_{UV}$. Die roten Kreuze wurden mit Helium und Fokus in der Mitte der Zelle gemessen. Die blauen Datenpunkte (X) wurden vorne in der Zelle und mit Helium gemessen, die grünen Sterne vorne in der Zelle und ohne Helium. Die Zahlen bei den Datenpunkten sind die verwendeten Quecksilberdampftemperaturen. Bei gleichen Verstimmungen wurden auf $\pm 2^\circ\text{C}$ gleiche Temperaturen verwendet.

so skaliert, dass die Punkte bei 1600 GHz aufeinander liegen, ist das Maximum bei 150 GHz vorne in der Zelle höher als in der Mitte der Zelle, wie es auch der Erwartung entspricht. Gründe für die Abweichungen bei Messungen an verschiedenen Tagen könnten sein, dass nur die transversale Fokusüberlagerung justiert wird und sich die Foki eventuell über mehrere Tage hinweg in Strahlrichtung gegeneinander verschieben. Außerdem vermuten wir, dass es in unserer Zelle zu Absorption der Lyman- α Strahlung kommen kann. Diese Absorption könnte durch das Restgas in der Zelle entstehen und könnte dann von der Länge des Abpumpvorgangs abhängen. Da an jedem Tag neu abgepumpt wird, kann sich die Absorption bei verschiedenen Messtagen ändern. Auf diese Vermutung wird gleich noch einmal eingegangen. Im vorherigen Kapitel wurde der negative Einfluss des Helium-Puffergases gezeigt. In der dritten Messreihe wurde deshalb ohne Helium-Puffergas gemessen, wieder mit der Linse bei 4 mm, also Fokus vorne in der Zelle. Da dann die Optiken nicht mehr durch das Puffergas vor Beschlägen geschützt sind, wurde nur bei niedrigen Phasen Anpassungstemperaturen, also kleinen UV-Verstimmungen, gemessen. Durch Weglassen des Puffergases wird die Lyman- α Erzeugung deutlich erhöht. Das Maximum liegt nun bei 50 GHz und auch bei 25 GHz ist der Abfall der Lyman- α Erzeugung gering. Ohne Helium-Puffergas war es dann auch möglich noch kleinere Verstimmungen vernünftig aufzunehmen, mit Helium waren die Zählraten so klein, dass die Phasen Anpassungstemperatur nicht mehr gut bestimmt

werden konnte. Die Datenpunkte bei 10 GHz, 17 GHz und der niedrigere Datenpunkt bei 25 GHz wurden an einem anderen Tag als die oberen drei Messpunkte ohne Helium aufgenommen. Sie zeigen, dass die Lyman- α Erzeugung für Verstimmungen kleiner 25 GHz auch ohne Helium-Puffergas durch Absorption deutlich abfallen. Der Punkt bei 25 GHz kann im Vergleich zur ersten Messreihe nicht reproduziert werden. Das zeigt ein zweites Mal die Probleme in der Reproduzierbarkeit an verschiedenen Tagen wieder mit Abweichungen von teilweise 50 %.

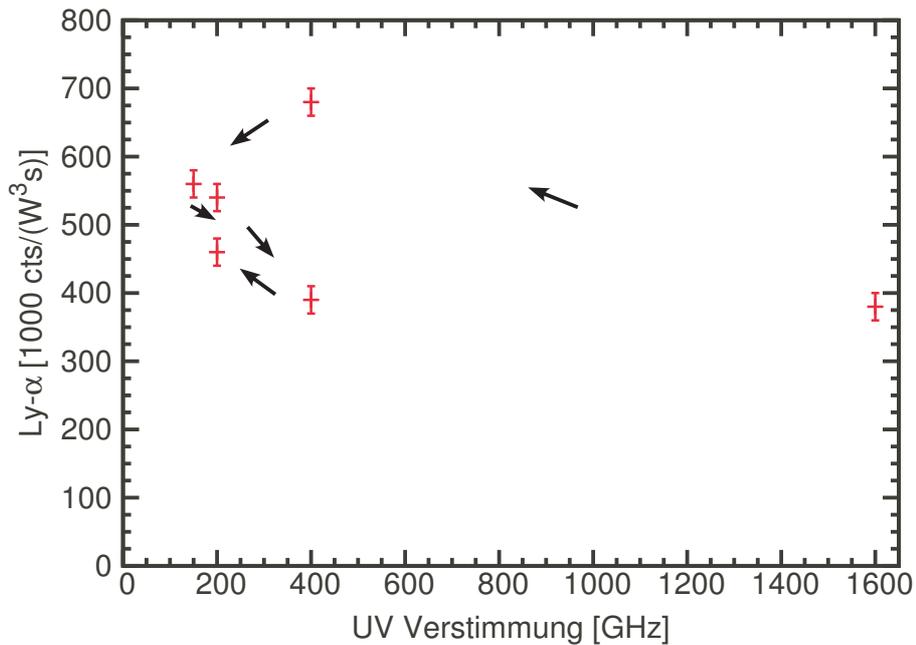


Abbildung 4.15: Abfall der Lyman- α Erzeugung während einer Messreihe. Aufgetragen ist die auf die fundamentalen Leistungen normierte Lyman- α Zählrate gegen die Verstimmung der UV-Strahlung zur 6^3P Resonanz. Gemessen wurde mit 100 mbar Helium und mit den Foki der Fundamentalstrahlen in der Mitte der Zelle. Die Messreihenfolge der Punkte ist durch die Pfeile markiert. Es zeigen sich Verluste über die Zeit, die bisher nicht völlig verstanden sind.

In Abbildung 4.15 wird eine vierte Messreihe gezeigt. Auch diese ist bei 100 mbar Helium mit Fokus in der Zellenmitte aufgenommen. Die Pfeile zeigen die Abfolge, in denen die einzelnen Datenpunkte aufgenommen wurden. Man erkennt deutlich den Abfall der Lyman- α Leistung über die mehrere Stunden dauernden Messungen. Eine mögliche Erklärung dafür ist die Absorption durch Restgas in der Zelle. Das Restgas könnte durch die hohe Temperatur der Zelle aus der Apparatur ausgeheizt werden. Insbesondere kommt Wasserdampf als Restgas in Betracht, da die Zelle nicht ausgeheizt werden konnte. Tatsächlich befand sich nach einiger Zeit Wasser im Auffangbehälter der Kühlfalle. Es gab auch Messungen, bei denen dieser Abfall der Lyman- α Erzeugung durch stärkeres Kühlen der Stickstoff gekühlten Regionen um die MgF_2 Linse rückgängig gemacht werden konnte. Dies könnte daran liegen, dass die gekühlten Bereiche als zusätzliche Kryo-Pumpen fungieren. Es könnte aber auch bedeuten, dass es reversible

Niederschläge auf der MgF_2 Linse gibt. Diese Probleme können, wenn sie noch nicht zu stark sind, durch die Kühlfallen abgebaut werden. Bei der gezeigten Messung hatte dies aber keinen Einfluss mehr.

Die vorgestellten Messungen gestalten sich recht schwierig. An jedem Messpunkt muss die Strahlüberlagerung neu justiert werden, da sich der blaue und der UV-Strahl durch das Verstimmen der Frequenz verschieben. Außerdem muss jeweils die Phasenangepasstemperatur und die Zwei-Photonen-Resonanz neu eingestellt werden. Die eingezeichneten Fehlerbalken sind lediglich die Schwankungen des Lyman- α Signals. Wo keine Fehlerbalken eingezeichnet wurden, können diese in der Abbildung nicht von den Datenpunkten getrennt aufgelöst werden. Die tatsächlichen Fehler aufgrund der oben genannten Schwierigkeiten sind zum Teil wohl erheblich größer. Trotz der geschilderten Probleme lassen sich wichtige Zusammenhänge aus den Messungen erkennen. Die wichtigste Erkenntnis ist, dass der Zugewinn an Lyman- α Leistung durch kleinere UV-Verstimmungen nicht so groß wie erhofft ist. Weiterhin erkennt man, dass die Lyman- α Leistung bei zu kleinen Verstimmungen durch die Absorption der UV-Strahlung vermindert wird, was die Möglichkeit die 6^3P Resonanz zu nutzen einschränkt. Die Absorption lässt sich verringern, indem der Fokus weiter vorne in die Zelle verlegt wird und noch deutlicher, indem auf das Helium-Puffergas verzichtet wird. Dann verschiebt sich die durch die Absorption verursachte Kante im Lyman- α Signal nach vorne. Außerdem wird dadurch die Lyman- α Erzeugung deutlicher erhöht als durch kleinere UV-Verstimmungen, da zusätzlich die Zwei-Photonen-Resonanz schmaler und höher wird.

Es stellt sich natürlich die Frage, warum es, entgegen unserer Hoffnung, so wenig bewirkt, näher an die 6^3P Resonanz zu gehen. Die Antwort darauf liegt in den Messungen zur Phasenangepasstemperatur. Wie gezeigt sinkt die Phasenangepasstemperatur mit kleineren UV-Verstimmungen. Nach der allgemeinen Formel für die erzeugte Lyman- α Leistung (Gleichung 2.8) ist die konvertierte Lyman- α Leistung proportional zum Quadrat der Quecksilberatomdichte. Die niedrigeren Temperaturen bei kleineren UV-Verstimmungen führen zu niedrigeren Quecksilberdampfdichten. Diese niedrigeren Dichten wirken der Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität pro Atomdichte durch kleinere UV-Verstimmungen entgegen. Diesen Zusammenhang erkennt man natürlich auch in Gleichung 2.11, denn diese Gleichung ist ja nur eine Umstellung der Gleichung 2.8 für den speziellen Fall, dass die Phasenangepasstung über die Dichte des nichtlinearen Mediums eingestellt wird, wie das bei uns der Fall ist. Hier gibt es keine explizite Abhängigkeit von der Atomdichte mehr. Der vermindernde Term für kleine UV-Verstimmungen steckt hier in der Dispersion pro Atomdichte $\Delta k_a = \Delta k/N$. Diese steigt nach Gleichung 2.36 für kleine UV-Verstimmungen. Die Lyman- α Leistung ist antiproportional zum Quadrat der Dispersion pro Atomdichte. Man kann nun eine Abschätzung machen, wie sich der Gewinn durch die höhere Suszeptibilität pro Atomdichte und der Verlust durch die höhere Dispersion pro Atomdichte bei kleineren UV-Verstimmungen insgesamt auf die Lyman- α Leistung auswirken. Da die par-

tielle Suszeptibilität χ_{34} und die Zwei-Photonen-Resonanz unabhängig von der UV-Verstimmung sind kann man sich auf den Beitrag durch χ_{12} beschränken, und es gilt:

$$P \propto \left(\frac{\chi_a^{(3)}}{\Delta k_a} \right)^2 \propto \left(\frac{\chi_{12}}{\Delta k_a} \right)^2 \quad (4.1)$$

Man betrachtet nun nur die wichtigsten Beiträge durch das nahe 6^3P Niveau und vernachlässigt die homogene und die Dopplerverbreiterung. Die Laserfrequenz ω_L beschreibt man durch die Frequenz des 6^3P Niveaus $\omega_{6^3\text{P}}$ und die Verstimmung $\Delta\omega$ der Strahlung dazu. Dann ergibt sich weiter:

$$P \propto \left(\frac{\omega_{6^3\text{P}}^2 - \omega_L^2}{\omega_{6^3\text{P}} - \omega_L} \right)^2 = (2\omega_{6^3\text{P}} + \Delta\omega)^2 \approx \text{const.} \quad (4.2)$$

Da die Verstimmung $\Delta\omega$ im Vergleich zur Absolutfrequenz $\omega_{6^3\text{P}}$ verschwindend gering ist, kann also gefolgert werden, dass sich die führenden Beiträge genau wegheben und in dieser Näherung leider auch kein positiver Effekt durch kleinere UV-Verstimmungen zu erwarten ist. Dass sich dennoch ein, wenn auch viel kleinerer als zunächst erwarteter, positiver Effekt zeigt, liegt an zwei Gründen. Zum Einen wird die Zwei-Photonen-Resonanz bei niedriger Temperatur wegen der geringeren Dopplerverbreiterung schmaler und damit auch höher. Zum Anderen wurden in der obigen Abschätzung die höheren Niveaus vernachlässigt. Diese geben zwar einen positiven Beitrag zur nichtlinearen Suszeptibilität, wie im Theoriekapitel in Abbildung 2.3 gezeigt wurde, aber bewirken auch eine Erhöhung von Δk_a , was insgesamt zu einer Verminderung der Lyman- α Leistung führt, die für die größeren UV-Verstimmungen nicht mehr zu vernachlässigen ist.

In Abbildung 4.16 wird das experimentelle Ergebnis mit der Theorie verglichen. Die verwendeten Messpunkte sind diejenigen, die bei der Messreihe mit 100 mbar Helium-Puffergas und Fokus in der Zellenmitte aufgenommen wurden. Die Theorie wurde nach Kapitel 2 inklusive aller Niveaus aus Tabelle A.1 und unter Berücksichtigung der Aufspaltung des 6^3P Niveaus berechnet. Für die Absorption wurden die gemessenen Werte eingesetzt. Da die Absorptionswerte nur bei den vermessenen UV-Verstimmungen bekannt sind, wurden auch nur diese Punkte berechnet und die Lyman- α Leistung dazwischen interpoliert. Die Rechnung gibt, wie später noch ausführlicher besprochen, die absolute Höhe der Lyman- α Leistung nicht gut wieder. Den relativen Verlauf zum Beispiel der Zwei-Photonen-Resonanz oder der Phasen Anpassung gibt die Rechnung, wie gesehen, gut wieder. Deshalb wird auch hier nur der relative Verlauf der Lyman- α Leistung nahe der 6^3P Resonanz gezeigt. Dazu wurden die gerechneten Werte so skaliert, dass die Rechnung einmal die Messung beim Maximum bei 150 GHz wiedergibt (grüne Linie) und einmal den Punkt bei 400 GHz (blaue Linie). Im Gegensatz zur Zwei-Photonen-Resonanz stimmt der gerechnete Verlauf nicht gut mit den experimentellen Werten überein. Die Absorption macht sich in der Rechnung bereits früher bemerkbar, das gerechnete Maximum liegt bei 400 GHz. Der Gewinn gegenüber größeren

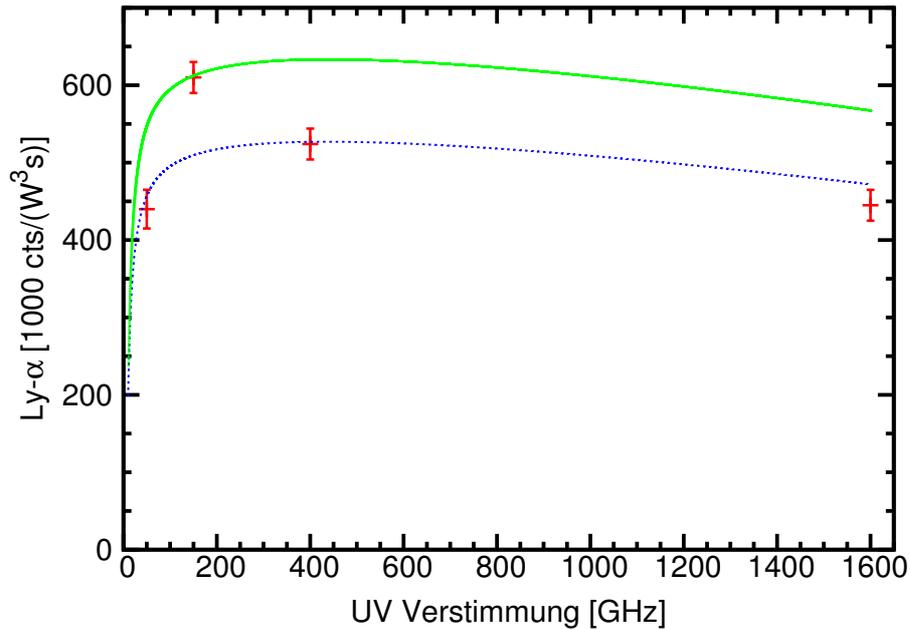


Abbildung 4.16: Vergleich von Theorie und Experiment für die ideale UV-Verstimmung. Gezeigt ist noch einmal die gemessene, normierte Lyman- α Zählrate mit Helium Puffergas und Fokus in der Mitte der Zelle (rote Kreuze). Die eingezeichneten Linien zeigen den Verlauf der berechneten Lyman- α Zählrate. Dabei geben die Linien nur den relativen Verlauf wieder. Dazu wurde die grüne (durchgezogene) Linie so skaliert, dass Theorie und Experiment bei 150 GHz übereinstimmen. Die blaue (gepunktete) Linie wurde so skaliert, dass Theorie und Experiment bei 400 GHz übereinstimmen.

UV-Verstimmungen fällt in der Rechnung mit 12 % kleiner aus als in der Messung mit 32 %. Beide Unterschiede weisen darauf hin, dass es im Experiment bei höheren Temperaturen zu Effekten kommt, die die VUV-Leistung verringern und in der Rechnung noch nicht eingebaut sind. Eine mögliche Erklärung ist wieder die schon angesprochene Restgasabsorption. Eine andere Möglichkeit ist die Bildung von Quecksilberdimeren. Die Bildung solcher Hg_2 Quecksilberdimere wurde zum Beispiel in [SK85] ausführlich diskutiert. Leider in einem für uns viel zu niedrigen Temperaturbereich. Generell sollte die Bildung von Dimeren bei höheren Temperaturen vermehrt auftreten. Die zusätzliche VUV-Absorption durch solche Dimere könnte den Abfall der experimentellen Kurve erklären. Die Absorption der UV-Strahlung, die für die Rechnung verwendet wurde, wurde experimentell bestimmt und würde die Dimere bereits enthalten.

Abbildung 4.17 zeigt die gemessene Transmission der UV-Strahlung durch die Quecksilberdampfzelle bei den gemessenen UV-Verstimmungen. Die Temperatur des Quecksilberdampfs entspricht jeweils der Phasenangepasstemperatur für die jeweilige UV-Verstimmung. Gemessen wurde mit 100 mbar Helium-Puffergas in der Zelle. Man erwartet wegen der großen Absorption für UV-Verstimmungen kleiner 150 GHz einen deutlichen Abfall der Lyman- α Leistung, was ja auch tatsächlich gemessen wird. Aus dieser Messung können die Absorptionslängen bei den jeweiligen UV-Verstimmungen bestimmt werden, wenn man wieder annimmt, dass die Absorption in einem homoge-

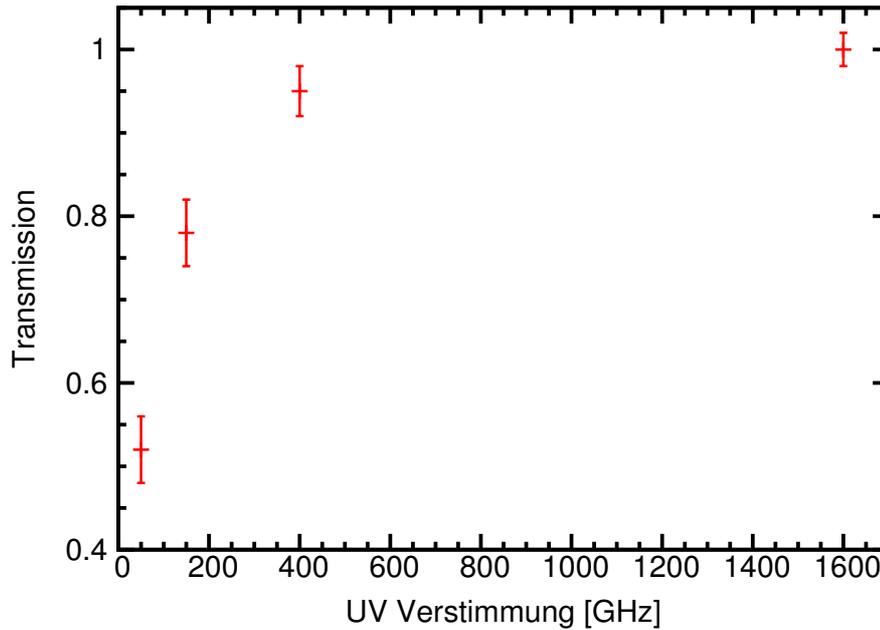


Abbildung 4.17: Absorption der UV-Strahlung. Aufgetragen ist die Transmission der UV-Strahlung durch die Quecksilberdampfzelle bei verschiedenen UV-Verstimmungen zur 6^3P Resonanz. Gemessen wurde mit 100 mbar Helium-Puffergas. Die Temperatur der Zelle entspricht der jeweiligen Phasenangepasstemperatur für die gewählte UV-Verstimmung (siehe Abbildung 4.4).

nen Dichteprofil der Länge 15 mm zustande kommt. Diese Absorptionslängen wurden dann in der Rechnung zur Abbildung 4.16 verwendet.

Der Einfluss der Druckverbreiterung durch das Helium-Puffergas auf die Absorption ist beträchtlich. In Abbildung 4.18 wird die Transmission des UV-Strahls bei einer festen Verstimmung von 50 GHz zur 6^3P Resonanz gemessen und der Puffergasdruck erhöht. Das geschieht bei 130°C, der Phasenangepasstemperatur für diese Verstimmung. Daraus ergibt sich, dass die Absorption von 10 % bei 0 mbar Puffergas auf 52 % bei 100 mbar zunimmt. Das erklärt warum die Kante im Lyman- α Signal in Abbildung 4.14 ohne Helium bei kleineren UV-Verstimmungen liegt. Die Absorption ist bei dem Maximum der Kurve ohne Helium (50 GHz) deutlich geringer als zum Beispiel die Absorption mit Helium bei dem Maximum der Kurve mit Helium (150 GHz). Das heißt die größere Absorption mit Puffergas verschiebt das Maximum der Lyman- α Kurve zu größeren Verstimmungen.

Erreichte Lyman- α Leistung und Vergleich mit den bisherigen Werten

Die höchste von uns erreichte, auf die Eingangsleistungen normierte Zählrate beträgt $2 \times 10^6 \frac{\text{cts}}{\text{W}^3_s}$, bei 0 mbar Heliumdruck, 50 GHz UV-Verstimmung und dem Fokus weit vorne in der Zelle. Wie bereits erwähnt wurde hier und auch in der restlichen Arbeit immer auf die Eingangsleistungen vor der Zelle und vor der Fokussierlinse normiert, da dort die Leistungen gemessen wurden. Berechnet man nun noch mit ein, dass die unbeschichtete Fokussierlinse pro Strahl nur 92,7 % transmittiert, kann man zum Ver-

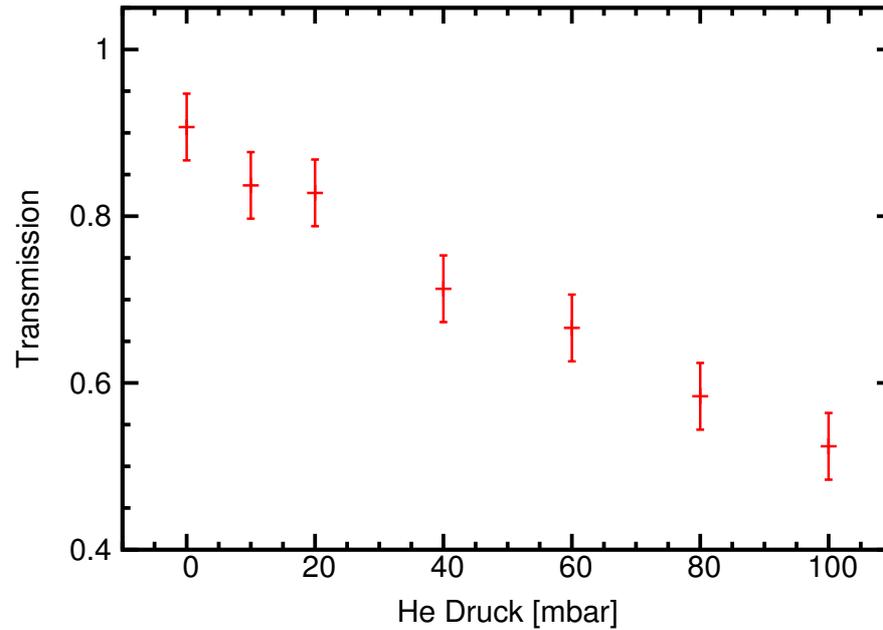


Abbildung 4.18: Einfluss des Helium-Puffergases auf die UV-Absorption. Aufgetragen ist die Transmission durch die Quecksilberdampfzelle bei einer UV-Verstimmung von 50 GHz über dem Helium-Puffergasdruck bei einer Quecksilberdampf Temperatur von 130 °C. Der Großteil der Absorption wird durch die Druckverbreiterung durch das Puffergas verursacht.

gleich mit den älteren Messungen [Mar09, EWH01] die Zählrate auf die Leistungen in der Quecksilberzelle normieren. Dadurch erhöhen sich die Werte um 25 %. Die höchste von uns gemessene, auf die Leistungen in der Zelle normierte Zählrate beträgt also $2,5 \times 10^6 \frac{\text{cts}}{\text{W}^3 \text{s}}$. Die Detektionseffizienz wurde in [Mar09] zu 6×10^{-5} abgeschätzt. Sie setzt sich zusammen aus der gemessenen Transmission der MgF₂ Linse (T=68 %), den gemessenen Transmissionen der drei Lyman- α Filter (Acton 122-N-1D F2 T=20,5 %, Acton 122-XN-1D F3 T=14,5 % und Acton 122-XN-1D XF2 T=3,5 %) und dem aus dem Strahlverlauf berechneten Wert für die Transmission am kleinen Metallspiegel (T=70 %) und der vom Hersteller angegebenen Effizienz des Photomultipliers (12%). Damit ergibt sich eine auf die Leistungen vor der Zelle normierte Konversionseffizienz von $55 \frac{\text{nW}}{\text{W}^3}$, beziehungsweise eine auf die Leistungen in der Zelle normierte Konversionseffizienz von $69 \frac{\text{nW}}{\text{W}^3}$.

Die höchste absolut erreichte Lyman- α Rate beträgt $10800 \frac{\text{cts}}{\text{s}}$ daraus ergibt sich eine erzielte Lyman- α Leistung von 0,3 nW. Bei dieser Messung betrug aber die auf die Eingangsleistungen normierte Konversionseffizienz nur $1,1 \times 10^6 \frac{\text{cts}}{\text{W}^3 \text{s}}$ und die Leistungen der Fundamentalen vor der Zelle waren $P_{UV} = 140 \text{ mW}$, $P_{blau} = 350 \text{ mW}$ und $P_{gruen} = 200 \text{ mW}$. Das heißt, es wurden weder die idealen Bedingungen noch die maximal möglichen Leistungen verwendet. Das erklärt sich daraus, dass die absolute Lyman- α Leistung zunächst nicht im Fokus dieser Arbeit lag.

Die in Kapitel 3 angegebenen typischen und maximalen Leistungen der fundamentalen Lasersysteme wurden direkt hinter den jeweiligen Verdopplungsresonatoren gemessen.

Auf dem Weg bis vor die Zelle wird der UV-Strahl durch die Optiken um 35 % abgeschwächt. Ebenso wird der blaue Strahl um 22 % und der grüne Strahl um 11 % abgeschwächt. Nimmt man die maximale auf die Eingangsleistungen normierte Konversionseffizienz von $55 \frac{\text{nW}}{\text{W}^3}$ und die typischen Leistungen, die vor der Zelle mit moderatem Aufwand ohne Gefahr von Zerstörungen oder Degradation realisierbar sind ($P_{UV} = 260 \text{ mW}$, $P_{\text{blau}} = 350 \text{ mW}$ und $P_{\text{gruen}} = 300 \text{ mW}$), so erhält man eine Leistung von 1,5 nW. Nimmt man stattdessen die maximal in der Zelle erreichbaren Leistungen ($P_{UV} = 490 \text{ mW}$, $P_{\text{blau}} = 350 \text{ mW}$ und $P_{\text{gruen}} = 3,6 \text{ W}$) an, so ergäbe sich eine Lyman- α Leistung von 34 nW. Nach einer einfachen Abschätzung [WPEH01] sollte bereits eine Leistung von 1 nW ausreichen, um innerhalb einiger Minuten gefangene Antiwasserstoffatome von einer typischen Anfangstemperatur in der Falle von 375 mK auf das Doppler-Limit von 2,4 mK zu kühlen. Damit ist bei vollen Leistungen mit der aufgebauten Lyman- α Quelle die angestrebte Kühlung von Antiwasserstoff zumindest vorstellbar.

Vergleicht man die erreichten Zahlen mit denen in [Mar09] veröffentlichten Zahlen, so konnte die auf die Leistungen in der Zelle normierte Konversionseffizienz von $11 \frac{\text{nW}}{\text{W}^3}$ auf $69 \frac{\text{nW}}{\text{W}^3}$ um einen Faktor 6,3 erhöht werden. Die maximal erzielte Lyman- α Leistung wurde um einen Faktor 4,8 von 0,063 nW auf 0,3 nW erhöht. Die Erhöhung setzt sich zusammen aus dem Gewinn durch das Weglassen des Helium-Puffergases, der Verschiebung des Fokus in den vorderen Bereich der Zelle und der Wahl der idealen UV-Verstimmung. Wahrscheinlich ist auch die Fokusüberlagerung im Verlauf der in Kapitel 3.4 geschilderten Messungen noch etwas verbessert worden. In [EWH01] wurde mit dem früheren Lasersystem 20 nW Lyman- α Leistung erzeugt. Die fundamentalen Leistungen in der Zelle waren $P_{UV} = 570 \text{ mW}$, $P_{\text{blau}} = 500 \text{ mW}$ und $P_{\text{gruen}} = 1,2 \text{ W}$. Damit lässt sich die auf die Leistungen in der Zelle normierte Konversionseffizienz zu $58 \frac{\text{nW}}{\text{W}^3}$ berechnen. Das ist etwas weniger als die von uns erreichte normierte Konversionseffizienz, so dass der Aufbau dieser Arbeit die bisher effizienteste kontinuierliche Lyman- α Quelle ist.

Mit der Theorie aus Kapitel 2 berechnet sich die theoretische, auf die Leistungen in der Zelle normierte Konversionseffizienz zu $430 \frac{\text{nW}}{\text{W}^3}$, also etwa 6 mal mehr als die erreichten $69 \frac{\text{nW}}{\text{W}^3}$. Dieser Unterschied wird mit den nicht-Gaußschen Fundamentalstrahlen und der nicht perfekten Strahlüberlagerung erklärt. In der Berechnung der Phasenanstimmungstemperatur ließ sich das Problem der nicht-Gaußschen Fundamentalstrahlen durch die Verwendung der gemessenen b -Parameter umgehen. Bei der Berechnung der Lyman- α Leistung funktioniert das nicht. Die gemessenen b -Parameter entsprechen reinen Gauß-Strahlen, die wesentlich härter fokussiert sind und daher auch mehr Lyman- α Leistung erzeugen. Dennoch kann man die Theorie verwenden, um relative Vergleiche zu machen. So kann abgeschätzt werden, wie viel mehr Leistung in unserem Experiment in etwa zu erwarten wäre, verglichen mit der früheren Situation, wo der frequenzverdoppelte Argon-Ionen Laser verwendet wurde. Bei gleichen Foki ergibt sich aus der schmäleren Zwei-Photonen-Resonanz und der kleineren UV-Verstimmung ein Faktor 3. Berechnet

man noch den angegebenen größeren b -Parameter mit ein, erhält man sogar einen Faktor 8. Ein Grund dafür dass wir diesen Faktor im Vergleich der Experimente nicht annähernd sehen, ist wohl, dass die Transmission der MgF_2 Linsen in [EWH01] mit 48% abgeschätzt wurde. Wir haben die Transmission der von uns verwendeten Linse, die vom gleichen Typ und Hersteller ist, auf 68% vermessen. Folgt man dieser Logik, so wurde die Leistung in [EWH01] um einen Faktor 3 überschätzt, da dort drei solcher Linsen verwendet wurden. Berücksichtigt man nun noch, dass die Strahlüberlagerung äußerst kritisch und daher schlecht vergleichbar ist, sind die Ergebnisse durchaus vergleichbar.

4.5 Hintergrund und TALISE

Zum Abschluss des experimentellen Teils werden in diesem Abschnitt noch zwei Effekte besprochen, die nicht direkt mit der Lyman- α Erzeugung zusammenhängen, sondern zusätzlich auftreten, wenn mit den fundamentalen Strahlen in den Quecksilberdampf gestrahlt wird. Als Erstes soll der in Kapitel 3.5 erwähnte Hintergrund in der Lyman- α Zählrate, der durch Unterbrechen des grünen Strahls herausgerechnet wird, besprochen werden. Dieser Hintergrund entsteht durch die eingestrahlte UV-Strahlung. Wenn nur der UV-Laser eingestrahlt wird, wird eine Zählrate gemessen. Strahlt man nur den blauen oder grünen Laser ein, erhält man keine Zählrate. In Abbildung 4.19 wird der bei der Lyman- α Messung gemessene Hintergrund über der Verstimmung der UV-Strahlung zum 6^3P Niveau aufgetragen. Die Werte und eingezeichneten Fehler ergeben sich aus der Mittelung der Lyman- α Messungen, die bei der jeweiligen Verstimmung aufgenommen wurden. Dazu wurde der Hintergrund auf die eingestrahlte UV-Leistung normiert. Die Temperatur der Zelle entsprach jeweils der Phasenanstimmungstemperatur für die verwendete UV-Verstimmung. Die beiden blauen Datenpunkte (X) bei kleinen UV-Verstimmungen stammen aus Lyman- α Messungen ohne Helium. Es ist zu erkennen, dass sowohl kleine UV-Verstimmungen als auch die Anwesenheit von Puffergas zu großen Hintergrundzählraten führen.

Es gilt nun herauszufinden, wie dieser Hintergrund entsteht. Für die Detektion von Quecksilber in Luft wurde mit gepulster Strahlung der Wellenlänge 253,7 nm resonant zum 6^3P Niveau in Quecksilberdampf eingestrahlt und das abgestrahlte Spektrum im Bereich von 300 nm bis 850 nm untersucht [BLS⁺97]. Es wurde eine große Zahl von Quecksilberlinien gefunden. Darunter sind auch Linien, die zu energetisch hoch liegenden Quecksilberniveaus, wie zum Beispiel dem 11^1S -Niveau gehören. Da wir, im Gegensatz zu dieser Messung, auch VUV-Strahlung nahe der Lyman- α Wellenlänge detektieren können, liegt die Vermutung nahe, dass es sich bei dem Hintergrund um die entsprechenden VUV-Linien des Quecksilberspektrums handelt. In der erwähnten Messung [BLS⁺97] wurde auch eine starke Ionisierung des Quecksilbers beobachtet. Daraus wurde geschlossen, dass ein durch das 6^3P Niveau unterstützter Drei-Photonen-Prozess das Quecksilber ionisiert. Bei der Rekombination entstehen dann, je nach Zerfallsweg,

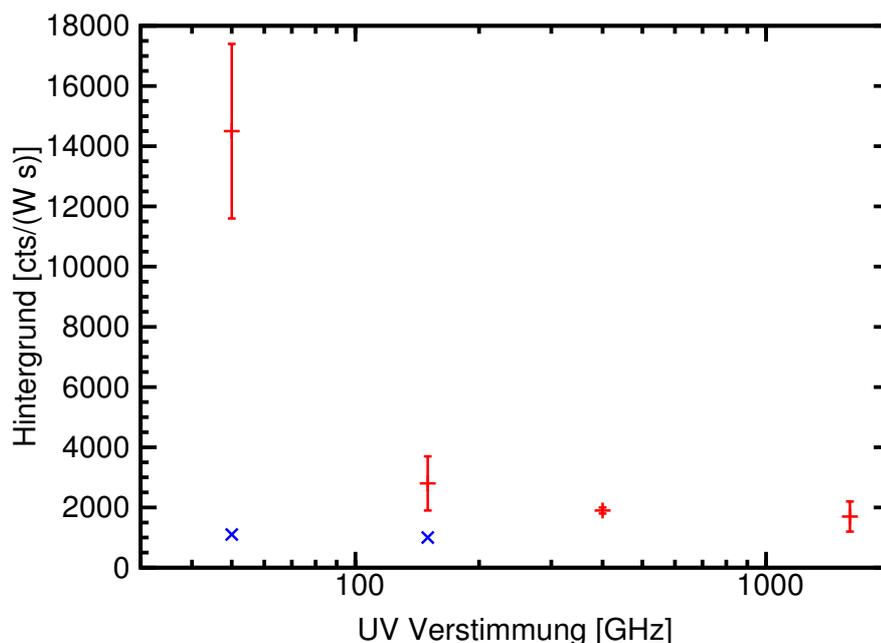


Abbildung 4.19: Hintergrund in Lyman- α Signal durch die UV-Strahlung. Auf der y -Achse ist die auf die UV-Leistung normierte Zählrate des Photomultipliers, wenn nur UV-Strahlung eingestrahlt wird, aufgetragen. Auf der x -Achse ist die verwendete UV-Verstimmung aufgetragen. Der Hintergrund durch die UV-Strahlung steigt stark mit kleinerer UV-Verstimmung an. Die roten Kreuze sind mit 100 mbar Helium gemessen die blauen Punkte (X) ohne Puffergas.

die beobachteten Linien. Das passt zu unserer Beobachtung, dass bei kleineren UV-Verstimmungen und höheren Puffergasdrücken der Hintergrund verstärkt wird, denn dann wird der erste Schritt des Drei-Photonen-Prozesses stärker unterstützt.

Um diese Vermutung weiter zu stützen wurde in einem weiteren Versuch nur UV-Strahlung eingestrahlt. Mit einem Filter wurde die UV-Strahlung geblockt, die mit dem kleinen Spiegel aus der Zelle herausreflektiert wird. Man sieht dann auf einer Papierkarte sichtbare Strahlung, die ebenfalls mit aus der Zelle herausreflektiert wird. Diese sichtbare Strahlung wurde mit einem einfachen Prismen-Spektrograph untersucht und ein grüner sowie ein orangener Anteil gefunden. Die gefundenen Linien können mit der 546nm Linie (7^3S_1 - 6^3P_2 Übergang) und der 577/579 nm Doppellinie (6^3D_2 - 6^1P_1 Übergang und 6^3D_1 - 6^1P_1 Übergang) identifiziert werden. Diese Linien gehören zu den stärksten Linien einer Quecksilberdampfampe, die ebenfalls mit Elektronenstoß und Rekombination funktioniert. Das alles stützt die Vermutung, dass der Hintergrund durch VUV-Linien in Quecksilber verursacht wird, die durch Elektronenstoß und Rekombination angeregt werden.

Die bisher besprochene Hintergrundzählrate wird gemessen, wenn nur der UV-Laser eingestrahlt wird. Bei kleinen UV-Verstimmungen von 25 GHz ohne Heliumdruck wird eine Erhöhung des Hintergrunds beobachtet, wenn zusätzlich die blaue Strahlung eingestrahlt wird. Bei 25 GHz UV-Verstimmung und 93 mW eingestrahelter UV-Leistung wurden 100 cts/s Hintergrund gemessen und mit zusätzlich eingestrahlenen 350 mW

blauer Strahlung 200 cts/s. In der Arbeit von Koudoumas et. al. [KE93] wird das UV- und VUV-Spektrum von Quecksilber untersucht, wenn mit gepulster Strahlung Zwei-Photonen-resonant zum 8^1S Niveau eingestrahlt wird. Es wird wieder eine Vielzahl von Quecksilberlinien im UV- und VUV-Bereich beobachtet. Dafür werden Prozesse wie parametrische Erzeugung, verstärkte spontane Emission und Raman-Streuung verantwortlich gemacht. Ob die beobachtete Erhöhung der Hintergrundzählrate durch die blaue Strahlung bei kleinen UV-Verstimmungen durch solche Prozesse oder durch zusätzliche Ionisierung und Rekombination entsteht, ist bislang nicht klar.

Neben dem Vier-Wellen-Mischprozess $\omega_4 = \omega_{UV} + \omega_{blau} + \omega_{gruen}$, der zu Lyman- α Strahlung führt, sind noch zwei weitere Zwei-Photonen-resonante Vier-Wellen-Mischprozesse denkbar. Bei dem Vier-Wellen-Mischprozess $\omega_4 = \omega_{UV} + \omega_{blau} + \omega_{blau}$ wird Strahlung bei 113 nm erzeugt. Da die Dispersion des UV-Lasers dominiert, ist dieser Vier-Wellen-Mischprozess bei der gleichen Temperatur wie die Lyman- α -Erzeugung phasenangepasst. Wegen der Absorption von MgF_2 bei 113 nm können wir VUV-Strahlung bei dieser Wellenlänge nicht detektieren. Ebenfalls denkbar ist Vier-Wellen-Differenzfrequenzmischen mit $\omega_4 = \omega_{UV} + \omega_{blau} - \omega_{gruen}$. Das ergäbe Strahlung bei 219 nm. Da für Differenzfrequenzmischen eine andere Phasenanpassungsbedingung gilt, ist dieser Prozess nicht phasenangepasst.

Der zweite interessante Effekt, der in diesem Abschnitt besprochen werden soll, betrifft die IR-Strahlung des 7^1S-6^1P Übergangs. Im Abschnitt 4.3 wurde in Abbildung 4.7 gleichzeitig die Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal und in der IR-Fluoreszenzstrahlung gemessen. Beide Kurven konnten gut von der Theorie wiedergegeben werden. Die Zweiphotonenresonanz im Lyman- α Signal konnte, wie in Abschnitt 4.3 gezeigt, auch bis runter zu UV-Verstimmung von 50 GHz gut von der Theorie beschrieben werden. Für die gleichzeitig aufgenommene IR-Strahlung stimmt die Theorie aus den optischen Bloch-Gleichungen bei kleinen UV-Verstimmungen nicht mehr gut mit den gemessenen Kurven überein. Es treten deutliche Unterschiede auf, die zunächst unverstanden waren.

In Abbildung 4.20 wird die IR-Strahlung des 7^1S-6^1P Übergangs gegen die Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz für verschiedene UV-Verstimmungen gezeigt. Bei 800 GHz zeigt sich die bekannte flache und breite Verteilung über die Quecksilberisotope. Bei 150 GHz wächst ein schmales um Größenordnung höheres Maximum an der Stelle des ^{202}Hg Isotops. Die IR-Strahlung der anderen Isotope verschwindet diesem Maximum gegenüber fast völlig. Bei 50 GHz UV-Verstimmung sind wieder die Maxima aller Isotope zu erkennen, die relativen Höhen sind aber gegenüber 800 GHz verändert und die Linien schmaler. Wieder hat man um Größenordnungen höhere IR-Intensitäten. Die Temperatur der Zelle entspricht der Phasenanstimmungstemperatur der Lyman- α Erzeugung bei der jeweiligen UV-Verstimmung. Diese Verschmälerung lässt sich nicht durch die geringere Temperatur erklären. Dieses zunächst rätselhafte Verhalten lässt sich durch Lasertätigkeit auf dem 7^1S-6^1P Übergang erklären. Durch die blaue und die UV-Strahlung wird Besetzung in das 7^1S Niveau gepumpt. Das 6^1P Niveau wird nur

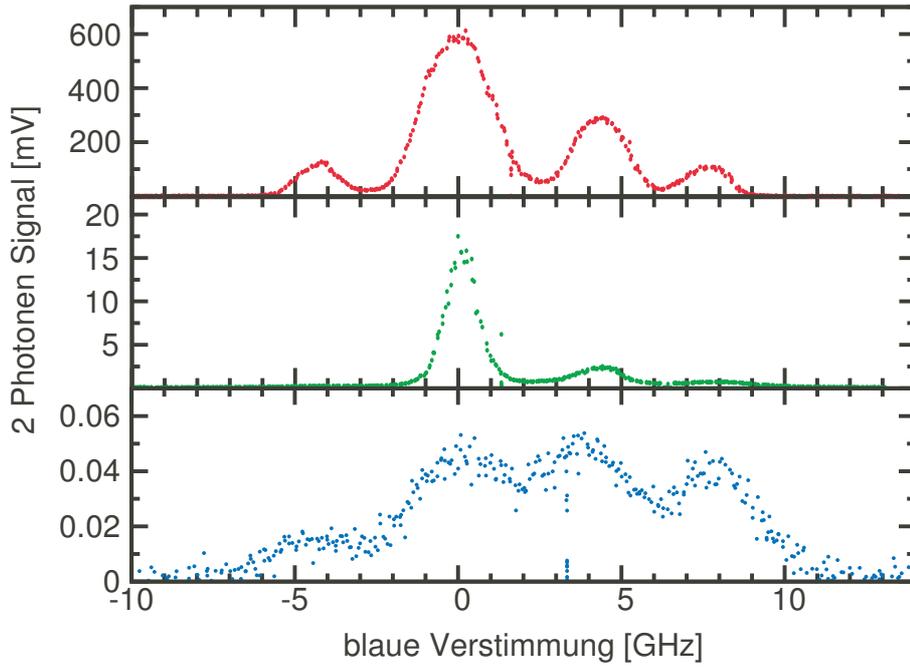


Abbildung 4.20: TALISE im Zwei-Photonen-Resonanz Signal. Gezeigt ist die gemessene Spannung der Photodiode ($0,432 \text{ mV} \hat{=} 1 \text{ nW}$) für die IR-Strahlung der Zwei-Photonen-Resonanz über der Verstimmung der blauen Strahlung zur Zwei-Photonen-Resonanz $\Delta_{2\gamma} = \nu_{\text{blau}} + \nu_{\text{UV}} - \nu_{7^1\text{S}}$ bei verschiedenen UV-Verstimmungen (rot/oben $\Delta_{\text{UV}} = 50 \text{ GHz}$, grün/Mitte $\Delta_{\text{UV}} = 150 \text{ GHz}$, blau/unten $\Delta_{\text{UV}} = 800 \text{ GHz}$). Die Temperaturen des Quecksilberdampfs entsprechen der jeweiligen Phasenanpassungstemperatur. Bei kleinen UV-Verstimmungen steigt das Zwei-Photonen Signal stark an. Dies wird mit Lasertätigkeit auf dem $7^1\text{S} - 6^1\text{P}$ Übergang erklärt.

über den $7^1\text{S} - 6^1\text{P}$ Zerfall mit einer Zerfallszeit von $36,9 \text{ ns}$ bevölkert [BL89]. Das 6^1P Niveau zerfällt schnell mit $1,48 \text{ ns}$ in den Grundzustand [ML00], so dass automatisch Inversion auf dem $7^1\text{S} - 6^1\text{P}$ Übergang vorliegt. Diese Inversion wird nur in dem langen, schmalen Bereich des Quecksilberdampfs erzeugt, der durch die Strahlform der fundamentalen Strahlen vorgegeben ist. Ist die Inversion über einer bestimmten Schwelle, kann ein spontan in die richtige Mode gestreutes Photon durch stimulierte Emission in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung verstärkt werden. Damit erklärt sich das Verhalten aus Abbildung 4.20. Bei 800 GHz waren alle Isotope bei den verwendeten Leistungen ($P_{\text{UV}} = 200 \text{ mW}$, $P_{\text{blau}} = 340 \text{ mW}$) unter der Schwelle. Bei 150 GHz ($P_{\text{UV}} = 274 \text{ mW}$, $P_{\text{blau}} = 330 \text{ mW}$) hatte gerade nur das häufigste ^{202}Hg Isotop eine Inversionsdichte über der Schwelle. Durch die Verstärkung ist dessen Infrarot-Strahlung um Größenordnung stärker als die der anderen Isotope. Bei 50 GHz waren schließlich alle Isotope mit der verwendeten Leistungen von $P_{\text{UV}} = 100 \text{ mW}$ und $P_{\text{blau}} = 270 \text{ mW}$ über der Schwelle. Solches ASE Verhalten (**A**mplified **S**pontaneous **E**mission) auf dem $7^1\text{S} - 6^1\text{P}$ Übergang bei 1014 nm wurde schon früher bei der Erzeugung von VUV-Strahlung in Quecksilber mit gepulsten Lasern gesehen [TM81]. In der Arbeit von Omenetto et. al.

[OMR⁺94] wird ebenfalls mit gepulsten Systemen solche Verstärkung auf der 546nm Linie des $7^3S_1-6^3P_2$ Übergangs in Quecksilber erreicht. In dem Artikel von Amorim et. al. [ABJ00] wird für dieses Phänomen der Begriff TALISE (**T**wo **P**hoton **A**bsorption **L**aser **I**nduced **S**timulated **E**mission) geprägt. In unserem Experiment wurde dieser Effekt zum ersten Mal mit kontinuierlichen Lasern in Quecksilber beobachtet, nach bestem Wissen auch zum ersten Mal überhaupt mit kontinuierlichen Lasern.

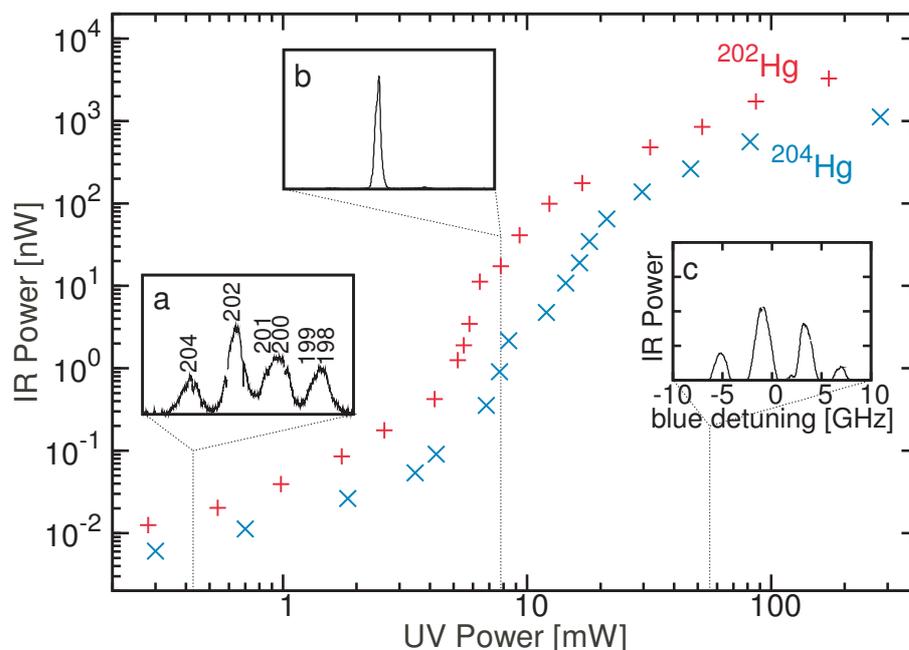


Abbildung 4.21: Nichtlineares Verhalten beim Einsetzen der Lasertätigkeit der IR-Strahlung. Aufgetragen ist die Leistung der IR-Strahlung des 7^1S-6^1P Übergangs über der UV-Leistung bei einer festen blauen Leistung von 46 mW. Die Messung wurde bei $\Delta_{UV} = 25$ GHz ohne Helium durchgeführt. Für die roten Kreuze wurden die Laserfrequenzen auf die ^{202}Hg Zwei-Photonen-Resonanz eingestellt und die blauen X-Datenpunkte auf die ^{204}Hg Zwei-Photonen-Resonanz. Die kleinen Graphen zeigen die Form der Zwei-Photonen-Resonanz beim Durchstimmen der blauen Wellenlänge. Die gestrichelten Linien führen zu der UV-Leistung mit der gemessen wurde. Für kleine Leistungen zeigt sich die normale Form. Bei mittleren Leistungen ist nur das ^{202}Hg Isotop über der Schwelle. Bei hohen Leistungen zeigen alle Isotope Lasertätigkeit.

Das beobachtete Schwellenverhalten lässt sich noch besser bei einer festen UV-Verstimmung und variablen Pumpleistungen analysieren. Dies wird in Abbildung 4.21 gezeigt. Dort wird die gemessene IR-Leistung über der Leistung des UV-Lasersystems aufgetragen bei einer festen Leistung des blauen Lasersystems von 46 mW. Die UV-Verstimmung betrug 25 GHz und die Temperatur des Quecksilberdampfs 115°C . Der blaue Laser wurde einmal auf die Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg Isotops und einmal auf die des deutlich selteneren ^{204}Hg Isotops gesetzt. Man erkennt deutlich bei beiden Isotopen das stark nichtlineare Verhalten im Bereich der Schwelle. Wegen der geringeren Inversionsdichte liegt die Schwelle des selteneren ^{204}Hg Isotops höher als die

des häufigeren ^{202}Hg Isotops. Die kleinen eingebetteten Graphen zeigen die Form der Zwei-Photonen-Resonanz im IR-Signal bei verschiedenen UV-Leistungen. Bei niedrigen Leistungen ($P_{UV} = 428 \mu\text{W}$) zeigt sich das bekannte Bild ohne Lasertätigkeit. Bei mittleren Leistungen ($P_{UV} = 7,8 \text{ mW}$) zeigt nur das ^{202}Hg Isotop Lasertätigkeit. Bei hohen Leistungen ($P_{UV} = 56 \text{ mW}$) sind alle Isotope über der Schwelle. Dieses isotopenselektive Anschwingen kann mit den schmalbandigen, kontinuierlichen Lasern gut untersucht werden. Die maximal erreichte Laserleistung bei 1014 nm durch den TALISE-Prozess beträgt $115 \mu\text{W}$ bei $P_{UV} = 210 \text{ mW}$, $P_{blau} = 242 \text{ mW}$ und 100 mbar Helium. Verglichen mit den Eingangsleistungen ist es also ein recht ineffizienter Prozess. Allerdings muss bedacht werden, dass im Einfachdurchgang auch nur ein geringer Teil der fundamentalen Strahlung absorbiert wird.

Nachdem diese Besonderheit im Signal der IR-Strahlung beim Durchstimmen über die Zwei-Photonen-Resonanz geklärt ist, kann nun auch das IR-Signal analysiert werden, das während des Durchstimmens bei 25 GHz ohne Helium-Puffergas aufgenommen wurde. In Abschnitt 4.3 in der Abbildung 4.13 wurde die bei dieser Messung aufgenommene Lyman- α Kurve gezeigt und konnte nicht gut von der Theorie erklärt werden. Abbildung 4.22 zeigt die dazugehörige Kurve der IR-Strahlung. Im unteren Teil der Abbildung wird die Position und relative Häufigkeit der einzelnen Quecksilber-Isotope gezeigt. Für UV-Verstimmungen deutlich größer als die Hyperfeinstrukturaufspaltung des 6^3P Niveaus entspricht die relative Häufigkeit auch der erwarteten relativen Höhe der Maxima. Bei 25 GHz UV-Verstimmung gilt das so einfach nicht mehr, da jetzt zum Beispiel für das ^{204}Hg Isotop der UV-Laser näher resonant ist als für das ^{198}Hg Isotop (siehe auch Abb. 3.5). Außerdem wird die Höhe der Maxima durch den TALISE-Effekt verzerrt.

Die gemessene Kurve in Abbildung 4.22 entspricht nicht ganz den Erwartungen. Die Maxima bei den $^{201}\text{Hg}/^{200}\text{Hg}$ Isotopen sind höher als das ^{202}Hg Maximum, obwohl die UV-Verstimmung für das ^{200}Hg Isotop größer ist als für das ^{202}Hg Isotop. Wegen der Hyperfeinstruktur besitzt das ^{201}Hg Isotop sowohl Komponenten, für die die UV-Strahlung weniger als 25 GHz verstimmt ist, als auch solche, für die es mehr ist. Es taucht ein zusätzliches Maximum nahe der Resonanz des ^{201}Hg Isotops auf, das aber sowohl von der Höhe als auch von der Position nicht wirklich zu diesem Isotop passt. Auch das Maximum der $^{198}\text{Hg}/^{199}\text{Hg}$ Isotope ist verschoben und weist ein Nebenmaximum auf.

In Abbildung 4.23 wurde dieselbe Messung über einen größeren Durchstimmbereich der blauen Strahlung bei einer UV-Verstimmung von jetzt nur noch 10 GHz durchgeführt. Das sich ergebende Bild hat nur noch wenig Ähnlichkeit mit den zuvor vorgestellten Zwei-Photonen-Resonanzkurven. Man muss sich zunächst klarmachen, dass es nun zwei Prozesse gibt, die zu IR-Strahlung bei 1014 nm führen. Zum Einen die bekannte Zwei-Photonen-Absorption, bei der die Summe der UV-Frequenz und der blauen Frequenz dem $6^1\text{S}-7^1\text{S}$ Übergang entspricht. Diese Resonanzen liegen im rechten Teil des Bildes. Zum Anderen gibt es zweifache Ein-Photonen-Absorption, bei der

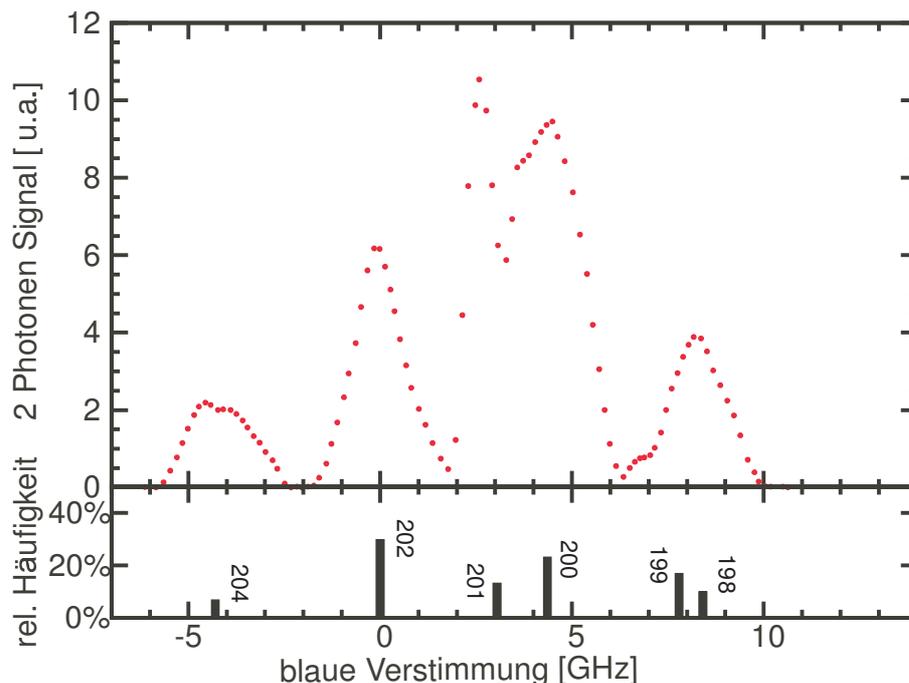


Abbildung 4.22: Verschiebung der Energieniveaus. Aufgetragen ist das Signal der IR-Laserstrahlung über der Verstimmung der blauen Strahlung zur Zwei-Photonen-Resonanz bei einer UV-Verstimmung von 25 GHz ($T = 114 \text{ }^\circ\text{C}$). Die Positionen und Häufigkeiten der Quecksilberisotope werden im unteren Teil der Abbildung gegeben. Die Linie des ^{201}Hg Isotops ist leicht verschoben und die Höhe der Maxima von ^{201}Hg und ^{200}Hg deutlich höher als von der Häufigkeit her erwartet. Die entsprechende Lyman- α Kurve wurde in Abbildung 4.13 gezeigt.

im ersten Schritt, trotz 10 GHz Verstimmung, Besetzung in das 6^3P Niveau gebracht wird. In einem zweiten Schritt wird diese Besetzung durch die blaue Strahlung in das 7^1S Niveau gebracht. Diese zweifache Ein-Photon-Absorption hat ihre Resonanz exakt bei der 6^3P - 7^1S Übergangsfrequenz des jeweiligen Isotops. Da das 6^3P Niveau der ungeraden Isotope durch die Hyperfeinstruktur aufgespalten ist, gibt es bei den ungeraden Isotopen für jede Hyperfeinkomponente eine zweifache Ein-Photon-Resonanz. Die zweifachen Ein-Photon-Resonanzen liegen im linken Teil der Abbildung. Der Unterschied zwischen der Zwei-Photonen und der doppelten Ein-Photon-Resonanz wird zum Beispiel in [Bey08] ausführlich diskutiert. Im unteren Teil von Abbildung 4.23 sind wieder die Positionen der Zwei-Photonen-Resonanz der einzelnen Isotope gegeben. Die Höhe der Balken entspricht der relativen Häufigkeit der Isotope. Für das ^{204}Hg Isotop ist die UV-Strahlung nur 4,8 GHz verstimmt, für das ^{198}Hg Isotop dagegen ist die UV-Strahlung 15 GHz verstimmt. Daher ist hier die Häufigkeit der Isotope kein gutes Maß für die Stärke der Linie. Zusätzlich wurden jetzt noch die Positionen der entsprechenden doppelten Ein-Photon-Resonanzen eingezeichnet. Die Höhe der Balken ist für die geraden Isotope ohne Hyperfeinstruktur wieder die relative Häufigkeit. Für die ungeraden Isotope mit Hyperfeinstruktur wurde die Häufigkeit des Isotops mit der relativen Stärke des jeweiligen 6^1S - 6^3P Übergangs multipliziert. Bei 0 GHz blauer Ver-

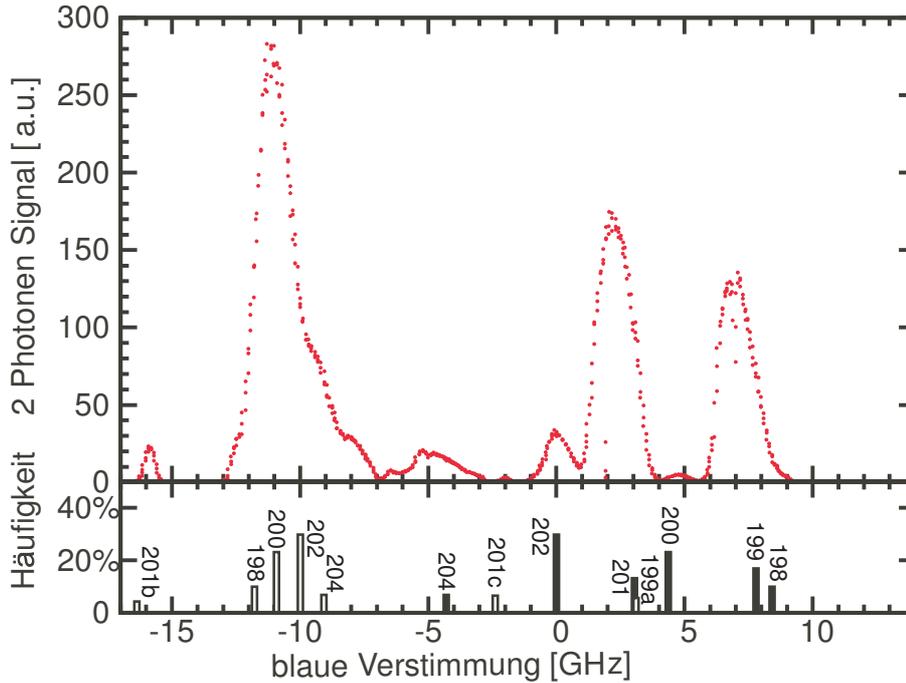


Abbildung 4.23: Zwei-Photonen und doppeltes Ein-Photon-Pumpen der IR-Laserstrahlung Aufgetragen ist das Signal der IR-Laserstrahlung über einen weiten Bereich der Verstimmung der blauen Strahlung zur Zwei-Photonen-Resonanz bei einer UV-Verstimmung von 10 GHz ($T = 92 \text{ }^\circ\text{C}$). Der TALISE-Prozess kann über Zwei-Photonen-Absorption oder zweifache Ein-Photon-Absorption gepumpt werden. Die Positionen der Zwei-Photonen-Resonanzen (ausgefüllte Balken) und Ein-Photon-Resonanzen (nicht ausgefüllte Balken) der einzelnen Isotope werden im unteren Teil der Abbildung gegeben. Die Höhe der ausgefüllten Balken entspricht der Häufigkeit der Isotope. Bei den nicht ausgefüllten Balken wurde für die ungeraden Isotope die relative Stärke der beteiligten Hyperfeinniveaus mit eingerechnet. (a: $F = 1/2$; b: $F = 3/2$; c: $F = 5/2$.)

stimmung befindet sich die Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg Isotops. Bei -10 GHz findet sich die entsprechende zweifache Ein-Photon-Resonanz. Man sieht, dass bei dieser Verstimmung und den verwendeten Leistungen ($P_{UV} = 186 \text{ mW}$, $P_{blau} = 290 \text{ mW}$) die zweifache Ein-Photon-Resonanz den TALISE Prozess effektiver pumpt als die Zwei-Photonen-Resonanz. Auffällig sind vor allem die Maxima der Zwei-Photonen-Resonanz der Isotope $^{198}\text{Hg} - ^{201}\text{Hg}$. Sie sind deutlich höher als das Maximum der Zwei-Photonen-Resonanz des Isotops ^{202}Hg und sind auch in der Position verschoben. Ein zusätzliches kleines Maximum entsteht zwischen den beiden Hauptmaxima an einer Stelle, wo sich kein Isotop befindet. Das Maximum der Zwei-Photonen-Resonanz des Isotops ^{204}Hg ist verbreitert und zeigt eine gewisse Struktur (vgl. auch Abb. 4.22). Die genannten Effekte sind bis jetzt nicht verstanden. Ein Ansatz für eine Erklärung könnte die AC-Stark Verschiebung sein. Die Eigenzustände des Atoms sind in der Anwesenheit starker Strahlungsfelder nicht länger die Eigenzustände des Gesamtsystems. Die neuen Eigenzustände haben eine Verschiebung der Resonanzen zur Folge. Die AC-Stark

Verschiebung ist in den Lösungen der Optischen-Bloch-Gleichungen bereits enthalten. Der Wert der Verschiebung hängt von der Verstimmung der Strahlung zum Niveau und von der verwendeten Rabi-Frequenz ab. Bei den verwendeten Leistungen haben wir im Bereich des Fokus Rabi-Frequenzen von mehr als 10 GHz. Sowohl das UV-Strahlungsfeld als auch das blaue Strahlungsfeld verursachen dann Verschiebungen von 250 MHz, die sich aber bei gleichen Rabi-Frequenzen fast aufheben. Bei unterschiedlichen Rabi-Frequenzen können aber Verschiebungen von wenigen 100 MHz übrigbleiben. Das ist zu wenig, um die Verschiebungen in Abbildung 4.23 zu erklären. Insgesamt lässt sich also sagen, dass wir mit diesen Messungen in einem sehr interessanten Bereich sind. Die in der Zwei-Photonen-Resonanz bei kleinen UV-Verstimmungen auftretenden Effekte sind aber noch nicht verstanden und bedürfen weiterer Untersuchungen.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die zweite Generation einer kontinuierlichen, kohärenten Lyman- α Quelle bei 121,56 nm aufgebaut. Diese Quelle soll zur zukünftigen Laserkühlung von Antiwasserstoff dienen. Die Quelle basiert auf Vier-Wellen-Mischen in Quecksilberdampf, wobei die 6^1S - 7^1S Zwei-Photonen-Resonanz zur Erhöhung der Konversionseffizienz genutzt wurde. Es wurden erstmals Festkörperlaser-Systeme zur Erzeugung der fundamentalen Strahlen verwendet. Mit dem frequenzvervierten Yb:YAG Scheibenlaser steht ein UV-Lasersystem zur Verfügung, das über den gesamten Bereich der 6^1S - 6^3P Ein-Photon-Resonanz durchstimmbare ist. Damit konnte der Einfluss der 6^1S - 6^3P Ein-Photon-Resonanz auf die Lyman- α Erzeugung untersucht werden.

Es wurde festgestellt, dass kleinere Verstimmungen zur 6^1S - 6^3P Ein-Photonen-Resonanz zu niedrigeren Phasenanpassungstemperaturen des Vier-Wellen-Mischprozesses führen. Es wurde sowohl theoretisch als auch experimentell gezeigt, dass diese niedrigeren Phasenanpassungstemperaturen bei kleinen Verstimmungen der Erhöhung der Lyman- α Leistung durch die größere nichtlineare Suszeptibilität bei kleinen Verstimmungen entgegenwirken.

Bei immer kleineren Verstimmungen der UV-Strahlung zur 6^1S - 6^3P Resonanz limitiert die Absorption der ultravioletten Strahlung die Lyman- α Erzeugung. Es wird demonstriert, dass es daher günstig ist, den Fokus der Fundamentalstrahlen so weit wie möglich an den vorderen Rand der Dampfregion zu verlagern, um die absorbierende Strecke im Quecksilberdampf zu minimieren.

Durch die niedrigeren Phasenanpassungstemperaturen konnte auf das bisher nötige Puffergas in der Quecksilberdampfzelle verzichtet werden. Dadurch erhöht sich die Lyman- α Erzeugung um einen Faktor 1,7. Es wurde eine Lyman- α Leistung von 0,3 nW erreicht.

Zusätzlich zum Einfluss der 6^3P Resonanz auf die Lyman- α Erzeugung wurde ein weiterer Effekt beobachtet. Durch die Nähe der 6^1S - 6^3P Ein-Photon-Resonanz wird auch mehr Besetzung in das obere 7^1S Niveau der Zwei-Photonen-Resonanz gepumpt. Dadurch konnte erstmals eine kontinuierliche Lasertätigkeit auf der 6^1P - 7^1S Linie in Quecksilber bei 1014 nm beobachtet werden.

Aus den Erfahrungen dieser Arbeit ergibt sich eine Fülle von Möglichkeiten, die Lyman- α Erzeugung weiter zu verbessern. Eine vom Konzept her einfache und direkte Möglichkeit ist, die Leistungen der fundamentalen Lasersysteme zu erhöhen. Das größte Potential liegt hier in dem Faserlasersystem, das bisher zur Sicherheit weit unter den spezifizierten Leistungen benutzt wurde. Deshalb wird in unserer Gruppe zur Zeit ein eigenes Faserlasersystem entwickelt [Ste09]. Damit konnten in der ersten Verstärkerstufe bereits 3 W IR-Leistung erzeugt werden, also mehr als das dreifache der zur Zeit verwendeten IR-Leistung des kommerziellen Systems. Mit einer weiteren Verstärkerstufe sollte sich diese Leistung noch erhöhen lassen. Die einfachste Möglichkeit die Leistungen des blauen Lasersystem zu erhöhen, ist die Verwendung eines leistungsstärkeren Pumplasers für den Titan:Saphir Laser. Mit dem zur Zeit kommerziell erhältlichen 18 W Pumplaser (Coherent Verdi V18) könnte die Leistung des blauen Lasersystems verdoppelt bis verdreifacht werden. Zusätzlich könnte die Konversionseffizienz der Verdopplung durch die Verwendung des neuen nichtlinearen Materials Bismutborat (BIBO) verbessert werden [CHH03]. Wegen des etwas größeren Walk-off-Winkels würde sich dadurch das Strahlprofil leicht verschlechtern, was gegen den Gewinn an Leistung abgewogen werden muss. Eine Erhöhung der UV-Leistung hängt von der Verfügbarkeit leistungsfähigerer nichtlinearer Kristalle ab. Die nötige leistungsstarke Quelle für das fundamentale Licht ist, wie in dieser Arbeit gezeigt, bereits vorhanden.

Mit dem neuen UV-Lasersystem ergibt sich eine faszinierend einfache Möglichkeit, kontinuierliche VUV-Strahlung im Bereich von 120 nm mit bisher nicht erreichter Leistungsstärke zu realisieren. Dazu muss die Wellenlänge der grünen Strahlung so eingestellt werden, dass auch die resultierende VUV-Strahlung nahe bei einer Quecksilberresonanz liegt. Dann erhöht sich die nichtlineare Suszeptibilität noch einmal. Da nun aber wegen der kleinen UV-Verstimmung zur 6^1S-6^3P Resonanz und wegen des größeren Übergangsmatrixelements der Beitrag der Dispersion der UV-Strahlung zur Phasenfehlanpassung dominiert, ändert sich bei dieser zweiten Ein-Photon-Resonanz die Phasenanpassungstemperatur nur wenig. Wählt man die Frequenz der VUV-Strahlung kleiner als die der betreffenden Quecksilberresonanz ergibt sich sogar eine Erhöhung der Phasenanpassungstemperatur. Das heißt, bei zwei Ein-Photon-Resonanzen multiplizieren sich die positiven Effekte in der nichtlinearen Suszeptibilität. Der negative Effekt in der Phasenanpassung tritt nur einmal, auf beziehungsweise kann sogar etwas kompensiert werden. Durch diese insgesamt dreifach resonant erhöhte VUV-Erzeugung sollte sich die VUV-Leistung gegenüber der Lyman- α Leistung nach der theoretischen Rechnung aus Kapitel 2 um einen Faktor im Bereich von 10^4 erhöhen lassen. Damit wäre man im μW -Bereich. Dazu werden aktuell in unserer Gruppe Experimente durchgeführt, und es wurden bereits Leistungen von einigen μW realisiert.

Um die Leistung bei der für die Kühlung von Antiwasserstoff benötigten Lyman- α Wellenlänge zu erhöhen, kann ein Überhöhungsresonator genutzt werden. In diesem wird - ähnlich wie in den Verdopplungsresonatoren - die fundamentale Leistung erhöht. Im Gegensatz zu den Verdopplungsresonatoren sollen jetzt aber die drei fundamentalen

Strahlen gleichzeitig resonant überhört werden und sich dabei im Fokus überlagern. Dazu wurde in unserer Gruppe ein neuer Resonator entwickelt [Web09]. Im fokussierten Arm des Resonators, in dem auch die Lyman- α Erzeugung stattfindet, laufen die drei fundamentalen Strahlen kollinear. Anschließend werden die Strahlen durch ein Prisma getrennt und laufen in drei verschiedenen kollimierten Armen. Das ermöglicht, getrennt in die Resonatoren einzukoppeln und sie unabhängig voneinander zu stabilisieren. Am Ende des kollimierten Arms werden die drei Strahlen in einem zweiten Prisma wieder überlagert und laufen erneut kollinear durch den fokussierten Arm. In diesem Resonator konnte bereits die grüne Strahlung um einen Faktor 100, die blaue Strahlung um einen Faktor 70 und die UV-Strahlung um einen Faktor 40 überhört werden. Für diesen Resonator wird eine kleinere Zelle im Vergleich zur derzeit verwendeten benötigt. Hierbei erweist es sich wieder als Vorteil, dass mit kleineren UV-Verstimmungen kleinere Phasenangepasstemperaturen benötigt werden. Kleinere Temperaturen vereinfachen den Aufbau der Zelle, da Zellenfenster leichter vor dem Beschlagen mit Quecksilber geschützt werden können. Diese Zelle befindet sich aktuell in der Entwicklung. Um die Lyman- α Strahlung aus dem Resonator auszukoppeln wird das Endfenster der Zelle verwendet. Dieses steht im Brewster-Winkel für die fundamentalen Strahlen und reflektiert dadurch 4,5 % Prozent der Lyman- α Strahlung zur Seite. Es geht daher ein Teil der Überhöhung verloren. Sollte sich das Resonator-konzept als erfolgreich erweisen, kann zur Auskopplung auch ein MgF_2 Prisma verwendet werden. Dieses Prisma würde dann zum Einen die Aufspaltung der Fundamentalstrahlen übernehmen. Zum Anderen wird die Lyman- α Strahlung wegen des größeren Brechungsindizes für diese Wellenlänge an der Innenseite des Prismas total reflektiert und tritt zur anderen Seite aus dem Prisma heraus. Dadurch könnte ein größerer Anteil der Strahlung ausgekoppelt werden.

Eine weitere Möglichkeit die Lyman- α Erzeugung zu verbessern, ist die Verwendung einer Hohl-faser. Hohl-fasern wurden bereits für das Vier-Wellen-Mischen eingesetzt [NSBF⁺01]. In einer solchen Hohl-faser werden die Strahlen durch streifenden Einfall geführt. So können auch UV- und VUV-Strahlen über einen längeren Bereich mit kleinen Strahldurchmessern geführt werden. Mit einer Hohl-faser sollte sich der Bereich, in dem Lyman- α Strahlung erzeugt wird, von 1-2mm auf mehr als 10 cm verlängern lassen. Zur Phasenangepasstung wird wegen der ebenen Wellenfronten der Strahlungsmoden in der Hohl-faser eine Phasenfehlanpassung von $\Delta k = 0$ benötigt. Zur Dispersion trägt neben der Dispersion des Quecksilberdampfs in der Hohl-faser auch die Dispersion der Hohl-fasermode selbst bei, die von der Wellenlänge der Strahlung und dem Durchmesser der Faser abhängt [MS63]. Es könnte sich als vorteilhaft erweisen, dass es mit dem neuen UV-Lasersystem neben der Temperatur des Quecksilberdampfs und dem Durchmesser der Faser mit der UV-Verstimmung zur 6^3P Resonanz einen dritten Freiheitsgrad zur Einstellung der Phasenangepasstung gibt.

Die Idee der Hohl-faser lässt sich sehr gut mit der Verwendung von isoto-penreinem Quecksilber kombinieren. Durch die Verwendung von isoto-penreinem Quecksilber lässt sich die Lyman- α Erzeugung um einen Faktor 10 erhöhen [Pah02]. Isoto-penreines

Quecksilber ist aber mit 25 \$/mg zu teuer, um in der bisherigen Quecksilberzelle eingesetzt zu werden, da hier etwa 200 g Quecksilber benötigt werden. Das Dampfvolumen in einer Hohlzylinder ist sehr klein, die benötigte Menge Quecksilber damit wesentlich geringer. Deshalb könnte es mit einer solchen Hohlzylinder rentabel werden isotopenreines Quecksilber zu verwenden.

Sowohl der Resonator als auch die Hohlzylinder lassen sich gut mit einer weiteren Idee kombinieren. Dabei geht es darum elektromagnetisch induzierter Transparenz (EIT) zur Verbesserung der Lyman- α Erzeugung zu nutzen [Har97]. Dazu müsste der 6^3P - 7^1S Übergang mit der blauen Strahlung so stark getrieben werden, dass das 6^3P Niveau durch den AC-Stark Effekt um mehr als die Linienbreite aufgespalten wird. Dann könnte der UV-Laser direkt auf Resonanz eingestrahlt werden, ohne absorbiert zu werden. Die nichtlineare Suszeptibilität bleibt dabei erhöht, da hier die aufgespaltenen Niveaus konstruktiv interferieren [HFI90]. Mit dem Drei-Farben-Resonator sind höhere Intensitäten der blauen Strahlung möglich, was die Aufspaltung vergrößert. In der Hohlzylinder befinden sich die Quecksilberatome dauerhaft im Bereich des Strahlungsfeldes, was die Interaktionszeit erhöht. In einer früheren Arbeit wurde die zu kurze Interaktionszeit der Atome mit der Strahlung im Fokus als Grund dafür angeführt, warum kein EIT in Quecksilber beobachtet werden konnte [Hen05].

Als letzte Möglichkeit die Lyman- α Leistung zu erhöhen sei noch die Quasi-Phasenanpassung erwähnt. Bei der Quasi-Phasenanpassung wird eine große Phasenfehlpassung über einen Bereich erlaubt. Wenn nach einer bestimmten Strecke destruktive Interferenz einsetzen würde, wird das Vorzeichen der nichtlinearen Wechselwirkung gedreht oder die Wechselwirkung ganz ausgesetzt, bis die Strahlungsfelder wieder in Phase sind [ABDP62]. Für die Lyman- α Erzeugung könnte man das folgendermaßen nutzen: Die Dichte des Quecksilberdampfes wird um ein Vielfaches zu hoch für die normale Phasenanpassung gewählt. Nach einer kurzen Strecke ist dann die erzeugte Lyman- α Strahlung außer Phase mit der erzeugenden nichtlinearen Polarisation und würde destruktiv interferieren. Deshalb wird die Lyman- α Erzeugung für eine Strecke ausgesetzt. Die nichtlineare Polarisation und die Lyman- α Strahlung kommen wieder in Phase, die Lyman- α Erzeugung wird wieder angeschaltet und so weiter. Das Aus- und Anschalten der Lyman- α Erzeugung könnte zum Beispiel durch ein Magnetfeld geschehen, das wechselweise angelegt und nicht angelegt wird und die Zwei-Photonen-Resonanz so weit verschiebt, dass kein Lyman- α mehr erzeugt wird. Insgesamt würde man dadurch die Strecke, auf der die Lyman- α Erzeugung stattfindet, halbieren, aber die quadratisch eingehende Dichte vervielfachen. Auf einem Umweg entsteht so doch die Möglichkeit die erhöhte nichtlineare Suszeptibilität durch kleine UV-Verstimmungen zu nutzen ohne niedrigere Dichten des Quecksilberdampfes in Kauf nehmen zu müssen.

Insgesamt ist zu erkennen, dass es eine Vielzahl an innovativen Möglichkeiten zur Erhöhung der Lyman- α Erzeugung gibt. Viele dieser Ideen profitieren direkt von der Möglichkeit, mit dem neuen Lasersystem die 6^3P Resonanz nutzen zu können oder sind erst durch die Erkenntnisse dieser Arbeit entstanden.

Anhang 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 nach Gleichung 2.38 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 $\chi^{(3)}$ nach Gleichung 2.21 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 2.22 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] | $f_{6^1S-n^2S+1P}$ | $f_{7^1S-n^2S+1P}$ | 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 Zwei-Photonen-Resonanz nach Gleichung 2.26 wird die Häufigkeit der Quecksilber-Isotope und die Isotopieaufspaltung des 6^1S - 7^1S Zwei-Photonen-Übergangs 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 2.22 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. Am Beispiel der $F = 1/2$ Komponente des ^{199}Hg Isotops ergibt sich $G(^{199}\text{Hg}) = \frac{2}{2+4} = \frac{1}{3}$. In der Berechnung der linearen Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ nach Gleichung 2.38 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 | $1,01325 \times 10^3$ |

Anhang B

Leistungen der Lasersysteme

Bei einigen der in Kapitel 4 gezeigten Messungen wurden die Leistungen der fundamentalen Lasersysteme nicht angegeben, so zum Beispiel bei den Messungen zur Phasenangepasstemperatur oder den Messungen der Zwei-Photonen-Resonanz, weil die Leistungen nicht zum Verständnis benötigt werden. Der Vollständigkeit halber werden die Leistungen dieser Messungen in Tabelle B.1 zusammengefasst. Die Messung zu Abbildung 4.7 wurde vor der Korrektur der Foki der Fundamentalstrahlen aufgenommen. Bei einigen Messungen, vor allem alten Messungen, sind die Leistungen wegen der noch ungenügenden Datenaufnahme nur ungenau bekannt. Solche Werte werden mit einem Stern (*) markiert. Wird bei einer Messung auch die IR-Strahlung des $7^1S - 6^1P$ Übergangs aus der Zwei-Photonen-Resonanz aufgenommen, muss beachtet werden, dass dazu der UV-Strahl periodisch mit etwa 250 Hz unterbrochen wird. Die mit einem Thermokopf gemessene UV-Leistung vor der Zelle ist daher nur halb so groß. Da die Lyman- α Detektion die Zahl der detektierten Photonen über eine Sekunde aufaddiert, ist die gemittelte, also die gemessene, halbe UV-Leistung ausschlaggebend. Die Spannung der Photodiode wird mit der Lock-In Technik ausgelesen und misst daher die Amplitude der Spannung bei der vollen Leistung. Deshalb wurde in Kapitel 4 wie auch in der Tabelle B.1 bei Lyman- α Messungen mit Unterbrecher die gemessene halbe Leistung angegeben. Bei Messungen der IR-Strahlung wird die gemessene UV-Leistung verdoppelt, um auf die relevante volle Leistung zu kommen. In Abbildung 4.7 sind beide Kurven gezeigt, daher werden beide Leistungen angegeben. Wurden die Kurven der IR-Strahlung und die Lyman- α Kurve gleichzeitig gemessen, die Kurve der IR-Strahlung aber später gezeigt, wird die Abbinungsnummer der IR-Strahlung in Klammern angegeben.

Tabelle B.1: Leistungen der fundamentalen Lasersysteme bei den gezeigten Messungen. Für die Abbildungen, für die keine Leistungen der fundamentalen Lasersysteme im Text direkt angegeben wurden, werden die Werte hier zusammengefasst.

| Abbildung | UV-Leistung [mW] | blaue Leistung [mW] | grüne Leistung [mW] |
|-------------|------------------|---------------------|---------------------|
| 4.1* | 82 | 230 | 215 |
| 4.2 rot* | 82 | 230 | 215 |
| 4.2 blau* | 200 | 263 | 180 |
| 4.3 rot* | 82 | 230 | 215 |
| 4.3 grün* | 85 | 235 | 205 |
| 4.3 blau* | 50 | 190 | 205 |
| 4.7* | 140 (280) | 286 | 270 |
| 4.10 (4.20) | 137 (274) | 330 | 212 |
| 4.11 (4.20) | 50 (100) | 270 | 228 |
| 4.12 | 40 | 205 | 210 |
| 4.13 (4.22) | 98 (196) | 290 | 194 |
| 4.23 | 142 | 222 | / |

Anhang C

Umrechnung von CGS in SI Einheiten

Das CGS (**C**entimeter **G**ramm **S**ekunde) Einheitensystem - genauer das Gaußsche CGS Einheitensystem - ist ein in der Atomphysik, vor allem in der Vergangenheit, häufig verwendetes Einheitensystem. Viele wichtige Formeln und Zusammenhänge sind in den entsprechenden Publikationen in CGS Einheiten angegeben. Es ist daher oft notwendig, diese Formeln in das zeitgemäße SI (**S**ystème **I**nternational d'unités) Einheitensystem umzurechnen. Dazu wird im Folgenden eine kurze praktische Anleitung gegeben.

Ausgangspunkt des CGS Einheitensystems ist die Coulomb-Kraft, die benutzt wird, um das statcoulomb die CGS Einheit der Ladung zu definieren. In CGS Einheiten lautet sie betragsmäßig:

$$F = \frac{\tilde{q}^2}{r^2} \quad (\text{CGS}) \quad (\text{C.1})$$

In SI Einheiten hat das Coulomb-Gesetz die bekannte Form:

$$F = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0 r^2} \quad (\text{SI}) \quad (\text{C.2})$$

Wie man sich leicht klar macht, müssen mechanische Größen in einer Formel nicht umgerechnet werden und bleiben unverändert. Umgerechnet werden müssen nur elektrische und magnetische Größen. Die Umrechnung des Coulomb-Gesetzes gelingt dann formal durch die Ersetzung:

$$(\text{CGS}) \quad \tilde{q} \Rightarrow \frac{q}{\sqrt{4\pi\epsilon_0}} \quad (\text{SI}) \quad (\text{C.3})$$

Es sei hier darauf hingewiesen, dass mit der obigen Beziehung keineswegs eine Ladung von statcoulomb in Coulomb umgerechnet werden kann. Es ist lediglich eine Ersetzung, mit der formal Gleichungen, die die Ladung enthalten, aus CGS in SI Einheiten umgerechnet werden können. Aus den Formeln für das elektrische Feld und der Polarisation (über den Umweg der elektrischen Flussdichte) erhält man ebensolche Ersetzungen:

$$(CGS) \quad \tilde{E} \Rightarrow \sqrt{4\pi\epsilon_0} E \quad (SI) \quad (C.4)$$

$$(CGS) \quad \tilde{P} \Rightarrow \frac{1}{\sqrt{4\pi\epsilon_0}} P \quad (SI) \quad (C.5)$$

Eine Tabelle solcher Ersetzungen und eine tiefer gehende Erklärung der dahinter stehenden Physik findet sich zum Beispiel in [Jac83]. Dass die Einheitenumrechnung keineswegs trivial ist, kann man sich vielleicht daran klar machen, dass man zwar sagen kann, dass die Ladung von einem Coulomb 2997924580 *statcoulomb* entspricht, die Beziehung $1C = 2997924580 \textit{statC}$ aber falsch ist, da auf beiden Seiten unterschiedliche Einheiten stehen, die nicht durch einen einheitenlosen Faktor ineinander umgerechnet werden können.

Es soll nun zum Beispiel die Gleichung für die konvertierte Lyman- α Leistung aus der in der Literatur gegebenen Form in CGS Einheiten [Rei84] auf die Form in Gleichung 2.8 in SI Einheiten gebracht werden. Sie enthält nur mechanische Größen und die Suszeptibilität dritter Ordnung, für die sich in [Jac83] keine Ersetzung findet. Diese Ersetzung lässt sich aus den definierenden Zusammenhängen der Suszeptibilität dritter Ordnung in dem jeweiligen Einheitensystem gewinnen, wobei alle anderen Beiträge zur Polarisation gleich Null gesetzt werden:

$$\tilde{P} = \tilde{\chi}^{(3)} \tilde{E}^3 \quad (CGS) \quad (C.6)$$

$$P = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 \quad (SI) \quad (C.7)$$

Setzt man nun die bekannten Ersetzungen für das elektrische Feld und die Polarisation in die Gleichung in CGS Einheiten ein, lässt sich die gewünschte Ersetzung für die Suszeptibilität dritter Ordnung ableiten.

$$(CGS) \quad \tilde{\chi}^{(3)} \Rightarrow \frac{1}{(4\pi)^2 \epsilon_0} \chi^{(3)} \quad (SI) \quad (C.8)$$

Mit dieser Ersetzung ist dann die Konversion der Formel für die konvertierte Lyman- α Leistung möglich. Eine weitere Formel, die zur Berechnung der Lyman- α Leistung benötigt wird, ist der Zusammenhang zur konkreten Berechnung der Suszeptibilität dritter Ordnung. Er wurde in CGS Einheiten aus [SA87] entnommen und findet sich in dieser Arbeit in SI Einheiten in Gleichung 2.21. Die Konversion ist nach dem obigen Schema mit den gegebenen Ersetzungen direkt möglich, da nur die Ladung und Suszeptibilität dritter Ordnung als elektrische Größen vorkommen.

Anhang D

Mathematica Programme

Die theoretischen Berechnungen in Kapitel 2 und die Vergleiche von Theorie und Experiment in Kapitel 4 wurde mit Hilfe von Mathematica Programmen durchgeführt. Im Folgenden werden diese Mathematica Programme aufgeführt. Damit können die Berechnungen dieser Arbeit nachvollzogen werden. Die Programme sind voll lauffähig und können direkt in Mathematica kopiert und ausgeführt werden.

Das erste Programm dient zum Berechnen der Lyman- α Leistung. Mit dem Programm lassen sich einfach unterschiedliche Situationen, wie zum Beispiel unterschiedliche UV-Verstimmungen vergleichen. Das Programm ist so gedacht, dass oben einfach die Frequenzen der Laser eingegeben werden und unten erhält man die Lyman- α Leistung. Die Phasenangepasstemperatur und die Dichte wird automatisch mit berechnet, unter Verwendung der einfacheren Berechnung für gleiche b -Parameter. Wenn zum Beispiel im Ausblick gesagt wird, dass sich unter Ausnutzung der 12^1P Resonanz 10^4 mal mehr VUV-Strahlung als Lyman- α Strahlung erzeugen lässt, wurde mit diesem Programm gerechnet. Der Vergleich von Theorie und Experiment zum Einfluss der UV-Verstimmung in Abbildung 4.16 wurde ebenfalls mit diesem Programm berechnet. Die Absorption muss dafür in den fundamentalen Leistungen berücksichtigt werden. Das Programm enthält die Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität wie sie in Abbildung 2.3 verwendet wurde. Dazu muss lediglich `omega1` auskommentiert werden, da die Frequenz des UV-Lasers die Variable ist über die aufgetragen wird. Die Isotopieverschiebung und Hyperfeinstrukturaufspaltung des 6^3P Niveaus und der Einfluss der höheren Niveaus kann berücksichtigt werden oder nicht. Außerdem kann Form der Zwei-Photonen-Resonanz ohne Einbeziehung des Einflusses der 6^3P Resonanz wie in Abbildung 2.4 oder Abbildung 4.11 berechnet werden. Dazu muss die feste Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz auskommentiert werden. Die absolute Leistung wird, wie in Kapitel 4 erklärt, nicht korrekt berechnet. Das Programm lässt sich aber sehr gut zum Vergleich von Leistungen und Phasenangepasstemperaturen verwenden.

Mit dem zweiten Programm lässt sich die Phasenangepasstung nach Gleichung 2.20 genauer berechnen. Es können unterschiedliche b -Parameter und Fokusorte berücksichtigt werden. Die Absorption der beteiligten Strahlen und die Linienbreite des 6^3P

Niveaus werden ebenfalls mit eingerechnet. Das Programm benötigt die allgemeinen Konstanten, die experimentellen Größen und die Quecksilber Konstanten aus dem ersten Programm. Sie können an den Anfang des Programms kopiert werden, oder man lässt das erste Programm einfach einmal laufen. Mit diesem Programm wurde die Phasen Anpassungskurve über der Temperatur in Abbildung 2.6 und Abbildung 4.1 und die Phasen Anpassungstemperaturen für verschiedenen UV-Verstimmungen in Abbildung 4.4 berechnet. Kommentiert man die Frequenz der UV-Strahlung aus, lässt sich die Phasenfehl Anpassung pro Atomdichte bei verschiedenen UV-Verstimmungen wie in Abbildung 2.5 berechnen.

Mit dem dritten Mathematica Programm wird die Form der Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α Signal unter Einbeziehung der aufgespalteten 6^3P Resonanz nach Gleichung 2.33 berechnet. Dieses Programm wurde für die Theorielinien in Abbildung 2.4 und Abbildung 4.11 genutzt.


```
(*Gewichtungsfaktoren mal die Häufigkeit für die 6^1S-6^3P Resonanz der Isotope,
um in der Phasen Anpassung 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, 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 ω [Hz],
die ersten 9 Niveaus sind die aufgespaltenen 6^3P Niveaus*)
levels = {7.423870537626774`*^15 + Δ6S6P198, 7.423870537626774`*^15 + Δ6S6P199F1,
7.423870537626774`*^15 + Δ6S6P199F3, 7.423870537626774`*^15 + Δ6S6P200,
7.423870537626774`*^15 + Δ6S6P201F1, 7.423870537626774`*^15 + Δ6S6P201F3,
7.423870537626774`*^15 + Δ6S6P201F5, 7.423870537626774`*^15 + Δ6S6P202,
7.423870537626774`*^15 + Δ6S6P204, 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*)

chil2Hg198 = Sum[(dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega1)
+ Faktor1 * dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega2)),
{i, 1, 1}] + Faktor1 * (Sum[(dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega1)
+ dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega2)),
{i, 10, 26}]);

chil2Hg199 = Sum[(G6SnP[[i]] * dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega1)
+ Faktor1 * G6SnP[[i]] * dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega2)),
{i, 2, 3}] + Faktor1 * (Sum[(dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega1)
+ dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega2)),
{i, 10, 26}]);

chil2Hg200 = Sum[(dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega1)
+ Faktor1 * dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega2)),
{i, 4, 4}] + Faktor1 * (Sum[(dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega1)
+ dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega2)),
{i, 10, 26}]);

chil2Hg201 = Sum[(G6SnP[[i]] * dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega1)
```

```

+ Faktor1 * G6SnP[[i]] * dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega2)),
{i, 5, 7}] + Faktor1 * (Sum[(dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega1)
+ dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega2)),
{i, 10, 26}]);
chi12Hg202 = Sum[(dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega1)
+ Faktor1 * dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega2)),
{i, 8, 8}] + Faktor1 * (Sum[(dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega1)
+ dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega2)),
{i, 10, 26}]);
chi12Hg204 = Sum[(dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega1)
+ Faktor1 * dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega2)),
{i, 9, 9}] + Faktor1 * (Sum[(dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega1)
+ dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega2)),
{i, 10, 26}]);

chi34 = Sum[(dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega4)
+ dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] +
(omega4 - omega7S))), {i, 8, 8}] +
Sum[(dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] - omega4)
+ dipol6SnP[[i]] * dipol7SnP[[i]] / (levels[[i]] +
(omega4 - omega7S))), {i, 10, 26}];

(* Zweiphotonenresonanz*)

vw = Sqrt[2 * k * (273.15 + Temp) / m]; (*wahrscheinlichste Geschwindigkeit,
hier korrekte Phasen Anpassungstemperatur eingeben*)
Delta omega = 2 * Sqrt[Log[2]] * omega7S * vw / c; (*Dopplerbreite*)
omega = Delta omega / (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 * Gamma7S / 2) / omega;
x202[y_] := (y + I * Gamma7S / 2) / omega;
x201[y_] := (y - 2 Pi * 3.045 * 10^9 + I * Gamma7S / 2) / omega;
x204[y_] := (y + 2 Pi * 4.297 * 10^9 + I * Gamma7S / 2) / omega;
x199[y_] := (y - 2 Pi * 7.791 * 10^9 + I * Gamma7S / 2) / omega;
x198[y_] := (y - 2 Pi * 8.314 * 10^9 + I * Gamma7S / 2) / omega;

(*in etwa das Maximum der Zwei-Photonen-Resonanz*)
y = -omega7S * vw / 1 000 000 000;

(* Gesamt Suszeptibilität 3. Ordnung*)

chi = 1 / eps0 / (6 * hquer^3) (chi34)
(0.09968 S[x198[y]] * chi12Hg198 + 0.16873 S[x199[y]] chi12Hg199 +
0.23096 S[x200[y]] chi12Hg200 + 0.13181 S[x201[y]] chi12Hg201 +
0.29863 S[x202[y]] chi12Hg202 + 0.06865 S[x204[y]] chi12Hg204);

```

```

(* Phasen Anpassung*)

Brechlevel = Sum[H6SnP[[i]] * osc6SnP[[i]] / (levels[[i]] * levels[[i]] - w*w),
{i, 1, 26}];
faktor = e^2 / (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"
Dichte = dk / (Deltakp[omega4] - Deltakp[omega1])

(* 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 * 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 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));

(*benötigte Phasen Anpassungstemperatur bestimmen*)
FindRoot[NHg[T] == Dichte, {T, 200}]

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

(* Lyman-alpha Leistung*)
"Leistung"
I4 = 9 / 4 / (c^6 * Pi^2 * eps0^2) * Dichte^2 *
omega1 * omega2 * omega3 * omega4 * Abs[chi]^2 * I1 * I2 * I3 * Fsqr

```

Programm 2: Phasenanpassung

```

Clear[ $\omega$ , T, vw, vz]

(* Kreisfrequenz erster Laser ;
die Zahl in Klammer gibt die Verstimmung  $\nu$  in [GHz] zum  $6^3P$  Niveau*)
omega1 = 7.423870537626774` * 1015 - 2 Pi * (400) * 109;
(* Kreisfrequenz zweiter Laser *)
omega2 = omega7S - omega1;

(*Wellenvektoren ausrechnen*)
k1 = omega1 / c;
k2 = omega2 / c;
k3 = omega3 / c;
k4 = omega4 / c;

(* hom. Linienbreite in Winkelfrequenz = (nat. Linienbreite + Druckverbreiterung) *)
 $\gamma_{6P} = 2 \pi 1.25 * 10^9$ ;

(* wahrscheinlichste Geschwindigkeit eines Atoms *)
vw[T_] := Sqrt[2 * k * (T + 273.15) / m];
Tmean =
  220;

(* Konfokalparameter der fundamentalen Strahlen in m *)
b1 = 0.6 * 10-3;
b2 = 0.78 * 10-3;
b3 = 1.31 * 10-3;

(* Länge der beheizten Quecksilberdampfzelle in m *)
L = 16 * 10-3;

(* Absorptionskoeffizienten der fundamentalen Strahlen und des erzeugten Strahls *)
 $\alpha_1 = 0$ 
 $\alpha_2 = 0$ ;
 $\alpha_3 = 0$ ;
 $\alpha_4 = 0$ ;

(*eindimensionale Maxwell-Boltzmann-Verteilung*)
vverteilung = Exp[-(vz / vw[Tmean])2] / (Sqrt[ $\pi$ ] * vw[Tmean]);

(* es wird ein homogener Dämpfungsterm und die Dopplerbreite mit eingerechnet *)
Fktn1 = e2 / (2 * eps0 * me) * vverteilung *
  Re[Sum[osc6SnP[[i]] * H6SnP[[i]] / (levels[[i]]2 - ( $\omega$  (1 + vz / c) - I  $\gamma_{6P}$  / 2)2),
{i, 1, 26}]];

(* Brech = (n' - 1) / N in m-3 *)
Brech = Evaluate[NIntegrate[Fktn1, {vz, -80 000, 0, 80 000}, MaxRecursion -> 10]];

(* Wellenvektor pro Atomdichte allgemein *)
CkNHg = Brech *  $\omega$  / c;

(* Wellenvektor pro Atomdichte für die unterschiedlichen Wellenlängen *)

```

```

ω = omega1; (* Berechnung der Winkelfrequenz des UV-Lasers *)
Ck1NHg = CkNHg
ω = omega2;
Ck2NHg = CkNHg
ω = omega3;
Ck3NHg = CkNHg
ω = omega4;
Ck4NHg = CkNHg

(* Phasenfehlانpassung pro Atomdichte für Hg *)
CΔkNHg = Ck4NHg - (Ck1NHg + Ck2NHg + Ck3NHg)

(* Hg-Dichte in cm^-3 in Abhängigkeit von der Temperatur in °C *)
NHg[T_] := pvonT[T] * 100 / (k * (T + 273.15))

ΔkHg[T_] := NHg[T] * CΔkNHg

(* Δα bei der Dichte NHg_0 *)
Δα = α4 - (α1 + α2 + α3)

(* Ort der Beobachtungsebene in z-Richtung *)
zprime = L / 2 + 100 L;

(* Verschiebung der Foki der fundamentalen Strahlen gegenüber der Zellenmitte *)
z01 = 0;
z02 = 0;
z03 = 0;

(* Parameter aus dem Kapitel Integralgleichungsformalismus *)
e1 = 2 / b1 (z - z01);
e2 = 2 / b2 (z - z02);
e3 = 2 / b3 (z - z03);

f = k1 / b1 (1 + I e2) (1 + I e3) + k2 / b2 (1 + I e1) (1 + I e3) + k3 / b3 (1 + I e1) (1 + I e2);

g = (1 + I e1) (1 + I e2) (1 + I e3);

a = g - I 2 (z - zprime) / k4 * f;

q = f / a;

(*Phasenانpassung berechnen, Werte in Tabelle eintragen. Bereich
über den gerechnet wird muss eventuell angepasst werden*)
Monitor[Gtable = Table[{T, (b1 * ΔkHg[T]) ^ 2 * 16 k4 *
(1 / b1 * 1 / b2 * 1 / b3) NIntegrate[rprime Abs[Exp[-α4 / 2 (L)] (NIntegrate[
1 / a * Exp[-rprime ^ 2 q] Exp[-I (ΔkHg[T] ((z + L / 2)) + I Δα / 2 ((z + L / 2)))]],
{z, -L / 2, L / 2}, MaxRecursion -> 14, AccuracyGoal -> 20 ])] ^ 2, {rprime, 0, ∞}],
{T, 140, 220, 5}], ProgressIndicator[T, {140, 220}]];

(*Ergebnisse ausgeben*)
Gfunction = Interpolation[Gtable]
plot1 = ListPlot[Gtable]
plot1 = Plot[Gfunction[T], {T, 140, 220}]

FindMaximum[Gfunction[T], {T, 180}]

```

Programm 3: Zwei-Photonen-Resonanz

```

(*Allgemeine Konstanten*)
c = 2.99792458*10^8; (* Lichtgeschwindigkeit *)
m = 202*1.66*10^(-27); (* Masse Quecksilber *)
k = 1.38*10^(-23); (* Boltzmannkonstante *)

(*experimentelle Parameter*)
Temp = 273 + 136; (*Temperatur der Zelle, meist Phasenanpassungstemperatur*)
vw = Sqrt[2*k*Temp/m]; (*wahrscheinlichste Geschwindigkeit*)
ΔUVHg202 = 50; (*eingestellte Verstimmung des UV Lasers*)
Γhom7S = 1.25; (*homogene Linienbreite des 71S Niveau*)
Γhom63P = 1.25; (*homogene Linienbreite des 63P Niveau*)

(*Quecksilberkonstanten*)
omega7S = 1916520.510; (* Übergangsfrequenz ν in GHz *)
omega63P = 1181545.693; (* "" *)

(* Isotopie- und Hyperfeinstrukturverschiebung des 63P Niveaus *)
ΔUVHg200 = ΔUVHg202 + 5.3; (*Verstimmung in in GHz*)
ΔUVHg204 = ΔUVHg202 - 5.21; (* "" *)
ΔUVHg198 = ΔUVHg202 + 10.10; (* "" *)
ΔUVHg201a = ΔUVHg202 + 16.974; (* "" *)
ΔUVHg201b = ΔUVHg202 + 9.426; (* "" *)
ΔUVHg201c = ΔUVHg202 - 4.557; (* "" *)
ΔUVHg199a = ΔUVHg202 - 5.307; (* "" *)
ΔUVHg199b = ΔUVHg202 + 16.829; (* "" *)

(* Isotopieverschiebung des 71S Niveaus *)
Δ7SHg200 = 4.362; (*Verstimmung in in GHz*)
Δ7SHg204 = -4.297; (* "" *)
Δ7SHg198 = 8.314; (* "" *)
Δ7SHg201 = 3.045; (* "" *)
Δ7SHg199 = 7.791; (* "" *)

(* Berechnung der Beiträge der einzelnen Isotope zur Linienform der Zwei-
Photonen-Resonanz im Lyman-a Signal nach Gleichung 2.33;
Matrixelemente werden nicht berücksichtigt, da für alle gleich*)

S204[y_] := 1 / (Sqrt[Pi] * vw) *
  NIntegrate[Exp[-(v/vw)^2] * 1 / (y - Δ7SHg204 + v * (omega7S) / c - I * Γhom7S / 2) *
    1 / (ΔUVHg204 + v * (omega63P) / c - I * Γhom63P / 2), {v, -800, 800}, MaxRecursion → 12];
S202[y_] := 1 / (Sqrt[Pi] * vw) * NIntegrate[Exp[-(v/vw)^2] *
  1 / (y + v * (omega7S) / c - I * Γhom7S / 2) * 1 / (ΔUVHg202 + v * (omega63P) / c - I * Γhom63P / 2),
  {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion → 12];
S201a[y_] := 1 / (Sqrt[Pi] * vw) * NIntegrate[
  Exp[-(v/vw)^2] * 1 / (y - Δ7SHg201 + v * (omega7S) / c - I * Γhom7S / 2) *
  1 / (ΔUVHg201a + v * (omega63P) / c - I * Γhom63P / 2), {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion → 12];
S201b[y_] := 1 / (Sqrt[Pi] * vw) * NIntegrate[Exp[-(v/vw)^2] *
  1 / (y - Δ7SHg201 + v * (omega7S) / c - I * Γhom7S / 2) *
  1 / (ΔUVHg201b + v * (omega63P) / c - I * Γhom63P / 2), {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion → 12];
S201c[y_] := 1 / (Sqrt[Pi] * vw) * NIntegrate[Exp[-(v/vw)^2] *
  1 / (y - Δ7SHg201 + v * (omega7S) / c - I * Γhom7S / 2) *
  1 / (ΔUVHg201c + v * (omega63P) / c - I * Γhom63P / 2), {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion → 12];
S200[y_] := 1 / (Sqrt[Pi] * vw) * NIntegrate[Exp[-(v/vw)^2] *
  1 / (y - Δ7SHg200 + v * (omega7S) / c - I * Γhom7S / 2) *

```

```

1 / (ΔUVHg200 + v * (omega63P) / c - I * Γhom63P / 2), {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion → 12];
S199a[y_] := 1 / (Sqrt[Pi] * vw) * NIntegrate[Exp[-(v / vw)^2] *
1 / (y - Δ7SHg199 + v * (omega7S) / c - I * Γhom7S / 2) *
1 / (ΔUVHg199a + v * (omega63P) / c - I * Γhom63P / 2), {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion → 12];
S199b[y_] := 1 / (Sqrt[Pi] * vw) * NIntegrate[Exp[-(v / vw)^2] *
1 / (y - Δ7SHg199 + v * (omega7S) / c - I * Γhom7S / 2) *
1 / (ΔUVHg199b + v * (omega63P) / c - I * Γhom63P / 2), {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion → 12];
S198[y_] := 1 / (Sqrt[Pi] * vw) * NIntegrate[Exp[-(v / vw)^2] *
1 / (y - Δ7SHg198 + v * (omega7S) / c - I * Γhom7S / 2) *
1 / (ΔUVHg198 + v * (omega63P) / c - I * Γhom63P / 2), {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion → 12];

(*gesamte
Linienform: einzelnen Beiträge mit Häufigkeit und Entartungsfaktor gewichtet*)
Sfinal = 0.06865 * S204[y] + 0.29863 * S202[y] + 0.23096 * S200[y] +
0.09968 S198[y] + 2 / 12 * 0.13181 * S201a[y] + 4 / 12 * 0.13181 * S201b[y] +
6 / 12 * 0.13181 * S201c[y] + 2 / 6 * 0.16873 * S199a[y] + 4 / 6 * 0.16873 * S199b[y];

Sfinalqudr1 = Sfinal * Conjugate[Sfinal];

plot3 = Plot[Sfinalqudr1, {y, 10-7 * c * (-0.4), 10-7 * c * 0.6}]

```


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. Watson, and D. P. van der Werf. Production and detection of cold antihydrogen atoms. *Nature*, 419(6906):456–459, 2002.
- [ABDP62] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan. In-teractions between light waves in a nonlinear dielectric. *Physical Review*, 127(6):1918–1939, 1962.
- [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.
- [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.
- [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):641–648, 1987.
- [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. Moosbur-ger, R. Nellen, W. Oelert, S. Passaggio, A. Pozzo, K. Röhrich, K. Sachs, G. Schepers, T. Sefzick, R. S. Simion, R. Stratmann, F. Stinzling, 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.
- [Bey08] T. Beyer. *Anregung des $6^1S - 7^1S$ Zweiphotonenübergangs in atomarem Quecksilber. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2008.
- [BGK⁺95] U. Brauch, A. Giesen, M. Karszewski, Chr. Stewen, and A. Voss. Multiwatt diode-pumped Yb:YAG thin disk laser continuously tunable between 1018 and 1053 nm. *Optics Letters*, 20(7):713–715, 1995.
- [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] Thomas Beyer, Daniel Kolbe, Martin Scheid, Frank Markert, and Jochen 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.
- [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.
- [BLS⁺97] J. T. Bahns, L. Lynds, W. C. Stwalley, V. Simmons, T. Robinson, and S. Bililign. Airborne-mercury detection by resonant uv laser pumping. *Optics Letters*, 22(10):727–729, 1997.

- [Boy03] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, second edition, 2003.
- [Boy08] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, third edition, 2008.
- [BWS⁺97] B. Beier, D. Woll, M. Scheidt, K. J. Boller, and R. Wallenstein. Second harmonic generation of the output of an AlGaAs diode oscillator amplifier system in critically phase matched LiB₃O₅ and β -BaB₂O₄. *Applied Physics Letters*, 71(3):315–317, 1997.
- [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.
- [CHH03] C. Czeranowsky, E. Heumann, and G. Huber. All-solid-state continuous-wave frequency-doubled Nd:YAG BiBO laser with 2.8-W output power at 473 nm. *Optics Letters*, 28(6):432–434, 2003.
- [Con02] K. Contag. *Modellierung und numerische Auslegung des Yb:YAG Scheibenlasers*. Doktorarbeit, Universität Stuttgart, 2002.
- [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.
- [Deh75] H. G. Dehmelt. Proposed $10^{14}\delta\nu > \nu$ Laser Fluorescence Spectroscopy on Tl⁺ Mono-Ion Oscillator II. *Bulletin of the American Physical Society*, 20:60, 1975.
- [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.

- [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- α Radiation. *Physical Review Letters*, 83(19):3828–3831, 1999.
- [EWH01] K. S. E. Eikema, J. Walz, and T. W. Hänsch. Continuous Coherent Lyman- α Excitation of Atomic Hydrogen. *Physical Review Letters*, 86(25):5679–5682, 2001.
- [FC61] B. D. Fried and S. D. Conte. *The Plasma Dispersion Function: The Hilbert Transform of the Gaussian*. Academic Press, 1961.
- [Gab88] G. Gabrielse. Trapped antihydrogen for spectroscopy and gravitation studies: is it possible? *Hyperfine Interactions*, 44(1-4):349–356, 1988.
- [GBO⁺02a] 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.
- [GBO⁺02b] 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. Driven Production of Cold Antihydrogen and the First Measured Distribution of Antihydrogen States. *Physical Review Letters*, 89(23):233401, 2002.
- [GHV⁺94] A. Giesen, H. Hügel, A. Voss, K. Wittig, U. Brauch, and H. Opower. Scalable concept for diode-pumped high-power solid-state lasers. *Applied Physics B*, 58(5):365–372, 1994.
- [GLS⁺08] G. Gabrielse, P. Larochele, D. Le Sage, B. Levitt, W. S. Kolthammer, R. Mc Connell, P. Richerme, J. Wrubel, A. Speck, M. C. George, D. Grzonka, W. Oelert, T. Sefzick, Z. Zhang, A. Carew, D. Comeau, E. A. Hessels, C. H. Storry, M. Weel, and J. Walz. Antihydrogen Production within a Penning-Ioffe Trap. *Physical Review Letters*, 100(11):113001, 2008.
- [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.

- [GSS⁺04] G. Gabrielse, A. Speck, C. H. Storry, D. Le Sage, N. Guise, D. Grzonka, W. Oelert, G. Schepers, T. Sefzick, H. Pittner, J. Walz, T. W. Hänsch, D. Comeau, and E. A. Hessels. First Measurement of the Velocity of Slow Antihydrogen Atoms. *Physical Review Letters*, 93(7):073401, 2004.
- [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.
- [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 A. Imamoglu. Nonlinear optical processes using electromagnetically induced transparency. *Physical Review Letters*, 64(10):1107–1110, 1990.
- [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.
- [HR00] D. M. Harber and M. V. Romalis. Measurement of the scalar Stark shift of the $6^1S \rightarrow 6^3P_1$ transition in Hg. *Physical Review A*, 63(1):013402, 2000.
- [HW83] R. Hilbig and R. Wallenstein. Resonant Sum and Difference Frequency Mixing in Hg. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 19(12):1759–1770, 1983.
- [HZ93] T. W. Hänsch and C. Zimmermann. Laser spectroscopy of hydrogen and antihydrogen. *Hyperfine Interactions*, 76(3):47–57, 1993.
- [Jac83] J. D. Jackson. *Klassische Elektrodynamik*. de Gruyter, second edition, 1983.
- [KE93] E. Koudoumas and T. Efthimiopoulos. Emission spectrum in a two-photon resonant transition in mercury. *Journal of the Optical Society of America B*, 10(6):982–987, 1993.

- [KE95] E. Koudoumas and T. Efthimiopoulos. The influence of a second resonance on the saturation characteristics of the four-wave sum mixing. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 31(2):365–371, 1995.
- [KL66] H. Kogelnik and T. Li. Laser beams and resonators. *Applied Optics*, 5(10):1550–1567, 1966.
- [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 β -BaB₂O₄. *Optics Letters*, 23(3):195–197, 1998.
- [Lag87] A. Lago. *Generation of coherent tunable radiation in the extreme ultraviolet by nonlinear frequency mixing of pulsed dye laser radiation in rare gases*. Doktorarbeit, Universität Bielefeld, 1987.
- [LHW87] A. Lago, G. Hilber, and R. Wallenstein. Optical-frequency conversion in gaseous media. *Physical Review A*, 36(8):3827–3836, 1987.
- [Mar09] F. Markert. *Eine kontinuierliche Lyman- α -Quelle basierend auf Festkörperlasersystemen*. 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 Ilrath, and D. W. Koopman. Nonlinear generation of Lyman-alpha radiation. *Applied Physics Letters*, 33(4):305–307, 1978.
- [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.
- [Moo71] C. E. Moore. *Atomic Energy Levels As Derived From the Analyses of Optical Spectra Volume III*. NSRDS national standard reference data system, 1971.
- [MS63] A.J. Marcetili and R.A. Schmelzter. Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers. *Bell System Technical Journal*, 43(4):1783–1809, 1963.

- [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.
- [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.
- [NSBF⁺01] A. N. Naumov, D. A. Sidorov-Biryukov, A. B. Fedotov, O. A. Kolevatova, A. M. Zheltikov, P. Marsili, A. Ruffini, and F. Giammanco. Four-wave mixing of picosecond pulses in hollow fibers: Phase matching and the influence of high-order waveguide modes. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 93(2):247–255, 2001.
- [OLWT96] M. Oka, L. Y. Liu, W. Wiechmann, and Y. Taguchi. Progress in all-solid-state deep-ultraviolet coherent light sources. *Proceedings of SPIE*, 2700:302–310, 1996.
- [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.
- [Pah02] A. Pahl. *Erzeugung von kontinuierlicher kohärenter Lyman- α -Strahlung zur 1S-2P-Spektroskopie an Antiwasserstoff*. Doktorarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2002.
- [PK91] E. S. Polzik and H. J. Kimble. Frequency doubling with KNbO₃ in an external cavity. *Optics Letters*, 16(18):1400–1402, 1991.
- [PKPH07] Rigo Peters, Christian Kränkel, Klaus Petermann, and Günter Huber. Broadly tunable high-power Yb:Lu₂O₃ thin disk laser with 80% slope efficiency. *Optics Express*, 15(11):7075–7082, 2007.
- [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.

- [PSG06] T. Pohl, H. R. Sadeghpour, and G. Gabrielse. New Interpretations of Measured Antihydrogen Velocities and Field Ionization Spectra. *Physical Review Letters*, 97(14):143401, 2006.
- [Rei84] J. F. Reintjes. *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases*. Academic Press, 1984.
- [RGJF01] M. V. Romalis, W. C. Griffith, J. P. Jacobs, and E. N. Fortson. New limit on the permanent electric dipole moment of ^199Hg . *Physical Review Letters*, 86(12):2505–2508, 2001.
- [Rup99] T. Rupp. *Frequenzverdoppelter Single-frequency Hochleistungs-Scheibenlaser*. Diplomarbeit, Institut für Strahlwerkzeuge, Universität Stuttgart, 1999.
- [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. *Journal of the Optical Society of America B*, 4(11):1765–1770, 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. *Journal of the Optical Society of America B*, 5(7):1503–1519, 1988.
- [Sch63] W. G. Schweitzer, Jr. 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 253,7nm, der 6^1S-6^3P Linie in Quecksilber*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2006.
- [Sie86] A. E. Siegman. *Lasers*. University Science Books, first edition, 1986.
- [SIM⁺08] Thomas Sudmeyer, Yutaka Imai, Hisashi Masuda, Naoya Eguchi, Masaki Saito, and Shigeo Kubota. Efficient 2nd and 4th harmonic generation of a single-frequency, continuous-wave fiberamplifier. *Optics Express*, 16(3):1546–1551, 2008.
- [SK85] S. M. Skippon and T. A. King. Mercury excimer processes in resonant optically pumped vapour. *Applied Physics B*, 37(4):223–227, 1985.

- [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*, 72(3):285–287, 2001.
- [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. *Physical Review Letters*, 93(26):263401, 2004.
- [SSWF06] Albert Seifert, Mathias Sinther, Thomas Walther, and Edward S. Fry. Narrow-linewidth, multi-watt Yb-doped fiber amplifier at 1014.8 nm. *Applied Optics*, 45(30):7908–7911, 2006.
- [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.
- [TM81] Frank S. Tomkins and Rita Mahon. High-efficiency four-wave sum and difference mixing in Hg vapor. *Optics Letters*, 6(4):179–181, 1981.
- [Wal93] J. T. M. Walraven. Trapping and cooling of (anti)hydrogen. *Hyperfine Interactions*, 76(1):205–220, 1993.
- [Wal07] T. Walther. Prospects of trapping neutral mercury. *Journal of Modern Optics*, 54(16/17):2523 – 2532, 2007.
- [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.

- [WF02] T. Walther and E. S. Fry. Mercury - the rosetta stone of physics? *Journal of Optics B*, 4:376–383, 2002.
- [WGFA92] D. Wright, P. Greve, J. Fleischer, and L. Austin. Laser beam width, divergence and beam propagation factor - an international standardization approach. *Optical and Quantum Electronics*, 24(9):S993–S1000, 1992.
- [WH75] R. Wallenstein and T.W. Hänsch. Powerfull dye laser oscillator-amplifier system for high resolution spectroscopy. *Optics Communications*, 12(3):353–357, 1975.
- [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, 2004.
- [WN69] J. F. Ward and G. H. C. New. Optical third harmonic generation in gases by a focused laser beam. *Physical Review*, 185(1):57–72, 1969.
- [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.
- [YBK⁺71] J. F. Young, G. C. Bjorklund, A. H. Kung, R. B. Miles, and S. E. Harris. Third-harmonic generation in phase-matched Rb vapor. *Physical Review Letters*, 27(23):1551–1553, 1971.
- [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.

Erklärung

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

Mainz, den 30. November 2009

Martin Scheid