

**Eine vakuumultraviolette  
Laserquelle  
zur Rydberganregung  
von Calciumionen**

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

von  
Matthias Stappel  
geboren in Rüsselsheim

Mainz, den 07. Oktober 2015

1. Gutachter:

2. Gutachter:

Tag der mündlichen Prüfung: 14.01.2016





# Zusammenfassung

In dieser Arbeit werden die Ergebnisse zur Rydberganregung von gefangenen Calciumionen vorgestellt. Im Rahmen der Promotion gelang der erstmalige Nachweis einer Anregung eines in einer Paulfalle gefangenen und lasergekühlten Calciumions in einen Rydbergzustand. Dieser Übergang wird durch einen optischen Einphotonenprozess erreicht, der mit einem kohärenten Lichtfeld im vakuumultravioletten Wellenlängenbereich getrieben wird. Auf diese Weise wurden drei Rydbergresonanzen bei Anregungswellenlängen von 122,041913(5) nm, 122,032384(10) nm und 122,04050(5) nm gemessen, die mit den Zuständen 51F, 52F und 64F identifiziert werden konnten.

Des Weiteren werden die Ergebnisse zu Experimenten mit doppelt ionisierten Calciumionen präsentiert. Dabei konnte erstmalig eine Wechselwirkung zwischen gefangenen und lasergekühlten Calciumionen und vakuumultravioletter Strahlung nachgewiesen werden. Unter der Verwendung von Licht bei einer Wellenlänge von 121,3 nm werden  $\text{Ca}^{2+}$ -Ionen erzeugt, die mit den übrigen  $\text{Ca}^+$ -Ionen aufgrund des sympathischen Kühleffekts einen stabilen heterogenen Kristall ausbilden. An solchen Ionenkristallen konnten die Modenstruktur untersucht, strukturelle Phasenübergänge beobachtet und lokale Moden erzeugt werden.

Es werden Weiterentwicklungen der Lasersysteme zur Erzeugung vakuumultravioletter Strahlung bei 122 nm durch Vierwellenmischen in Quecksilberdampf vorgestellt, die für erzielten Ergebnisse essentiell sind. Ein Lasersystem mit einer optischen Leistung von über einem Watt bei einer Wellenlänge von 555 nm wurde aufgebaut. Durch Verwendung eines periodisch gepolten Kristalls zur Frequenzverdopplung ist eine hohe Leistungsstabilität und eine kontinuierliche Frequenzverstimbarkeit des Systems gewährleistet, was Voraussetzung für die Messung der Rydbergresonanzen ist. Darüber hinaus wurde eine Frequenzverdopplung im Zweifachdurchgang durch einen periodisch gepolten Kristall aufgebaut. Damit konnte eine optische Leistung von 12,8 W bei einer Wellenlänge von 545 nm erzielt werden. Die erreichte Konversionseffizienz von 60 % stellt den höchsten Wert für periodisch gepolte Kristalle in dieser Leistungsklasse dar. Dieses Schema kann in Zukunft auf die Frequenzverdopplungen zur Erzeugung der fundamentalen Felder angewendet werden.

Durch eine verbesserte Fokussierung und Ausrichtung der Fundamentalstrahlen in der Quecksilberdampfzelle wurde die Effizienz des Vierwellenmischprozesses erhöht. Es konnte eine optische Leistung der vakuumultravioletten Strahlung von 60  $\mu\text{W}$  erzielt werden, was eine Steigerung um einen Faktor zehn verglichen zu früher erzielten Ergebnissen darstellt.



# Summary

In this thesis measurements of trapped, Rydberg excited calcium ions are presented. This is the first time that an excitation of cold ions into high lying Rydberg states has been demonstrated. This transition is driven by a one-photon excitation with a coherent, continuous-wave electromagnetic field in the vacuum ultraviolet spectral region. Three Rydberg states with excitation wavelengths at 122.041913(5) nm, 122.032384(10) nm and 122.04050(5) nm are observed and can be identified as the 51F, 52F and 64F states, respectively.

Furthermore, studies of mixed ion crystals of  $\text{Ca}^+$  and  $\text{Ca}^{2+}$  ions are presented. The exposure of trapped calcium ions to vacuum ultraviolet light at a wavelength of 121.3 nm leads to photoionization and states the first observed interaction between trapped ions and vacuum ultraviolet radiation. Sympathetic cooling of a doubly charged ion through the remaining calcium ions enables the formation of a stable heterogeneous ion crystal. Vibrational modes, phase transitions in the configuration of these ion crystals and local modes are investigated.

Further development of the fundamental laser systems for the generation of vacuum ultraviolet radiation by four-wave mixing in mercury vapour was essential for the achieved results. A robust laser system at a wavelength of 555 nm has been designed and set up with an output power of more than 1 W. Single-pass second-harmonic generation in a periodically poled crystal assures high power stability and a reliable frequency scanning of the laser system, which is required for a measurement of the Rydberg resonances. Additionally, double-pass second-harmonic generation in a periodically poled crystal with an output power of 12.8 W at a wavelength of 545 nm has been demonstrated. This corresponds to a conversion efficiency of 60 %, which is the highest value achieved for a periodically poled crystal in this regime of optical power. The double-pass scheme might be applied to the frequency doubling stages used for the generation of the fundamental fields.

Improvement of the focussing and alignment of the fundamental beams in the mercury vapour cell lead to a higher efficiency of the four-wave mixing process. Vacuum ultraviolet radiation with an optical power of 60  $\mu\text{W}$  could be generated, which is an improvement by a factor of ten compared to former achievements.





# Vorwort

Bei der vorliegenden Arbeit handelt es sich um eine kumulative Dissertation nach der Promotionsordnung des Fachbereichs 08 Physik, Mathematik und Informatik der Johannes Gutenberg-Universität Mainz vom 2. Dezember 2013 und dem Beschluss des ProHaF vom 12.12.2012. Die vier Publikationen [SSKW13, SKW14, FPS<sup>+</sup>14, FBS<sup>+</sup>15] sind Grundlage dieser Arbeit. Sie fassen die Ergebnisse, die in meiner Promotionszeit erzielt wurden, zusammen.

Die Arbeit ist in drei Teile gegliedert. Kapitel 1 enthält eine Einführung in das Themengebiet, das für die Publikationen relevant ist. Es beginnt mit einer Einleitung, in der die Motivation der Rydberganregung von gefangenen Calciumionen mit ihren potentiellen Anwendungen vorgestellt wird. Des Weiteren wird die Theorie des Vierwellenmischens, die experimentelle Umsetzung und die Durchführung des Experiments behandelt.

In Kapitel 2 werden die genannten Veröffentlichungen zusammengefasst und anschließend ihre Originalversion vollständig abgedruckt. Zur eindeutigen Unterscheidbarkeit zu den übrigen Seiten dieser Arbeit sind die Originaltexte durch eine Einrahmung gekennzeichnet. Für die Literaturverweise werden innerhalb dieser Arbeit die Abkürzungen der Autorennamen und das Erscheinungsjahr der jeweiligen Referenz verwendet, um eine Verwechslung mit den durchnummerierten Referenzen der Publikationen zu vermeiden.

Kapitel 3 fasst die experimentellen Resultate der vier Publikationen zusammen und gibt einen Ausblick in den verschiedenen Bereichen.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einführung</b>	<b>1</b>
1.1. Rydberganregung von gefangenen Calciumionen mit vakuumultraviolet- ter Strahlung . . . . .	6
1.2. Vierwellenmischen in Quecksilber . . . . .	9
1.3. Experimentelle Umsetzung der vakuumultravioletten Laserlichtquelle .	14
1.3.1. Lasersysteme . . . . .	14
1.3.2. Vierwellenmischen in der Quecksilberdampfzelle . . . . .	22
1.3.3. Optische Verbindung zwischen Mischzone und Calciumfalle . . .	22
1.4. Messmethode zur Ionisation von Calciumionen . . . . .	24
1.5. Messmethode zur Rydberganregung von Calciumionen . . . . .	26
1.6. Identifikation von Rydbergzuständen . . . . .	31
<b>2. Publikationen</b>	<b>35</b>
2.1. Publikation 1: Faserverstärkersystem . . . . .	36
2.2. Publikation 2: Frequenzverdopplung im Zweifachdurchgang . . . . .	44
2.3. Publikation 3: Heterogene Calciumkristalle . . . . .	50
2.4. Publikation 4: Rydberganregung von $\text{Ca}^+$ . . . . .	58
<b>3. Zusammenfassung der Ergebnisse</b>	<b>65</b>
3.1. Entwicklung der fundamentalen Lasersysteme und der vakuumultravio- letten Laserquelle . . . . .	65
3.2. Wechselwirkung von vakuumultravioletter Strahlung mit gefangenen Cal- ciumionen . . . . .	69
<b>A. Quecksilberniveaus</b>	<b>75</b>
<b>B. Berechnete Quantendefekte</b>	<b>76</b>



# 1. Einführung

Cirac und Zoller machten 1995 den Vorschlag Ionen, die in einer linearen Falle gefangen sind, als physikalisches System zur Implementierung von Quantengattern und -algorithmen zu verwenden [CZ95]. In einem solchen System ist Information im internen Quantenzustand der einzelnen Ionen gespeichert. Durch Wechselwirkung mit fokussierten Laserstrahlen kann der interne Zustand der einzelnen Ionen manipuliert und ausgelesen werden. Eine Wechselwirkung zwischen den einzelnen gefangenen Ionen, die Voraussetzung für die Realisierung von Mehrionen-Gattern ist, wird durch die kollektive Bewegungsmode des Ionenkristalls erreicht. Im gleichen Jahr gelang in der Gruppe von D. Wineland die experimentelle Umsetzung eines Zweiionen-Gatters mit gefangenen Berylliumionen [MMK<sup>+</sup>95]. Dabei handelte es sich um ein CNOT-Gatter (**controlled not**), das zusammen mit den Einzelionenoperationen einen universellen Satz von Quantengattern bildet. Durch Kombination beider Gatter kann jede beliebige Quantenoperation ausgeführt werden, was die Grundlage für die Realisierung eines Quantencomputers darstellt. In der vergangenen Dekade etablierten sich in Paulfallen gefangene Ionen aufgrund der guten Einzeladressierbarkeit, hohen Kontrollierbarkeit und langen Koheränzzeiten als eine der am häufigsten verwendeten experimentellen Plattform der Quanteninformation [HRB08, BW08].

Im gleichen Zeitraum entwickelte sich die Physik mit gefangenen Neutralatomen zu einer vielversprechenden Methode für die experimentelle Umsetzung von Quanteninformationprozessen und Vielteilchensimulationen [Blo08]. Neutralatome und Ionen als Informationsträger für einen Quantenzustand weisen viele Gemeinsamkeiten auf, wie lange Speicherzeit der Quanteninformation und die Möglichkeit zur Manipulation und Auslese des Zustands durch resonante Laserpulse. Große Unterschiede ergeben sich bei Betrachtung der zustandsabhängigen Wechselwirkungsstärken. Abbildung 1.1 zeigt die Wechselwirkungsstärke von zwei Teilchen als Funktion des Abstands  $R$ , für Ionen, neutrale Rubidiumatome im Grundzustand und Rubidiumatome in hochangeregten Zuständen (Quantenzahl 100 s), sogenannten Rydbergzuständen. Die Wechselwirkungsenergie von zwei geladenen Ionen ist durch das Coulombpotential gegeben, das mit  $1/R$  skaliert. Für Neutralatome im Grundzustand dominiert die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung ( $1/R^3$ -Abhängigkeit) gegenüber der Van-der-Waals-Wechselwirkung ( $1/R^6$ -Abhängigkeit). Für die hier betrachteten Abstände größer als  $1\ \mu\text{m}$  sind beide Wechselwirkungsenergien sehr klein ( $\ll \hbar \times 1\ \text{Hz}$ ). Betrachtet man hochangeregte Neutralatome, wird eine deutlich höhere Wechselwirkungsenergie erreicht, die für kleine Abstände einen Dipol-Dipol- ( $1/R^3$ ) und für größere Abstände einen Van-der-Waals-

Charakter ( $1/R^6$ ) aufweist. Für das in der Abbildung verwendete Beispiel von zwei Rubidiumatomen im 100s-Niveau im Vergleich zu zwei Rubidiumatomen im Grundzustand ergibt sich bei einem Abstand von  $9,5 \mu\text{m}$  ein Verhältnis der Wechselwirkungsenergien von etwa  $10^{12}$ . Durch Anregung dieser hochliegenden Zustände ist es möglich die Wechselwirkung an- und auszuschalten. Diese zustandsabhängige Änderung der Wechselwirkung um etwa 12 Größenordnungen zeichnet Systeme aus Rydbergatomen als einzigartig aus. Besonders deutlich zeigt sich diese zustandsabhängige Wechselwirkung bei dem Phänomen der Rydbergblockade [LFC<sup>+</sup>01, WGE<sup>+</sup>10, IUZ<sup>+</sup>10], bei der ein Neutralatom im Grundzustand mit der ursprünglichen Übergangsfrequenz nicht in einen Rydbergzustand angeregt werden kann, falls es sich innerhalb des Blockaderadius eines zweiten rydbergangeregten Atoms befindet. Das Forschungsgebiet der Rydbergphysik entwickelte sich in den vergangenen Jahren rasant und nimmt inzwischen eine zentrale Rolle im Bereich der Atomphysik ein [Gal05, SWM10, LLA13]. Die Wechselwirkung von zwei Ionen verglichen mit zwei Rydbergatomen ist für die betrachteten Abstände zwar deutlich stärker, lässt sich allerdings nicht ausschalten, was insbesondere einen Nachteil für die Kontrollierbarkeit von Mehrionensystemen darstellt.

Die Eigenschaften von gefangenen Ionen, die in Rydbergzuständen angeregt sind, wurde 2008 in [MLLZ08] theoretisch untersucht. Es zeigt sich, dass die Rydberganregung von Ionen nicht eine einfache Übertragung der Eigenschaften von Rydbergatomen auf Ionen zur Folge hat. Ein gefangenes Rydbergion ist als ein zusammengesetztes System aufzufassen, das aus einem Elektron in einem hochangeregten Zustand und einem zweifach positiv geladenen Kern besteht, die sich beide im Feld der Ionenfalle bewegen (siehe Abbildung 1.2). Dadurch entsteht eine Kopplung der externen und elektronischen Freiheitsgrade des Ions, was letztendlich zu zustandsabhängigen Schwingungsfrequenzen in radialer und longitudinaler Richtung führt. Die Ladungsverteilung eines einzelnen Rydbergions kann durch eine Multipolentwicklung in einen Ladungs-, Dipol- und Quadrupolanteil zerlegt werden. Betrachtet man ein System aus mehreren Rydbergionen treten eine Ladungs-Ladungs-Wechselwirkung, eine Dipol-Ladungs-Wechselwirkung, eine Quadrupol-Ladungs-Wechselwirkung und die von Neutralatomen bekannte Dipol-Dipol-Wechselwirkung auf. Die erste Wechselwirkung führt zu den bekannten kollektiven Schwingungsmoden eines Ionenkristalls. Aus der zweiten und dritten Wechselwirkung resultieren zustandsabhängige Schwingungsfrequenzen der Ionenkette bzw. positionsabhängige Energieverschiebungen der Rydbergzustände. Die Dipol-Dipol-Wechselwirkung verschwindet in erster Ordnung, das heißt die Rydbergionen weisen kein permanentes Dipolmoment auf. Erst in zweiter Ordnung erhält man eine Energieverschiebung, die einen Van-der-Waals-Charakter mit einer  $1/R^6$ -Abhängigkeit aufweist, wobei  $R$  der Abstand der Ionen ist.

Um größere Wechselwirkungsenergien zu erzeugen, kann ein Mikrowellenfeld eingestrahlt werden, das eine Mischung von benachbarten Rydbergzuständen mit Nebenquantenzahlen  $l$  und  $l+1$  bewirkt [LL14, MLLZ08]. Dadurch entsteht ein oszillierendes Dipolmoment. Betrachtet man zwei Rydbergionen unter der Einstrahlung eines Mi-

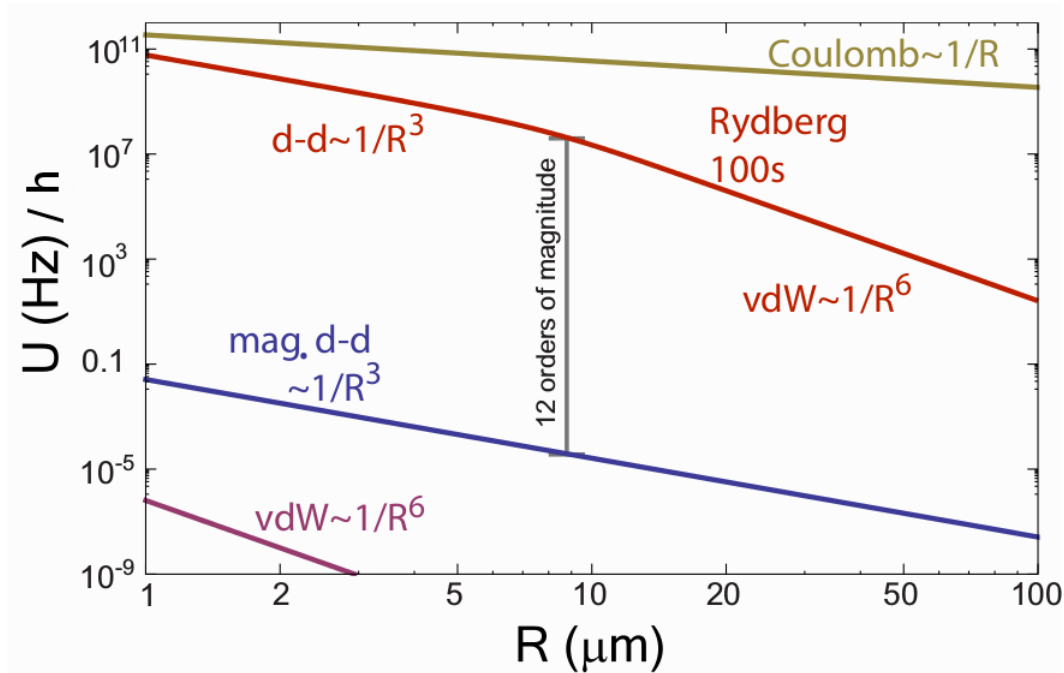


Abbildung 1.1.: **Wechselwirkungsenergie eines Zweikörpersystems** ([SWM10]). Aufgetragen ist die Wechselwirkungsenergie verschiedener Zweiteilchensysteme gegenüber ihrem Abstand zueinander. Die Wechselwirkung zwischen zwei Ionen ist durch die Coulombwechselwirkungsenergie (braun), für zwei rydbergangeregte Rubidiumatome durch die Dipol-Dipol-Wechselwirkung (rot), für zwei Rubidiumatome im Grundzustand durch die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung (blau) und die Van-der-Waals-Wechselwirkung (violett) gegeben. Die Dipol-Dipol-Wechselwirkung von Atomen im Rydbergzustand ist für Abstände kleiner als  $9,5 \mu\text{m}$  um einen Faktor  $10^{12}$  größer als die für Grundzustandsatome dominante magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung.

krowellenkopplungsfelds, so führt die Dipol-Dipol-Wechselwirkung in diesem Fall zu einer deutlich stärkeren Energieverschiebung in der Größenordnung von  $\hbar \times 100 \text{ MHz}$ , die eine einer  $1/R^3$ -Abhängigkeit aufweist.

Aus dieser starken Wechselwirkung resultieren zahlreiche Anwendungen: So kann die starke Wechselwirkung genutzt werden, um, wie im Fall von rydbergangeregten Neutralatomen, eine Rydbergblockade zu erzeugen [LL14]. Dieser Mechanismus kann verwendet werden, um schnelle Zweiionen-Gatter zu realisieren [LL14, MLLZ08]. Die Dauer der Gatteroperation liegt im Bereich von einigen  $10 \mu\text{s}$  und ist damit deutlich schneller als Grundzustandsgatteroperationen, die auf der Kopplung zwischen der externen Ionenbewegung und der internen Anregung der Ionen basiert und im Bereich von mehreren  $100 \mu\text{s}$  liegt [SKHR<sup>+</sup>03]. Da das vorgeschlagene Gatter keine Auflösung der Bewegungsseitenbänder des Ionenkristalls benötigt, ist außerdem eine deutlich bessere

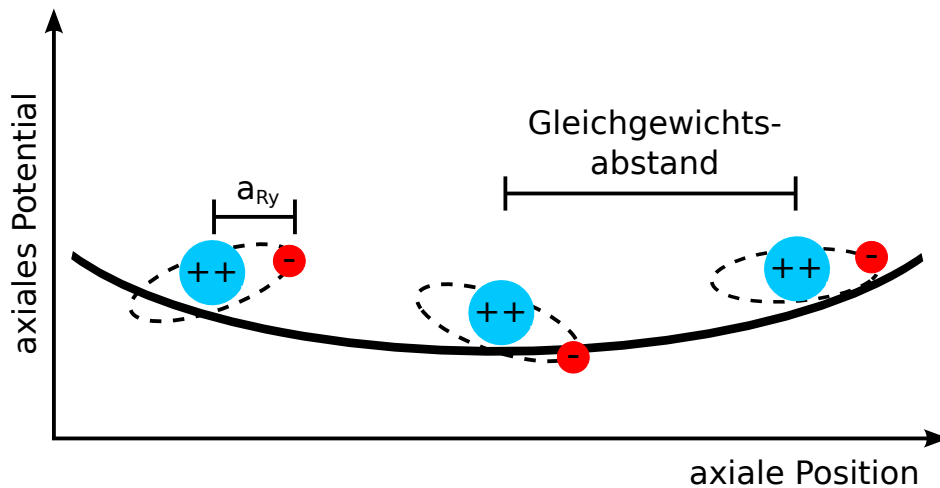


Abbildung 1.2.: **Rydbergionen in einer Paulfalle.** Gezeigt sind drei Rydbergionen im harmonischen Potential einer Paulfalle. Ein gefangenes Rydbergion wird als ein zusammengesetztes System aus dem zweifach geladenen Kernbereich und dem äußeren Elektron, dessen Entfernung vom Kern  $a_{Ry}$  etwa 100 nm beträgt. Zwischen den Rydbergionen bildet sich aufgrund des äußeren Felds und der Coulombabstoßung der Ionen ein Gleichgewichtsabstand aus, der im Bereich von einigen Mikrometern liegt.

Skalierbarkeit im Vergleich zu Gattern, die eine kollektive Bewegungsmode nutzen, zu erwarten.

Die parallele Ausführung von Quantenoperationen ist ein möglicher Ansatz, um die Skalierbarkeit eines Quantencomputers zu verbessern. Diese Idee lässt sich experimentell realisieren, indem Ionengruppen in räumlich separierten Regionen in entsprechend geformten elektrischen Potentialen gespeichert und individuelle, parallele Operationen auf diesen getrennten Gruppen ausgeführt werden [CZ00]. Durch Anpassung des Potentials können diese Regionen wieder zusammengeführt werden und eine gemeinsame Vibrationsmode ausbilden, um Information auszutauschen. Limitiert wird dieser Ansatz momentan durch die Anforderung schneller Schaltzeiten und Güte der erzeugten Potentiale. In [LGNL13] wird ein Mechanismus vorgestellt, der parallele Quantenoperationen auf einer linearen Ionenkette erlaubt. Dazu werden einzelne Ionen der Kette in Rydbergzustände angeregt, wodurch starke kohärente Kräfte auftreten. Auf diese Weise wird das Vibrationsmodenspektrum stark verändert und es treten Moden auf, die räumlich begrenzt sind. Diese Moden können verwendet werden, um Operationen auf entsprechenden Kristallregionen auszuführen. Die ursprüngliche Modenstruktur des Kristalls kann leicht wieder hergestellt werden, indem die Ionen aus dem Rydbergzustand in den Grundzustand überführt werden. Es ist auch denkbar dieses Schema auf einen dreidimensionalen Kristall zu erweitern.

Eine weitere Anwendung ergibt sich durch Verwendung der zustandsabhängigen Schwin-



---

gungsfrequenzen der Ionenkette. In [LL12] wurde vorgeschlagen diesen Effekt zu nutzen, um dynamische Phasenübergänge der Kristallstruktur hervorzurufen. Die starken kohärenten Kräfte, die dabei auftreten, können z.B. genutzt werden, um nichtklassische Bewegungszustände zu generieren [MMK<sup>+</sup>96].

Im Regime der starken Dipol-Dipol-Wechselwirkung kann außerdem gezeigt werden, dass interne und externe Dynamik des Ionenkristalls entkoppeln und auf diese Weise ein gefrorenes Rydberggas entsteht. Die interne Dynamik kann in diesem Limit durch ein effektives Spin-1/2-Modell mit resonanten und nichtresonanten Wechselwirkungen zwischen den Spins beschrieben werden. Diese Realisierung eines Spin-1/2-Systems zeichnet sich durch die großen Wechselwirkungsenergie aus, die im Bereich von  $\hbar \times 100$  MHz liegt. Dadurch ergibt sich eine Zeitskala der Spindynamik in der Größenordnung von wenigen Nanosekunden und ist damit deutlich kürzer als andere Ansätze mit Grundzustandsionen oder kalten Neutralatomen in optischen Gittern [MLLZ08].

## 1.1. Rydberganregung von gefangenen Calciumionen mit vakuumultravioletter Strahlung

Die Anregung von wasserstoffähnlichen Neutralatomen aus dem Grundzustand in Rydbergzustände lässt sich durch Laserlicht im ultravioletten Wellenlängenbereich erreichen. Im Fall von Rubidium wird Licht mit einer Wellenlänge von etwa 297 nm benötigt [THS<sup>+</sup>09]. Im Gegensatz dazu ist die Anregungswellenlänge von wasserstoffähnlichen Ionen aufgrund der größeren Bindungsenergie zwischen äußerem Elektron und zweifach geladenem Kernbereich deutlich niedriger.

In [SKFK<sup>+</sup>11] wird erstmals die experimentelle Durchführbarkeit einer Anregung gefangener, gekühlter Calciumionen in Rydbergzustände untersucht. Es wird vorgeschlagen, die Anregung durch einen Einphotonenübergang aus den metastabilen Zuständen  $3^2D_{3/2}$  oder  $3^2D_{5/2}$  mit Licht bei einer Wellenlänge um 122 nm in Rydbergniveaus mit Hauptquantenzahlen zwischen 50 und 65 zu treiben. In Abbildung 1.3.a) ist das reduzierte Termschema von  $\text{Ca}^+$  mit den entsprechenden Übergängen gezeigt. Die Anregung in das  $3^2D_{3/2}$ - oder  $3^2D_{5/2}$ -Niveau aus dem  $4^2S_{1/2}$ -Grundzustand kann entweder inkohärent durch Einstrahlen eines Laser bei einer Wellenlänge von 397 nm bzw. 393 nm oder, im Fall des  $3^2D_{5/2}$ -Niveaus, kohärent mit einem Laser bei einer Wellenlänge von 729 nm erreicht werden. Mit diesem Schema ist auch eine Ionisation von Calciumionen möglich, indem man im letzten Anregungsschritt Licht mit einer Wellenlänge von 121,3 nm wählt.

Alternativ kann der Übergang in Rydbergzustände durch eine Mehrphotonenanregung erfolgen. Diese Methode wird in der Gruppe um M. Hennrich vom Institut für Experimentalphysik der Universität Innsbruck angewandt, wobei gefangene Strontiumionen verwendet werden [Hen14]. Die Anregung erfolgt aus dem metastabilen  $4^2D_{5/2}$ , mit einem Laser bei einer Wellenlänge von 243 nm, der nahresonant zum  $6^2P_{3/2}$ -Niveau eingestrahlt wird, und einem Laser mit einer Wellenlänge zwischen 305 nm-310 nm, um Rydbergzustände mit Hauptquantenzahlen  $n \geq 30$  anzuregen, wie in Abbildung 1.3.b) dargestellt.

In dieser Arbeit wird der erste Ansatz, die Anregung von Calciumionen in einen Rydbergzustand durch einen Einphotonenübergang mit Licht bei einer Wellenlänge von 122 nm, verfolgt.

Erzeugung von kohärenter Laserstrahlung im vakuumultravioletten Spektralbereich ist durch konventionelle Methoden, die im sichtbaren und infraroten Wellenlängenbereich angewandt werden, nicht möglich, da kein entsprechendes Lasermedium existiert. Auch eine Frequenzverdopplung in Kristallen, wie sie für ultraviolette Lasersysteme verwendet wird, funktioniert nicht, da die Absorption von vakuumultraviolettem Licht zu hoch ist. Die bisher einzige Methode zur Erzeugung von vakuumultravioletter Strahlung ist die nichtlineare Frequenzmischung in Gasen und Metaldämpfen. Durch Frequenzverdreifachung [MMK78, Cot79, Wal80] bzw. Summendifferenzfrequenzmischen

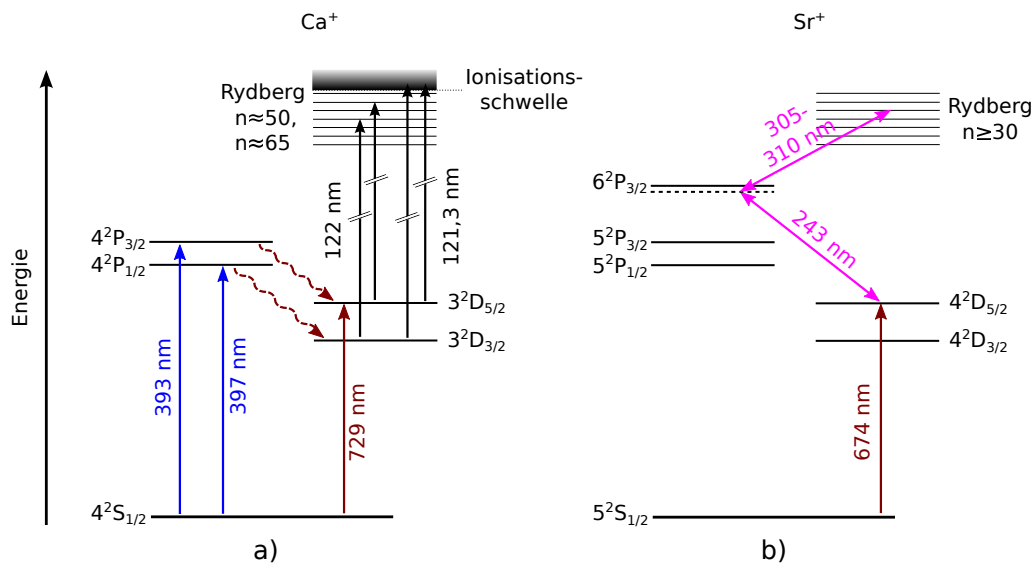


Abbildung 1.3.: **Rydberganregung von Ionen.** a) Gezeigt ist das reduzierte Termschema von  $\text{Ca}^+$ . Durch inkohärente Anregung mit Laserlicht bei 397 nm oder 393 nm wird das Ion in den  $3^2D_{3/2}$  bzw.  $3^2D_{5/2}$ -Zustand überführt. Alternativ kann eine kohärente Anregung in das  $3^2D_{5/2}$ -Niveau durch Licht bei 729 nm erfolgen. Aus dem  $3^2D_{3/2}$ - oder  $3^2D_{5/2}$ -Niveau wird das Calciumion mit Licht bei 122 nm durch einen Einphotonenübergang in einen Rydbergzustand mit Hauptquantenzahl  $n \approx 50$  bzw.  $n \approx 65$  angeregt. Wird im letzten Schritt Strahlung bei einer Wellenlänge von 121,3 nm verwendet, erfolgt eine Photoionisation des Calciumions. b) Gezeigt ist das reduzierte Termschema von  $\text{Sr}^+$ . Durch kohärente Anregung mit Laserlicht bei 674 nm wird das Ion in den  $4^2D_{5/2}$ -Zustand überführt. Eine Zwei-Photonen-Anregung mit Licht bei 243 nm, das nahverstimmt zum  $6^2P_{3/2}$ -Niveau ist, und Licht bei 305 nm-310 nm überführt das Ion in einen Rydbergzustand mit Hauptquantenzahl  $n \geq 30$ .

[MSM<sup>+</sup>90, MF98] mit gepulsten Lasersystemen wird vakuumultraviolette Strahlung mit Leistungen im Kilowattbereich und Pulsdauern im Nanosekundenbereich generiert. Aufgrund des Fourierlimits kann die spektrale Breite des erzeugten vakuumultravioletten Lichts bei gepulsten Laserquellen nicht schmaler als etwa die inverse Pulsdauer werden. Für die zitierten gepulsten vakuumultravioletten Laserquelle beträgt die spektrale Breite etwa 1 GHz oder mehr, wodurch eine kohärente Anregung der Rydbergzustände schwierig ist.

Kohärente vakuumultraviolette Strahlung mit einer spektralen Breite im Kilohertz- bis Megahertzbereich, was der natürlichen spektralen Breite von Rydbergzuständen entspricht [Dje91, GNO13], lässt sich erzeugen, indem Laser im Dauerstrichbetrieb (cw, continuous wave) verwendet werden. Eine solche Strahlungsquelle bei einer Wellenlänge von 120 nm konnte erstmals 1999 in dieser Arbeitsgruppe realisiert werden

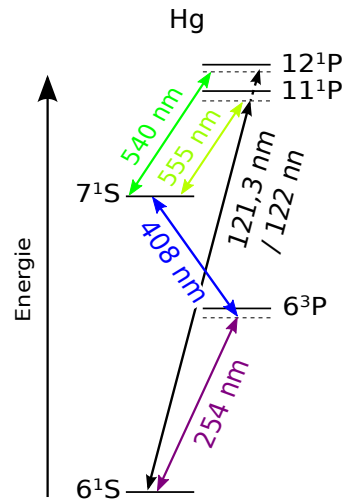


Abbildung 1.4.: **Vierwellenmischen in Quecksilber.** Die fundamentalen Lichtfelder bei den Wellenlängen 254 nm, 408 nm und 555 nm/540 nm werden nahresonant zu den Dipolübergängen  $6^1\text{S}-6^3\text{P}$ ,  $6^3\text{P}-7^1\text{S}$  und  $7^1\text{S}-11^1\text{P}$  bzw.  $7^1\text{S}-12^1\text{P}$  von Quecksilber eingestrahlt. Durch einen Vierwellenmischprozess wird ein Lichtfeld bei der Summenfrequenz mit einer Wellenlänge von 122 nm/121,3 nm erzeugt.

[EWH99]. Durch Summenfrequenzmischen in Quecksilberdampf konnte eine kontinuierliche Leistung von 0,5 nW bei einer Wellenlänge von 121,56 nm erreicht werden. In [EWH01] wurde mit einer solchen Laserquelle der 1S-2P Lyman- $\alpha$ -Übergang in Wasserstoff bei 121,56 nm spektroskopiert und damit die spektrale Breite des vakuumultravioletten Lichts auf kleiner als 10 MHz abgeschätzt. Eine solche Lichtquelle ist weltweit einzigartig und wurde fortlaufend weiterentwickelt [EWH01, SKM<sup>+</sup>09, KSW12].

2013 konnte durch die Verwendung eines dreifach resonanten Mischschemas eine Leistung von über 1  $\mu\text{W}$  bei einer Wellenlänge von 121,3 nm erreicht werden [KSW13]. In [SKFK<sup>+</sup>11] wurde abgeschätzt, dass durch die Verwendung eines dreifach resonanten Mischschemas eine optische Leistung in dieser Größenordnung bei einer Wellenlänge um 122 nm erreicht werden kann. Für eine Leistung von 3  $\mu\text{W}$  und einen Strahlradius von 10  $\mu\text{m}$  erhält man für den 3D-52P-Übergang in  $\text{Ca}^+$  eine Rabi-Frequenz von  $2\pi \times 150$  kHz, was deutlich größer als die inverse natürliche Zerfallszeit von 217  $\mu\text{s}$  [GNO13] (4,6 kHz) des 52P-Zustands ist. Dies würde bereits kohärente Rydberganregungen ermöglichen. Das Schema zur Erzeugung von vakuumultravioletter kontinuierlicher Strahlung durch dreifach resonantes Vierwellenmischen in Quecksilber ist in Abbildung 1.4 dargestellt. Es werden drei kontinuierliche fundamentale Lichtfelder mit Wellenlängen im ultravioletten (254 nm), blauen (408 nm) und grünen Spektralbereich (555/540 nm) nahresonant zu den Quecksilberenergieniveaus  $6^3\text{P}$ ,  $7^1\text{S}$  und  $11^1\text{P}/12^1\text{P}$  eingestrahlt (siehe Abbildung 1.4). Durch Summenfrequenzmischen entsteht vakuumultraviolettes Licht bei einer Wellenlänge von 122 nm bzw. 121,3 nm für die Rydberganregung bzw. für die Photoionisation von Calciumionen.

## 1.2. Vierwellenmischen in Quecksilber

Im folgenden Abschnitt wird die Theorie des Vierwellenmischens behandelt. Aus den Maxwellgleichungen im Medium lässt sich die Grundgleichung der nichtlinearen Optik herleiten, die folgende Form annimmt [Boy13]:

$$\Delta \vec{E} - \frac{\epsilon}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}^{\text{NL}}, \quad (1.1)$$

mit dem komplexen Dielektrizitätstensor  $\epsilon = 1 + \chi^{(1)}$ , wobei  $\chi^{(1)}$  die Suszeptibilität erster Ordnung ist,  $c$  der Lichtgeschwindigkeit im Vakuum,  $\epsilon_0$  der Dielektrizitätskonstanten und  $\vec{P}^{\text{NL}}$  der nichtlinearen Polarisation, wobei gilt:

$$\begin{aligned} \vec{P}^{\text{NL}} &= \vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + \dots \\ P_i^{\text{NL}} &= \epsilon_0 \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \epsilon_0 \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots, \quad \text{mit } i, j, k, l \in x, y, z \end{aligned} \quad (1.2)$$

mit  $\chi^{(2)}, \chi^{(3)}, \dots$ , den Suszeptibilitäten höherer Ordnungen. Die rechte Seite der Gleichung stellt einen Quellterm für die Erzeugung eines elektrischen Felds  $\vec{E}$  dar.

Man kann zeigen, dass für ein isotropes Medium alle Suszeptibilitäten gerader Ordnung verschwinden [Boy13]. Da zudem für die im Experiment verwendeten Intensitäten höhere Ordnungen vernachlässigt werden können, wird im Folgenden nur die nichtlineare Polarisation  $\vec{P}^{(3)}$  betrachtet. Berechnet man für das in einem nichtlinearen Medium propagierende linear polarisierte elektrische Feld

$$E = A_1(z) e^{-i(\omega_1 t - k_1 z)} + A_2(z) e^{-i(\omega_2 t - k_2 z)} + A_3(z) e^{-i(\omega_3 t - k_3 z)} + A_4(z) e^{-i(\omega_4 t - k_4 z)} + c.c. \quad (1.3)$$

mit den Kreisfrequenzen  $\omega_i$  und den Wellenvektoren  $k_i = n_i \omega_i / c$  die nichtlineare Polarisation, erhält man

$$\begin{aligned} P^{\text{NL}} &= \epsilon_0 \chi^{(3)} E E E \\ &\stackrel{\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3}{=} 6 \epsilon_0 \chi^{(3)} A_1(z) A_2(z) A_3(z) e^{-i[\omega_4 t - (k_1 + k_2 + k_3)z]}, \end{aligned} \quad (1.4)$$

wobei im zweiten Schritt nur das für diese Arbeit relevante Summenfrequenzmischen betrachtet wird, bei dem ein Feld mit der Frequenz  $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$  erzeugt wird.

Im Experiment werden die einfallenden Felder möglichst stark ins nichtlineare Medium fokussiert. Dadurch entstehen hohe Feldstärken der fundamentalen Felder und somit nach Gleichung (1.4) eine große nichtlineare Polarisation. Gebündelte Strahlen werden durch Gaußstrahlen beschrieben, wobei der konfokale Parameter

$$b = k w_0^2$$

mit dem Strahlradius  $w_0$  die Stärke der Fokussierung charakterisiert. Unter der Annahme, dass alle am Mischprozess teilnehmenden Strahlen identische konfokale Parameter, Fokusorte und lineare Polarisation besitzen, lässt sich mit den Gleichungen (1.1) und

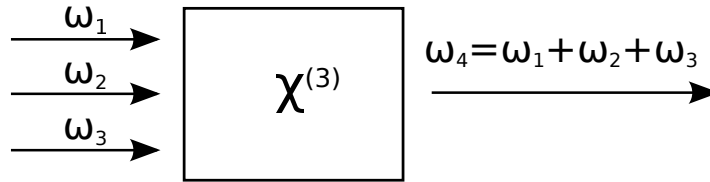


Abbildung 1.5.: **Vierwellenmischen in einem nichtlinearen Medium.** Drei Felder mit den Kreisfrequenzen  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  und  $\omega_3$  treten in ein nichtlineares Medium mit einer Suszeptibilität  $\chi^{(3)}$  ein. Im nichtlinearen Medium wird eine Polarisation erzeugt, die mit der Summenfrequenz  $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$  oszilliert. Daraus resultiert ein aus dem nichtlinearen Medium zusätzlich austretendes Feld bei der Frequenz  $\omega_4$ .

(1.4) die Leistung der erzeugten Strahlung bei der Summenfrequenz bestimmen zu [Bjo75]:

$$P_4 = \frac{9}{4} \frac{\omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4}{\pi^2 \epsilon_0^2 c^6} \frac{1}{b^2} N^2 |\chi_a^{(3)}|^2 P_1 P_2 P_3 G(b \Delta k_a N), \quad (1.5)$$

wobei  $N$  die Atomdichte des nichtlinearen Mediums,  $\chi_a^{(3)}$  die Suszeptibilität pro Atomdichte,  $G$  die Phasen Anpassungsfunktion,  $\Delta k_a$  die Phasenfehlanpassung pro Atomdichte ist und  $P_1$ ,  $P_2$  und  $P_3$  die Leistungen der fundamentalen Felder sind. Für die Herleitung dieser Gleichung wurde angenommen, dass das nichtlineare Medium der Länge  $L$  eine homogene Dichte  $N$  aufweist, der Grenzfall starker Fokussierung  $b \ll L$  gilt, der Fokusort in der Mitte des nichtlinearen Mediums liegt und die beteiligten Felder keine Absorption erfahren. Dieser Prozess ist schematisch in Abbildung 1.5 dargestellt.

Die Ausgangsleistung des harmonischen Felds  $P_4$  ist proportional zum Produkt der drei Fundamentalfelder  $P_1 P_2 P_3$  und zu  $1/b^2$ . Außerdem steigt die erzeugte Leistung mit  $N^2$  an. Allerdings muss beachtet werden, dass dieser Parameter für die hier vorgestellte experimentelle Umsetzung nicht frei gewählt werden kann, da die Dichte des nichtlinearen Mediums für die Optimierung der Phasen Anpassungsfunktion  $G$  verwendet wird. In Abbildung 1.6 ist zu sehen, dass diese maximal für  $b \Delta k_a N(T) = -4$  wird. Die Phasen Anpassung  $\Delta k_a$  wird so gewählt, dass die Dichte  $N$  des Mediums in einer Größenordnung liegt, die experimentell realisierbar ist.

Mit welcher Effizienz der Vierwellenmischprozess stattfindet, hängt maßgeblich von der nichtlinearen Suszeptibilität  $\chi_a^{(3)} = \chi_a^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$  ab. Die nichtlineare Suszeptibilität kann durch die Wahl von Fundamentalfeldern, die nahresonant zu atomaren Übergängen des nichtlinearen Mediums gewählt werden, stark erhöht werden. Für den Fall des nahresonanten Summenfrequenzmischens mit einer zusätzlichen Zweiphotonenresonanz lässt sie sich über

$$\chi_a^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = \frac{1}{6 \epsilon_0 \hbar^3} S(\omega_1 \omega_2) \chi_{12}(\omega_1, \omega_2) \chi_{34}(\omega_3, \omega_4) \quad (1.6)$$

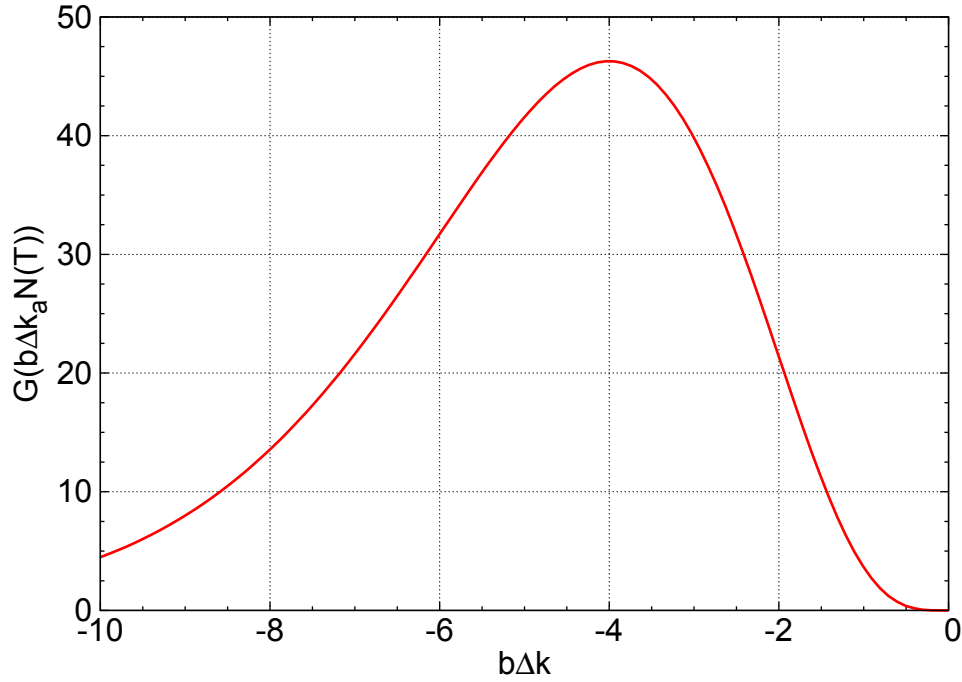


Abbildung 1.6.: **Phasenanpassungsfunktion**  $G$ . Dargestellt ist die Phasenanpassungsfunktion  $G$  in Abhängigkeit von  $b\Delta k_a N(T)$ . Bei  $b\Delta k_a N = 4$  liegt das Maximum.

berechnen [SA86]. Die partiellen Suszeptibilitäten  $\chi_{12}$  und  $\chi_{34}$  sind definiert durch:

$$\chi_{12} = \sum_m \left( \frac{p_{zm}p_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_1} + \frac{p_{zm}p_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_2} \right), \quad (1.7)$$

$$\chi_{34} = \sum_n \left( \frac{p_{zn}p_{ng}}{\omega_{gn} - \omega_4} + \frac{p_{zn}p_{ng}}{\omega_{gn} + \omega_3} \right), \quad (1.8)$$

wobei die Summation über alle Niveaus  $m$  bzw.  $n$  durchgeführt wird, die von dem Grundzustand  $g$  bzw. dem Zweiphotonenniveau  $z$  durch ein Dipolübergang erreichbar sind, wie in Abbildung 1.7.a) dargestellt. Die Übergangsmatrixelemente  $p_{ij}$  charakterisieren die Stärke der beteiligten Dipolübergänge.

Die Funktion  $S(\omega_1, \omega_2)$  berücksichtigt die Zweiphotonenresonanz und ist definiert durch

$$S(\omega_1, \omega_2) = \frac{1}{\omega_{ng} - (\omega_1 + \omega_2)}. \quad (1.9)$$

Für die Berechnung von  $\chi_a^{(3)}$  des Summenfrequenzmischprozesses in Quecksilber werden die in Anhang A aufgelisteten Niveaus berücksichtigt. In Abbildung 1.7.b) sind die Niveaus dargestellt, zu denen die Felder mit den Kreisfrequenzen  $\omega_1, \omega_2, \omega_3$  und  $\omega_4$  nahverstimmt sind und damit den größten Einfluss haben.

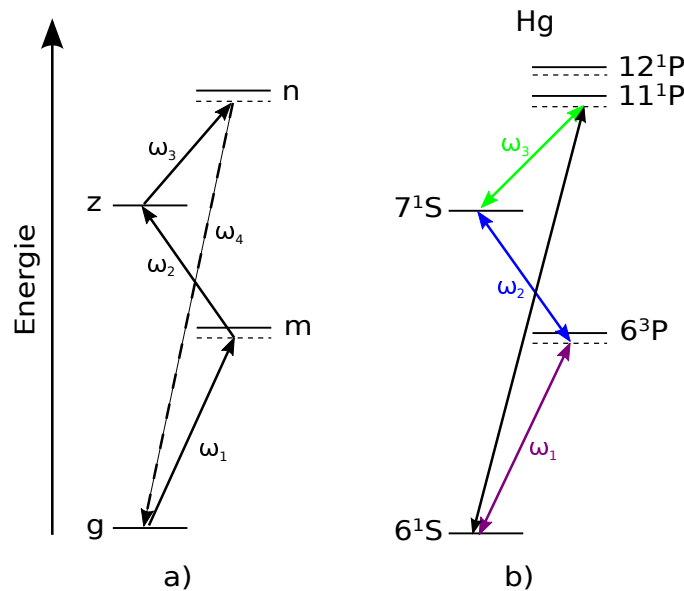


Abbildung 1.7.: **Vierwellenmischen mit einer Zweiphotonenresonanz.** a) Gezeigt ist ein reduziertes Termschema, mit dem Grundzustand g und einem Zweiphotonenniveau z sowie die Felder mit den Frequenzen  $\omega_1, \omega_2, \omega_3$  und  $\omega_4$ . Für die Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität  $\chi_a^{(3)}$  müssen alle Niveaus m und n berücksichtigt werden, die mit dem Grundzustand durch einen Dipolübergang verbunden sind. b) Gezeigt ist das reduzierte Termschema von Quecksilber mit dem Grundzustand  $6^1S$ , dem Zweiphotonenniveau  $7^1S$  und den relevanten Niveaus  $6^3P$ ,  $11^1P$  und  $12^1P$ .

In Abbildung 1.8 ist  $\chi_a^{(3)}$  in Abhängigkeit von der vakuumultravioletten Wellenlänge  $\lambda_4 = 2\pi c/(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)$  aufgetragen. Dabei sind die Wellenlängen  $\lambda_1 = c/\nu_1$  und  $\lambda_2 = c/\nu_2$  durch  $\Delta_{6^3P} = \nu_1 - \nu_{6^3P} = -50$  GHz und  $\Delta_{7^1S} = \nu_1 + \nu_2 - \nu_{7^1S} = 0$  GHz festgelegt. Die Wellenlänge  $\lambda_3$  und damit auch  $\lambda_4$  wird frei gewählt. Es ist zu sehen, dass in der Nähe der Resonanzen  $11^1P$  und  $12^1P$  die höchsten Werte für  $\chi_a^{(3)}$  erreicht werden und daher in diesen Wellenlängenbereichen der Vierwellenmischprozess am effizientesten ist. Zur Erzeugung vakuumultravioletter Strahlung für die Rydberganregung von Calciumionen wird die Wellenlänge  $\lambda_4$  nahe der  $11^1P$  Resonanz und für die Ionisation von Calciumionen nahe der  $12^1P$  Resonanz gewählt.



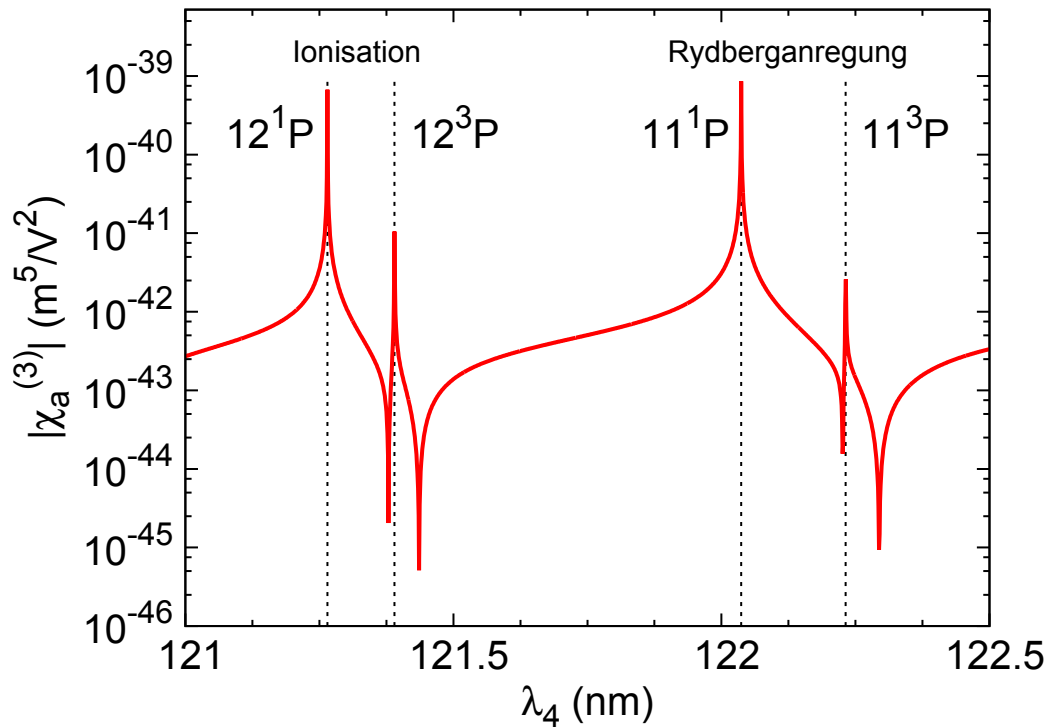


Abbildung 1.8.: **Nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung.** Aufgetragen ist die nichtlineare Suszeptibilität  $\chi_a^{(3)}$  als Funktion der vakuumultravioletten Wellenlänge  $\lambda_4$  für  $\Delta_{6^3P} = \nu_1 - \nu_{6^3P} = -50$  GHz und  $\Delta_{7^1S} = \nu_1 + \nu_2 - \nu_{7^1S} = 0$  GHz. Die größten Werte nimmt  $\chi_a^{(3)}$  in der Nähe der Resonanzen  $11^1P$  und  $12^1P$  an.

## 1.3. Experimentelle Umsetzung der vakuumultravioletten Laserlichtquelle

In diesem Abschnitt wird die experimentelle Umsetzung des Vierwellenmischprozesses vorgestellt. Hierzu wird zunächst auf die verwendeten Lasersysteme und anschließend auf die Quecksilberdampfzelle eingegangen, in der das Vierwellenmischen stattfindet. Da vakuumultraviolette Strahlung an Luft durch Stickstoffdioxid eine starke Absorption erfährt (Absorptionskoeffizient von  $\text{NO}_2 > 100 \text{ cm}^{-1}$  bei 120 nm [NKW59]), wird das Licht in einem evakuierten Bereich geführt. Die Vakuumapparatur, die die optische Verbindung zwischen Mischzone und Calciumfalle herstellt, wird vorgestellt.

Der Aufbau der vakuumultravioletten Lichtquelle für die Rydberganregung von Calciumionen war Schwerpunkt dieser Arbeit. Dabei war es das Ziel eine leistungsstarke und stabile Lichtquelle für zukünftige kohärente Anregungen bereitzustellen.

Die Funktionsweise der verwendeten Calciumfallen wird hier nicht näher behandelt, da ihr Aufbau und Inbetriebnahme von der Arbeitsgruppe Schmidt-Kaler durchgeführt wurde. Experimentelle Details sind in den Publikationen 3 und 4 (Abschnitt 2.3 und 2.4) zu finden.

### 1.3.1. Lasersysteme

In Abbildung 1.9 ist eine Übersicht der Lasersysteme gezeigt, die die fundamentalen Felder für das Vierwellenmischen bereitstellen. Die Wellenlänge im ultravioletten Spektralbereich (254 nm) ist nah zum  $6^3\text{P}$  Niveau gewählt (ca. 135 GHz rotverstimmt), während die Wahl der Wellenlänge im blauen Spektralbereich (408 nm) eine Zweiphotonenresonanz zum  $7^1\text{S}$  Niveau garantiert. Die Wellenlänge im grünen Spektralbereich wird nahverstimmt zum  $11^1\text{P}$  (555 nm, etwa 100 GHz rotverstimmt) für die Rydberganregung oder nahverstimmt zum  $12^1\text{P}$ -Niveau (540 nm, etwa 100 GHz rotverstimmt) für die Ionisation der gefangenen Calciumionen gewählt.

Nach Gleichung (1.5) ist die Leistung der generierten vakuumultravioletten Strahlung proportional zum Produkt der Eingangsleistungen. Für eine leistungsstarke vakuumultraviolette Lichtquelle sind daher hohe optische Leistungen der eingestrahlten Felder nötig. Weitere Anforderungen an die Lasersysteme ergeben sich aus der in Abschnitt 1.1 diskutierten spektralen Breite der vakuumultravioletten Strahlung, die im Bereich von wenigen Megahertz liegen soll. Zusätzlich ist für eine verlässliche Durchführung der Messungen eine hohe Leistungsstabilität erforderlich. Da sich die Eigenschaften der fundamentalen Lasersysteme direkt auf die im Vierwellenmischprozess erzeugte Strahlung übertragen, müssen diese eine entsprechende Leistungsstabilität und spektrale Linienbreite aufweisen.

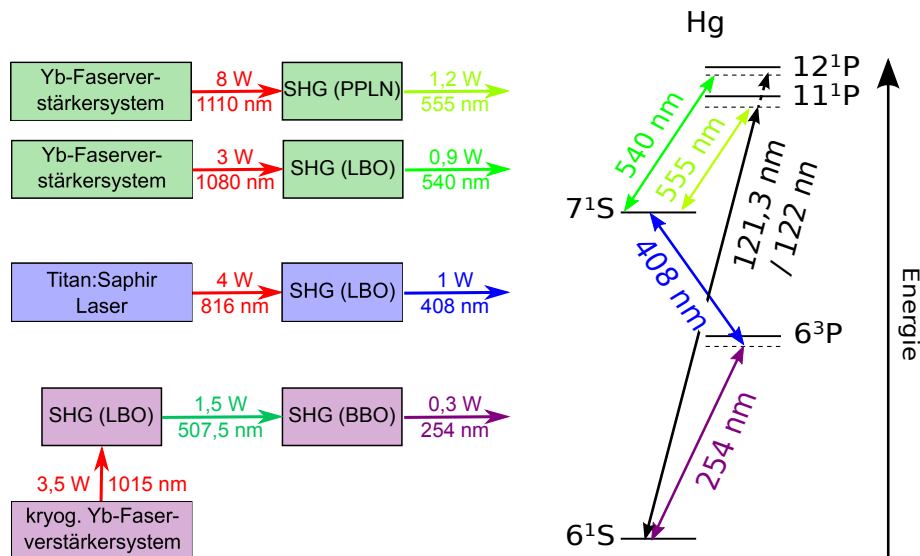


Abbildung 1.9.: **Fundamentale Lasersysteme.** Die fundamentalen Felder werden durch Lasersysteme bei den Wellenlängen 254 nm, 408 nm und 540 nm bzw. 555 nm bereitgestellt. Dafür werden Faserverstärkerverstärkersysteme bei Wellenlängen von 1015 nm, 1080 nm und 1110 nm und ein Titan:Saphir Laser bei 816 nm frequenzverdoppelt.

## Lasersystem bei 254 nm

In Abbildung 1.10 ist der Aufbau des Lasersystems bei 254 nm schematisch dargestellt. Es besteht aus drei Teilen, einem leistungsstarken Lasersystem im nahinfraroten Wellenlängenbereich bei 1015 nm, einer Frequenzverdopplung zu 507,5 nm und einer weiteren Frequenzverdopplung zu 254 nm im ultravioletten Spektralbereich [SMW<sup>+</sup>07, SKB<sup>+</sup>13]. Das infrarote Lasersystem ist im sogenannten MOPA-Design (**master oscillator power amplifier**) aufgebaut, bei dem das Lichtfeld eines leistungsschwachen aber spektral stabilen Signallasers im Dauerstrichbetrieb (cw, **continuous wave**) in einer oder mehreren nachfolgenden Verstärkerstufen auf eine hohe Leistung gebracht wird. Der Signallaser ist ein Eigenbaudiolenlaser mit Gitterrückkopplung in einer Littrow-Anordnung (ECDL, **external cavity diode laser**) mit einer Ausgangsleistung von ca. 50 mW. Das Licht wird in einer optischen Faser zur ersten Verstärkerstufe, einem Halbleitertrapezverstärker (TA, **tapered amplifier**) geführt, in dem es auf eine Leistung von ca. 1 W verstärkt wird. In einer weiteren optischen Faser wird das Licht zum Hauptverstärker, einem kryogenen Ytterbium-Faserverstärker (CYFA, **cryogenic ytterbium fiber amplifier**), geleitet. Als optisches Verstärkermedium wird eine Ytterbium-dotierte Faser verwendet, die in einem mit flüssigem Stickstoff gefüllten Behälter betrieben wird. Die niedrige Temperatur verringert die Besetzung energetisch hochliegender Zustände, was zu einer geringeren Absorption und dadurch besserer Verstärkung bei der Signallängewellenlänge führt. Nach der Hauptverstärkerstufe steht eine Leistung von etwa 3,5 W

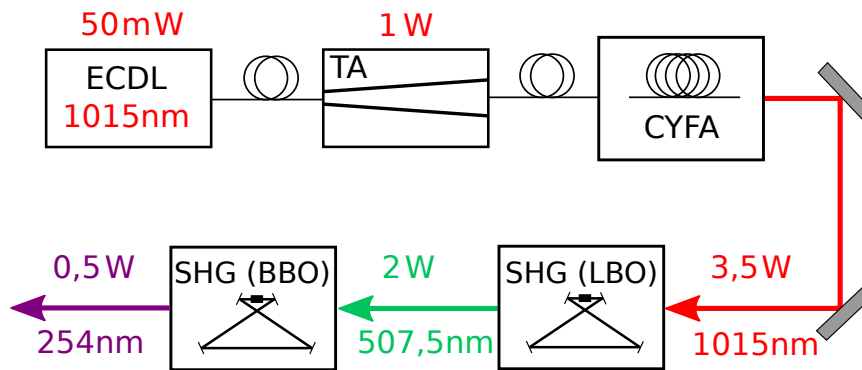


Abbildung 1.10.: **Lasersystem bei 254 nm.** Licht eines Diodenlasers (ECDL) bei 1015 nm, der als Signallaser dient, wird in eine Glasfaser eingekoppelt, zu einem Halbleiterverstärker (TA) geführt und vorverstärkt. Eine weitere Glasfaser stellt dieses Licht dem Hauptverstärker bereit, einem kryogenen Faserverstärker (CYFA), in dem es erneut verstärkt wird. Durch die zwei folgenden Resonatoren wird das Licht jeweils frequenzverdoppelt (SHG), so dass schließlich Strahlung mit einer Leistung von maximal 500 mW bei einer Wellenlänge von 254 nm zur Verfügung steht.

bei 1015 nm zur Verfügung.

Dieses Licht wird in einen in Doppel-Z-Geometrie aufgebauten optischen Resonator eingekoppelt, dessen Länge mit dem Pound-Drever-Hall Verfahren stabilisiert wird [Bla01]. Im Resonator befindet sich ein temperaturphasenangepasster Lithiumtriborat-Kristall (LBO), in dem die Frequenzverdopplung (SHG, **second-harmonic generation**) stattfindet. Die Frequenzverdopplungseinheit stellt eine Leistung von bis zu 2 W bei 507,5 nm bereit.

Die zweite Frequenzverdopplung (SHG) findet in einem weiteren Pound-Drever-Hall stabilisierten Verdopplungsresonator in Doppel-Z-Geometrie statt, in dem ein winkelphasenangepasster, brewstergeschnittener  $\beta$ -Bariumborat-Kristall (BBO) verwendet wird. Es wird eine maximale Leistung von ca. 500 mW bei 254 nm erzielt.

## Lasersystem bei 408 nm

Das Lasersystem bei 408 nm besteht aus einem kommerziellen Titan:Saphir Laser (Matisse TX, Sirah), der bei 816 nm betrieben wird und einer selbst gebauten Frequenzverdopplung. In Abbildung 1.11 ist der Aufbau des Titan:Saphir Lasers zu sehen. Im Resonator befindet sich ein Titan:Saphir-Kristall (Ti:Sa), der mit einem Laser bei einer Wellenlänge von 532 nm und einer Ausgangsleistung von 18 W (Verdi V-18, Coherent) optisch gepumpt wird. Durch die frequenzselektiven Elemente, Lyot-Filter, dünnes und dickes Etalon, wird die Wellenlänge des Lasers gewählt. Mit dem elektrooptischen Modulator (EOM), langsamen und schnellen Piezoaktuator erfolgt die Änderung der Re-

sonatorlänge und somit eine Feinabstimmung der Wellenlänge. Des Weiteren wird mithilfe dieser Elemente die Wellenlänge durch das Pound-Drever-Hall Verfahren auf eine Resonanz des Referenzresonators stabilisiert. Der Referenzresonator befindet sich in einem temperaturstabilisierten und evakuierten Gehäuse. Er besitzt einen freien Spektralbereich von 1,5 GHz und eine Finesse von etwa 600. Die spektrale Linienbreite des Lasers im stabilisierten Zustand wird auf kleiner als 30 kHz spezifiziert. Die Ausgangsleistung bei 816 nm maximal ca. 5 W.

Die infrarote Strahlung wird in einen Resonator in Doppel-Z-Geometrie eingekoppelt, in dem sich ein winkelphasenangepassten, brewstergeschnittenen LBO Kristall befindet. Der Resonator wird mittels Hänsch-Couillaud Verfahren [HC80] stabilisiert. Es wird eine optische Leistung von bis zu 2 W bei 408 nm erreicht.

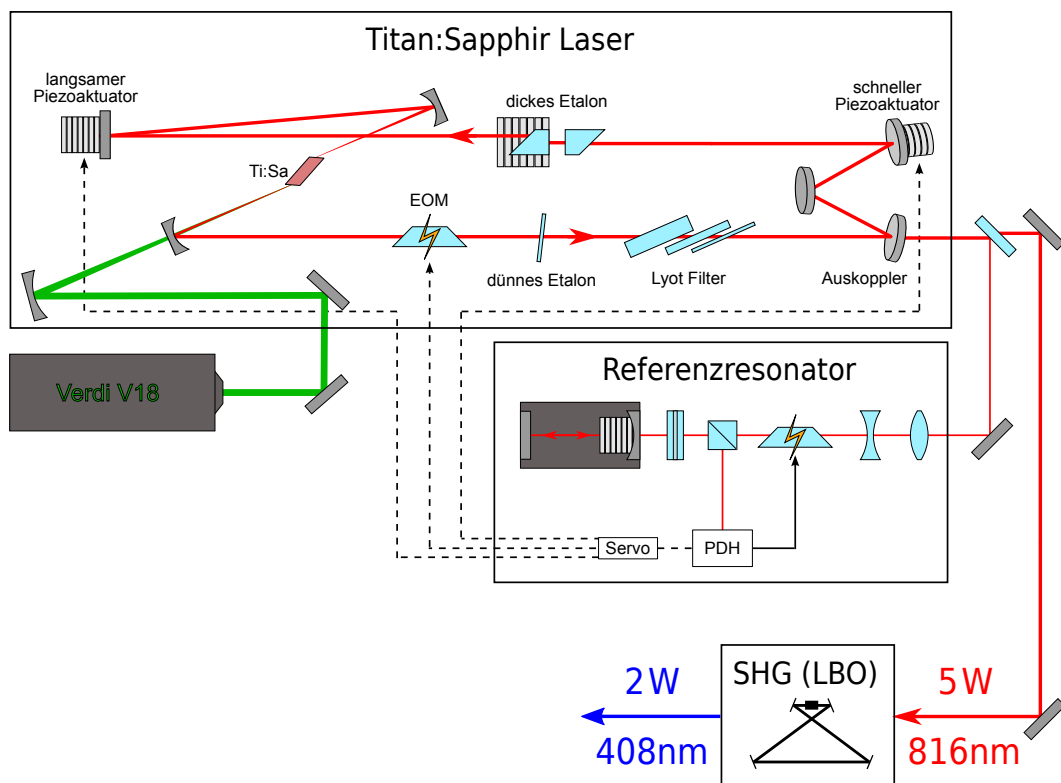


Abbildung 1.11.: **Lasersystem bei 408 nm (nach [Kog14])**. Licht bei 816 nm wird durch einen Titan:Saphir Laser (Matisse TX, Sirah) mit einer maximalen optischen Ausgangsleistung von 5 W bereitgestellt. Der Ti:Sa Kristall wird optisch mit einem Laser bei 532 nm (Verdi V-18, Coherent) gepumpt. Mit einem Lyot-Filter, dünnen und dicken Etalon wird die Frequenz eingestellt. Ein elektrooptischer Modulator (EOM), langsamer und schneller Piezoaktuator werden verwendet, um die Frequenz des Lasers auf eine Resonanz des Referenzresonators zu stabilisieren. Anschließend wird das Licht in einem optischen Resonator frequenzverdoppelt (SHG). Es wird eine maximale Leistung von etwa 2 W bei einer Wellenlänge von 408 nm erreicht.

## Lasersystem bei 540 nm

In Abbildung 1.12 ist der Aufbau des Lasersystems bei 540 nm, bestehend aus einem MOPA-System und anschließender Frequenzverdopplung, dargestellt. Eine Eigenbaulaserdiode in Littrow-Anordnung mit einer Leistung von ca. 30 mW dient als Signallaser für den nachfolgenden kommerziellen zweistufigen Ytterbium-Faserverstärker (Boostik, Koheras), der eine Ausgangsleistung von ca. 3 W bei 1080 nm bereitstellt. Mit einer kommerziellen Frequenzverdopplungseinheit (Wavetrain, Spectra-Physics) wird eine Leistung von ca. 900 mW bei 540 nm erreicht. Zur Stabilisierung wird das Pound-Drever-Hall Verfahren verwendet.

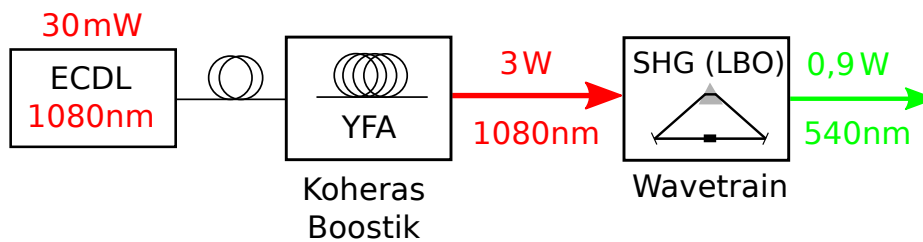


Abbildung 1.12.: **Lasersystem bei 540 nm.** Ein Diodenlaser (ECDL) bei einer Wellenlänge von 1080 nm liefert über eine Glasfaser Licht an einen zweistufigen Ytterbium-Faserverstärker (YFA, Boostik, Koheras). Das verstärkte Licht wird in einer Frequenzverdopplungseinheit (Wavetrain, Spectra-Physics) zu Strahlung bei einer Wellenlänge 540 nm konvertiert (SHG).

## Lasersystem bei 555 nm

Abbildung 1.13 zeigt den Aufbau des Lasersystems bei 555 nm. Es besteht aus einem MOPA-System mit einem zweistufigen Faserverstärker und einer Frequenzverdopplung. Das System wird im Wesentlichen in Publikation 1 (Abschnitt 2.1) beschrieben. Allerdings wurden Umbaumaßnahmen durchgeführt, um das System für die Wellenlänge von 555 nm zu optimieren. Bei dem Signallaser handelt es sich um ein kommerzielles Diodenlasersystem (DL pro, Toptica), das eine Ausgangsleistung von ca. 120 mW bei 1110 nm liefert. In der ersten Stufe eines Ytterbium-Faserverstärkers wird diese Leistung auf ca. 1,5 W erhöht und in einer zweiten Stufe auf ca. 8 W verstärkt.

Anschließend wird die nahinfrarote Strahlung in einem magnesiumoxid-dotierten periodisch gepolten Lithiumniobat Kristall (MgO:PPLN) im Einfachdurchgang frequenzverdoppelt. Die maximale Leistung der Harmonischen bei 555 nm beträgt ca. 1,2 W.

Das Gesamtsystem weist, bedingt durch die Frequenzverdopplung im Einfachdurchgang, eine hohe Zuverlässigkeit, Leistungsstabilität und kontinuierliche Frequenzdurchstimmbarkeit auf.

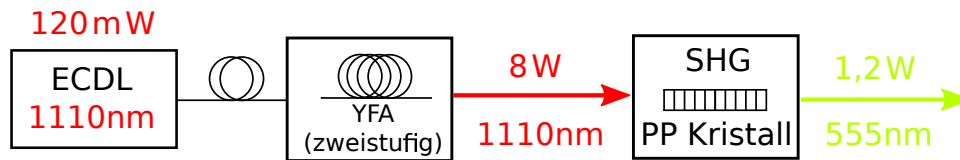


Abbildung 1.13.: **Lasersystem bei 555 nm.** Ein Diodenlaser (ECDL, DL pro, Toptica) bei einer Wellenlänge von 1110 nm liefert über eine Glasfaser Licht an einen Ytterbium-Faserverstärker (YFA). Das Licht wird in zwei Stufen verstärkt und in einen periodisch gepolten magnesiumoxid-dotierten Lithiumniobat-Kristall (PP Kristall) fokussiert und frequenzverdoppelt (SHG). Anschließend steht Licht bei einer Wellenlänge von 555 nm zur Verfügung.

## Frequenzverdopplung im Zweifachdurchgang

Nach Gleichung (1.5) geht die Leistung der fundamentalen Felder linear in die erzeugte harmonische Leistung ein. Daher ist es das Ziel, für alle fundamentalen Lasersystem eine möglichst hohe optische Ausgangsleistung zu erzielen. Die in den vorigen Abschnitten für die Frequenzverdopplung vorgestellten Resonatoren stellen eine sehr aufwändige Methode zur Erzeugung der fundamentalen Lichtfelder dar.

Die in Publikation 2 (Abschnitt 2.2) vorgestellte Frequenzverdopplung im Zweifachdurchgang durch einen periodisch gepolten Kristall stellt eine Alternative für eine effiziente Frequenzkonversion dar. Sie weist ebenso wie die Frequenzverdopplung im Einfachdurchgang eine hohe Leistungsstabilität und weite kontinuierliche spektrale Durchstimmbarkeit auf. Durch den doppelten Durchgang kann jedoch eine höhere Ausgangsleistung erzielt werden.

Die Frequenzverdopplung im Zweifachdurchgang ist für die Frequenzverdopplungen zu 555 nm, 540 nm, 507,5 nm und 408 nm möglich, da für diese Wellenlängen periodisch gepolte Kristalle kommerziell erhältlich sind. Eine Ersetzung der bisherigen Frequenzverdopplungsresonatoren könnte zu einer höheren Zuverlässigkeit und Leistungsstabilität des Gesamtsystems beitragen.

## Frequenzstabilisierung der Lasersysteme

In Abschnitt 1.1 wurde bereits diskutiert, dass für die Rydberganregung von Calciumionen eine hohe Frequenzstabilität des vakuumultravioletten Felds erforderlich ist. Man unterscheidet zwischen Frequenzfluktuationen auf kurzer Zeitskala verglichen zur Messzeit einer Anregung, die die spektrale Linienbreite des Felds bestimmen, und Frequenzfluktuationen auf langer Zeitskala, die die Zentralfrequenz des Felds beeinflussen. Um eine ausreichende Anregungsrate zu erhalten und die Linienform des Übergangs auflösen zu können, sollte die spektrale Linienbreite des Lichtfelds deutlich kleiner als die des Rydbergübergangs sein. Frequenzschwankungen auf längeren Zeitskalen können

prinzipiell in den Messdaten berücksichtigt werden, da die Wellenlänge des vakuumultravioletten Lichts bei jedem Messpunkt aufgenommen wird. Dennoch können starke Schwankungen oder Drifts der Zentralfrequenz die Messung einer Resonanz erschweren. Daher sollten die Langzeitschwankungen der Zentralfrequenz während der Gesamtmessdauer deutlich kleiner als die Linienbreite des Übergangs sein.

Die spektralen Linienbreiten der unstabilisierten Laser betragen

$$\begin{aligned}\Delta\nu_{816\text{ nm}} &< 4\text{ MHz}, \\ \Delta\nu_{1015\text{ nm}} &\approx 1\text{ MHz}, \\ \Delta\nu_{1110\text{ nm}} &\approx 0,1\text{ MHz},\end{aligned}\tag{1.10}$$

wobei  $\Delta\nu_{816\text{ nm}}$  spezifiziert ist (Datenblatt Sirah Matisse) und  $\Delta\nu_{1015\text{ nm}}$  sowie  $\Delta\nu_{1110\text{ nm}}$  experimentell bestimmt wurden [Bac13]. Da das Licht der einzelnen Signallaser frequenzverdoppelt wird und anschließend wie in Abschnitt 1.2 beschrieben ein Feld bei der Summenfrequenz entsteht, lässt sich die spektrale Linienbreite  $\Delta\nu_{\text{VUV}}$  des vakuumultravioletten Felds abschätzen mit

$$\Delta\nu_{\text{VUV}} \simeq 4\Delta\nu_{1015\text{ nm}} + 2\Delta\nu_{816\text{ nm}} + 2\Delta\nu_{1110\text{ nm}}.\tag{1.11}$$

Für die resultierende Linienbreite des vakuumultravioletten Lichts ergibt sich  $\Delta\nu_{\text{VUV}} \approx 12\text{ MHz}$ . Die kleinste in Publikation 4 (Abschnitt 2.4) experimentell bestimmte Linienbreite eines Rydbergübergangs beträgt aufgrund verschiedener Störeinflüsse ca. 60 MHz und ist damit deutlich größer als die natürliche Linienbreite. Die Linienbreite des vakuumultravioletten Lichts ist daher bereits für die unstabilisierten Fundamentallaser deutlich kleiner als die Linienbreite der Rydbergzustände. Gelingt es die Störeinflüsse und somit die spektrale Verbreiterung der Rydbergzustände zu minimieren, ist eine Linienbreite im Bereich von wenigen Megahertz bis Kilohertz zu erwarten, bedingt durch die Lebensdauer des angeregten Zustands. Für eine effiziente kohärente Anregung ist dann eine kleinere Linienbreite der vakuumultravioletten Strahlung notwendig.

Um die Frequenzstabilität der vakuumultravioletten Strahlung zu erhöhen, können im Experiment alle infraroten Laser aktiv auf Referenzresonatoren stabilisiert werden. Auf die Stabilisierung und den Referenzresonator des Titan:Saphir Lasers wurde bereits eingegangen. Die Frequenzen der beiden Laserdiodensysteme bei 1015 nm und 1110 nm werden mithilfe des Pound-Drever-Hall Verfahrens auf eine Resonanz von Referenzresonatoren stabilisiert.

Bei den verwendeten Frequenzreferenzen handelt es sich um Eigenbauresonatoren, deren Konstruktion hinsichtlich hoher Stabilität optimiert ist. Die Resonatorspiegel sind auf einen Block aus Glaskeramik (Zerodur) geklebt, der bei Raumtemperatur einen sehr geringen thermischen Ausdehnungskoeffizienten aufweist. Die Piezoaktuatoren, die unter einem der Spiegel angebracht sind, erlauben es die Resonatorlänge und damit die Resonanzfrequenz zu ändern. Der Block ist mechanisch und thermisch entkoppelt in einer evakuierten Vakuumkammer untergebracht. Die Finesse des Resonators beträgt ca.



1600 für beide Wellenlängen, der freie Spektralbereich etwa 1,5 GHz. Eine ausführliche Beschreibung des Aufbaus ist [Bac13] zu entnehmen.

Für die Linienbreiten der stabilisierten Laser ergeben sich folgende Werte:

$$\begin{aligned}\Delta\nu_{816\text{ nm}}^s &< 30\text{ kHz}, \\ \Delta\nu_{1015\text{ nm}}^s &< 400\text{ kHz},\end{aligned}\tag{1.12}$$

wobei  $\Delta\nu_{816\text{ nm}}^s$  spezifiziert wird (Datenblatt Sirah Matisse) und  $\Delta\nu_{1015\text{ nm}}^s$  gemessen wurde [Bac13]. Auf eine Frequenzstabilisierung des Lasers bei 1110 nm wird verzichtet, da er bereits unstabilisiert eine geringe spektrale Breite von kleiner 100 kHz aufweist. Insgesamt ergibt sich damit  $\Delta\nu_{\text{UV}}^s < 2\text{ MHz}$ .

Die Langzeitschwankungen der stabilisierten Laser wurden mit einem zusätzlichen Laser bei einer Wellenlänge von 729 nm überprüft. Dieser Laser wird in der Arbeitsgruppe Schmidt-Kaler für die Anregung des Quadrupolübergangs  $4^2\text{S}_{1/2} - 3^2\text{D}_{5/2}$  in Calciumionen genutzt und ist auf einen Hochfinesse Resonator stabilisiert. Da die Laserfrequenz regelmäßig mit der Übergangsfrequenz der Calciumionen verglichen wird und die spektrale Breite des Lichtfelds auf etwa ein Kilohertz abgeschätzt wird, ist von einer Langzeitfrequenzschwankung von weniger als einem Kilohertz pro Stunde auszugehen [Mac13]. Um die Langzeitstabilität der Referenzresonatoren und damit der stabilisierten Laser zu überprüfen, wurde ein kleiner Anteil des Lichts rückseitig in die Resonatoren eingekoppelt. Anhand des Transmissionsignals wurden die Langzeitschwankungen auf einige Megahertz pro Stunde bestimmt. Die Langzeitsschwankungen des unstabilisierten Lasers bei 1110 nm liegen in der gleichen Größenordnung.

Damit ist die resultierende Langzeitstabilität der vakuumultravioletten Strahlung ausreichend, um die Messung einer Rydbergresonanz problemlos durchführen zu können. Eine weitere Verbesserung der Stabilität kann erreicht werden, indem das Transmissionsignal des eingekoppelten Lasers bei 729 nm zur aktiven Stabilisierung der Resonatorlänge genutzt wird. Dieses Signal kann auf die Piezoaktuatoren des Resonators gegeben werden und auf diese Weise eine Langzeitstabilität in der Größenordnung des hochstabilen Lasers bei 729 nm erreicht werden.

Bei den verwendeten Referenzresonatoren handelt es sich um relative Frequenzstandards. Jedoch ist auch eine Bestimmung der absoluten Frequenz der Rydbergübergänge nötig, um die Messergebnisse reproduzieren zu können. Dafür wird die Wellenlänge der resonanten vakuumultravioletten Strahlung benötigt, die sich aus der Summe der Frequenz der drei Fundamentalfelder ergibt. Diese werden durch die Messung der infraroten Wellenlängen bei 816 nm, 1015 nm und 1110 nm mit einem Wavemeter (WSU10, HighFinesse) bestimmt. Das Wavemeter wird auf den  $4^2\text{S}_{1/2} - 3^2\text{D}_{5/2}$  Übergang in Calcium kalibriert und hat eine spezifizierte absolute Frequenzgenauigkeit von 10 MHz. Für die Frequenz der vakuumultravioletten Strahlung ergibt sich damit nach Gleichung (1.11) eine absolute Genauigkeit von 80 MHz.

### 1.3.2. Vierwellenmischen in der Quecksilberdampfzelle

Im Folgenden wird die Quecksilberdampfzelle vorgestellt, in die die fundamentalen Felder eingestrahlt werden und in der das Vierwellenmischen stattfindet. Da vakuumultraviolettes Licht eine starke Absorption an Luft erfährt, muss der gesamte Bereich, in dem es erzeugt wird und propagiert, evakuiert sein.

Abbildung 1.14 zeigt einen schematischen Aufbau der Quecksilberdampfzelle. Die Strahlen der drei fundamentalen Felder bei den Wellenlängen 254 nm, 408 nm und 540 nm bzw. 555 nm werden vor der Zelle mit dichroitischen Spiegeln kollinear überlagert. Eine unbeschichtete Linse mit einer Brennweite von 150 mm fokussiert die drei Strahlen in das Zentrum der Quecksilberdampfzelle. Die Quecksilberdampfzelle wird auf einen Restgasdruck von etwa  $10^{-7}$  mbar abgepumpt. Auf der Eintrittsseite ist sie mit einem Brewsterfenster gegenüber Atmosphäre und auf der Austrittsseite mit einer Magnesiumfluoridlinse (Brennweite 130 mm bei  $\lambda \approx 122$  nm) gegenüber dem restlichen Vakuumbereich abgedichtet. Im unteren Bereich befinden sich Heizpatronen mit deren Hilfe die Zelle auf Temperaturen von etwa  $150^\circ\text{C}$  geheizt werden kann. Dadurch gelangt Quecksilberdampf in den Vierwellenmischbereich, in dem die Fundamentalstrahlen ihren Fokus haben. Um Niederschlag von Quecksilber an Eintrittsfenster und Austrittsline zu vermeiden, werden diese geheizt. Außerdem befinden sich vor und hinter der Mischzone mehrere wassergekühlte Aperturen, an denen das Quecksilber kondensiert und in das Reservoir zurückläuft.

Die Temperatur und somit die Dichte  $N$  des Quecksilberdampfs wird so eingestellt, dass für eine gegebene Phasenfehlanpassung  $\Delta k_a$  und einen konfokalen Parameter  $b$  der Fundamentalstrahlen die Phasenfehlanpassungsfunktion  $G(bN\Delta k_a)$  und damit die generierte Leistung maximiert wird. Die erzeugte Leistung der vakuumultravioletten Strahlung beträgt bis zu mehreren  $10 \mu\text{W}$ .

### 1.3.3. Optische Verbindung zwischen Mischzone und Calciumfalle

Das generierte vakuumultraviolette Licht tritt zusammen mit den Fundamentalstrahlen aus der Quecksilberdampfzelle aus und wird durch die Magnesiumfluoridlinse fokussiert (siehe Abbildung 1.15). Aufgrund der kleineren Dispersion liegt der Fokus der Fundamentalstrahlen einige Zentimeter hinter dem der vakuumultravioletten Strahlung. An dieser Stelle ist ein Spiegel platziert, der die Fundamentalstrahlen aus dem Vakuumsystem herausreflektiert und sie vom vakuumultravioletten Strahl trennt. Da letzterer am Fokusbereich der Fundamentalen bereits stark aufgegangen ist, geht nur etwa 30 % der erzeugten Leistung verloren. Anschließend wird er durch ein Linsensystem, das aus zwei Magnesiumfluoridlinsen mit Brennweiten von 150 mm besteht, zunächst kollimiert und dann in das Zentrum einer Calciumfalle fokussiert. Die letzte Magnesiumfluoridlinse dichtet die Separations-/Kollimationszone (Druck  $\approx 10^{-7}$  mbar) gegenüber dem Vakuumbereich der Calciumfalle (Druck  $< 10^{-10}$  mbar) ab. Die Linse kann in allen drei Raumrichtungen durch lineare Verschiebetische verschoben werden, um den Fokus

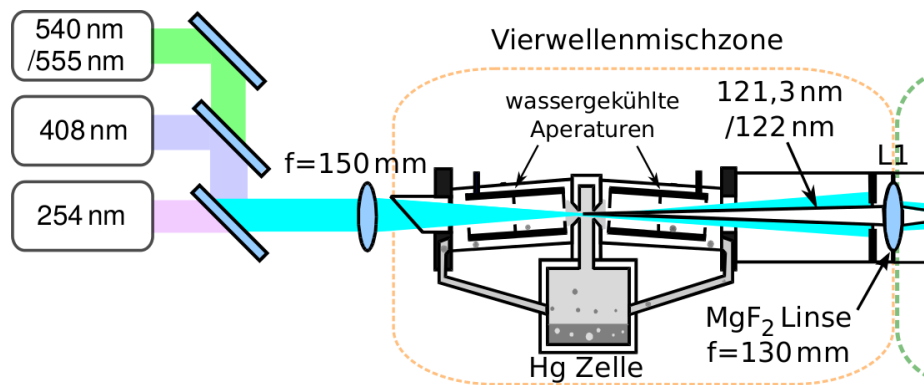


Abbildung 1.14.: **Erzeugung vakuumultravioletter Strahlung in einer Quecksilberdampfzelle.** Die drei fundamentalen Felder bei den Wellenlängen 254 nm, 408 nm und 540 nm/555 nm werden über dichroitische Spiegel überlagert und mit einer Linse in die Quecksilberdampfzelle fokussiert. Das flüssige Quecksilber im unteren Bereich der Zelle kann geheizt werden, so dass am Fokussort der Fundamentalstrahlen Quecksilberdampf entsteht. Dort wird durch Vierwellenmischen vakuumultraviolette Strahlung bei 121,3 nm/122 nm generiert. Gemeinsam mit den Fundamentalstrahlen propagiert das erzeugte Licht weiter durch die Zelle und trifft auf eine Magnesiumfluoridlinse ( $\text{MgF}_2$ ). An den wassergekühlten Aperturen kondensiert Quecksilber und läuft zurück ins Reservoir.

sowohl transversal als auch longitudinal zum Fallenzentrum auszurichten. Der Strahldurchmesser im Fokus wurde vermessen und beträgt ca.  $20\ \mu\text{m}$ . Hinter der Calciumfalle befindet sich ein Photomultiplier (Hamamatsu, R6835), der die Leistung der vakuumultravioletten Strahlung misst. Der Photomultiplier hat eine erhöhte Sensitivität im vakuumultravioletten Bereich, während sie im sichtbaren Bereich stark unterdrückt ist. Da er aber bei einer Wellenlänge von 254 nm noch relativ empfindlich ist, werden vor dem Photomultiplier vier Transmissionsfilter platziert (Acton: 122-N-1D F2, 122-XN-1D F3, 122-XN-1D XF2, 122-XN-1D; Transmission: 20,5 %, 14,5 %, 3,5 %, 7,5 %). Diese sorgen dafür, dass keine Streustrahlung bei einer Wellenlänge von 254 nm vom Photomultiplier detektiert wird.

Aufgrund von Absorption und Fresnelreflexion an den drei unbeschichteten Magnesiumfluoridlinsen und Verlusten am Separationsspiegel ist die Leistung der vakuumultravioletten Strahlung in der Calciumfalle etwa um einen Faktor sieben reduziert. Damit liegt die für die Rydberganregung verfügbare Leistung im Bereich von mehreren  $\mu\text{W}$ .

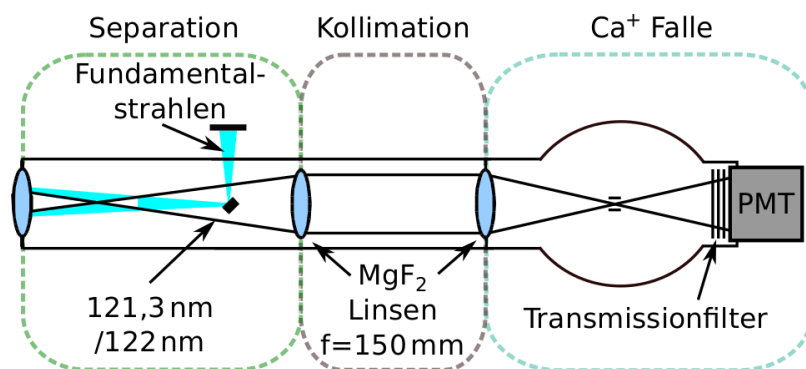


Abbildung 1.15.: **Separation und Fokussierung in die  $\text{Ca}^+$ -Falle.** Durch eine Magnesiumfluoridlinse werden sowohl die Fundamentalstrahlen als auch die vakuumultraviolette Strahlung fokussiert. Aufgrund der kleineren Dispersion haben die Fundamentalstrahlen ihren Fokus deutlich weiter hinten in der Vakuumapparatur. Da dort der vakuumultraviolette Strahl relativ groß ist, können die Fundamentalstrahlen mit einem kleinen Spiegel herausreflektiert werden. Durch die zwei folgenden Magnesiumfluoridlinsen wird der vakuumultraviolette Strahl zunächst kollimiert und anschließend in die  $\text{Ca}^+$ -Falle fokussiert, wo er mit den Calciumionen wechselwirkt. Mit einem Photomultiplier wird die optische Leistung der vakuumultravioletten Strahlung bestimmt. Die Transmissionsfilter blocken Strahlung bei einer Wellenlänge von 254 nm.

## 1.4. Messmethode zur Ionisation von Calciumionen

Mit dem in Abschnitt 1.3 vorgestellten experimentellen Aufbau wird vakuumultraviolette Strahlung erzeugt, die in die Ionenfalle fokussiert wird und dort mit den gefangenen Calciumionen wechselwirkt. Um eine Ionisation von gefangenen Calciumionen zu erreichen, wird Licht mit einer Wellenlänge von 121,3 nm eingestrahlt. Die Ionenfalle ist eine Paulfalle, bestehend aus vier Zylinderstäben und zwei Endkappen. Die Messungen zur Ionisation von gefangenen Calciumionen sind in Publikation 3 (Abschnitt 2.3) zusammengefasst. Die experimentelle Vorgehensweise wird im Folgenden dargelegt. Zunächst werden die aus einem geheizten Ofen austretenden Calciumatome mit einem gepulsten Laser bei 532 nm in der Fallenregion ionisiert. Die elektrischen Felder der Paulfalle sorgen für einen räumlichen Einschluss der Calciumionen. In Abbildung 1.16 ist ein reduziertes Energieniveauschema von  $\text{Ca}^+$  mit den für die Messungen relevanten Übergängen gezeigt. Durch Einstrahlen eines Lasers bei einer Wellenlänge von 397 nm, die resonant zum  $4^2\text{S}_{1/2} - 4^2\text{P}_{1/2}$ -Übergang ist, werden die Calciumionen gekühlt. Zusätzlich werden Laser der Wellenlängen 866 nm und 854 nm eingestrahlt, um eine Besetzung der metastabilen Zustände  $3^2\text{D}_{3/2}$  und  $3^2\text{D}_{5/2}$  zu vermeiden und einen effizienten Kühlprozess zu garantieren. Das Streulicht, das durch kontinuierliche

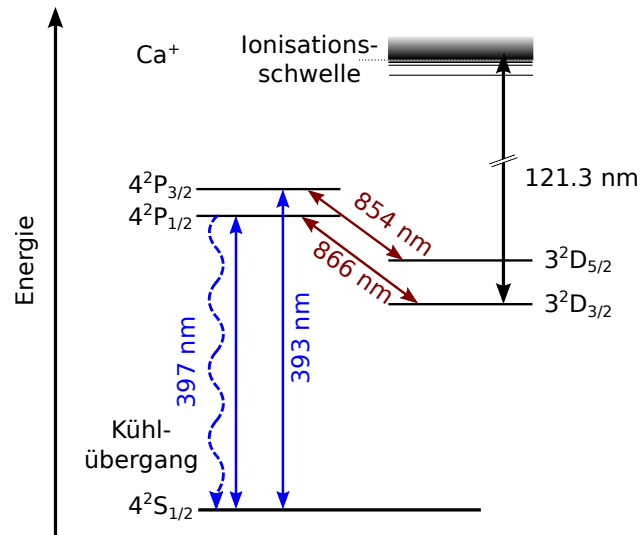


Abbildung 1.16.: **Ionisation von Calciumionen.** Mit dem Lichtfeld bei 397 nm werden die Ionen gekühlt und zur Fluoreszenz angeregt. Gleichzeitig werden Lichtfelder bei 866 nm und 854 nm eingestrahlt, um Besetzung aus den metastabilen Zuständen  $3^2D_{3/2}$  und  $3^2D_{5/2}$  in den Grundzustand zurückzuführen. Vakuumultraviolettes Licht bei 121,3 nm führt zur Photoionisation der Calciumionen aus den metastabilen Zuständen.

Anregung des Kühlübergangs entsteht, wird mit einer Linse auf einen EMCCD-Chip (**e**lectron **m**ultiplying **c**harge-**c**oupled **d**evice) abgebildet. Auf diese Weise können die Positionen der einzelnen Calciumionen mit einer Genauigkeit von etwa  $1 \mu\text{m}$  bestimmt werden.

Für die Messungen in Abschnitt 2.3 wurden drei Calciumionen in die Falle geladen. Die gekühlten Ionen werden mit dem Laser bei 397 nm optisch in den  $3^2D_{3/2}$ -Zustand gepumpt. Danach wird für einige Millisekunden vakuumultraviolettes Licht der Wellenlänge 121,3 nm auf die Ionen eingestrahlt. Dieser Zyklus wird solange wiederholt, bis die Ionisation eines Calciumions erfolgt. Da ein doppelt ionisiertes Calciumatom keinen optischen Übergang aufweist, der resonant zu einem der eingestrahlt Laser ist, werden keine Photonen mehr gestreut und dieses  $\text{Ca}^{2+}$ -Ion ist auf der Kamera nicht mehr zu sehen. Trotz des doppelt so großen Verhältnis von Ladung zu Masse sind die  $\text{Ca}^{2+}$ -Ionen für die verwendeten Fallenparameter stabil. Durch sympathische Kühlung mit den anderen beiden Calciumionen entsteht ein stabiler gemischter Kristall. Die Länge eines gemischten Kristalls mit zwei äußeren  $\text{Ca}^+$  und einem  $\text{Ca}^{2+}$  ist gegenüber einem homogenen Kristall mit drei  $\text{Ca}^+$ -Ionen um ca. 25 % größer (siehe Abbildung 1.17).

Um das Modenspektrum eines heterogenen Kristalls mit einem  $\text{Ca}^{2+}$ -Ion zu untersuchen, wird eine Radiofrequenzspannung an die DC-Elektroden der Falle angelegt. Dadurch können verschiedene radiale Vibrationsmoden angeregt werden. Die Reso-

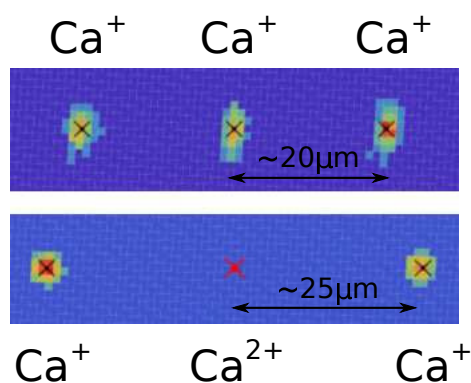


Abbildung 1.17.: **Homogener und inhomogener Ionenkristall.** Das obere Bild zeigt einen homogenen Kristall bestehend aus drei  $\text{Ca}^+$  (schwarze Kreuze). Das untere Bild zeigt einen inhomogenen Kristall, bestehend aus zwei  $\text{Ca}^+$  (schwarze Kreuze) auf den äußeren Positionen und einem  $\text{Ca}^{2+}$  (rotes Kreuz) auf der mittleren Position. Der Abstand der beiden äußeren Calciumionen ist aufgrund der höheren Ladung des  $\text{Ca}^{2+}$  größer als beim homogenen Kristall.

nanzfrequenz dieser Moden ergibt sich aus der Messung der Schwingungsamplituden, die sich aus den mit der Kamera aufgenommenen Fluoreszenzbildern der Calciumionen bestimmen lässt.

Die geometrische Struktur eines Kristalls hängt vom Verhältnis zwischen quadrierter radialer und axialer Fallenfrequenz ab, das durch den Anisotropieparameter charakterisiert wird. Je nach eingestellten Fallenparametern bildet der Kristall entweder eine lineare oder eine Zickzack-Struktur aus. Aufgrund des unterschiedlichen Ladung zu Masse Verhältnis von  $\text{Ca}^{2+}$ -Ionen wird erwartet, dass der Übergang zwischen linearer und Zickzack-Struktur für heterogene Kristalle im Vergleich zu homogenen Kristallen bei anderen kritischen Anisotropieparametern auftritt. Dieser Phasenübergang kann untersucht werden, indem die Struktur des Kristalls beobachtet wird, während die Amplitude des RF-Fallenfelds und auf diese Weise der Anisotropieparameter verändert wird.

## 1.5. Messmethode zur Rydberganregung von Calciumionen

Um eine Rydberganregung von gefangenen Calciumionen zu erreichen, wird die in 1.3 vorgestellte kontinuierliche Laserquelle bei einer Wellenlänge um 122,04 nm betrieben. Als Ionenfalle wird sowohl die in Publikation 3 beschriebene Paulfalle als auch eine Mikrofalle, ähnlich der in [JGBW<sup>+</sup>14] beschriebenen Falle, verwendet. Die experimentelle Vorgehensweise zu den in Publikation 4 (Abschnitt 2.4) vorgestellten Ergebnissen zur Rydberganregung von gefangenen Calciumionen wird im Folgenden dargelegt.

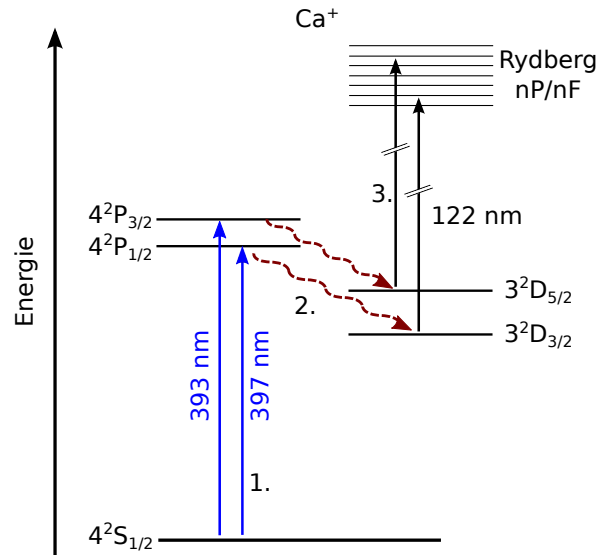


Abbildung 1.18.: **Rydberganregung von Calciumionen.** Durch Einstrahlen von Lichtfeldern bei 397 nm bzw. 393 nm (1.) und anschließendem spontanen Zerfall (2.) wird das Ion in dem metastabilen Niveau  $3^2D_{3/2}$  bzw.  $3^2D_{5/2}$  präpariert. Anschließend überführt das Lichtfeld bei einer Wellenlänge von 122 nm das Ion in einen hochliegenden Rydbergzustand (3.).

Wie in Abschnitt 1.4 beschrieben, werden Laser bei 397 nm, 866 nm und 854 nm zum Kühlen der Calciumionen und für die Fluoreszenzdetektion verwendet.

Für die Rydberganregung der Calciumionen wird folgender Zyklus durchgeführt: Zunächst werden alle Lichtfelder geblockt. Dann werden die gekühlten Calciumionen mit Licht bei einer Wellenlänge von 397 nm aus dem Grundzustand optisch in den  $3^2D_{3/2}$ -Zustand gepumpt, der den Ausgangszustand für die Rydberganregung darstellt. Anschließend wird über einen Zeitraum von mehreren zehn Millisekunden vakuumultraviolettes Licht mit einer Wellenlänge von etwa 122 nm eingestrahlt (siehe Abbildung 1.18).

Aufgrund der Auswahlregeln kann die Einphotonenanregung entweder in einen nP-Rydbergzustand (Hauptquantenzahl  $n$ , Nebenquantenzahl  $L = 1 \hat{=} P$ ) oder in einen nF-Rydbergzustand (Nebenquantenzahl  $L = 3 \hat{=} F$ ) erfolgen. Ein nP-Rydbergzustand zerfällt zum größten Teil in den Grundzustand  $4^2S_{1/2}$  und in die metastabilen Zustände  $3^2D_{3/2}$  und  $3^2D_{5/2}$ , während für einen nF-Rydbergzustand (Nebenquantenzahl  $L = 3 \hat{=} F$ ) die Besetzung in die metastabilen Zustände  $3^2D_{3/2}$  und  $3^2D_{5/2}$  übergeht.

Da die Lebensdauer der angeregten Rydbergzustände mit einigen zehn Mikrosekunden relativ klein ist, erfolgt der Nachweis der Anregung indirekt über die Detektion der Endzustände. Unterscheidet sich der Endzustand vom Ausgangszustand ( $3^2D_{3/2}$ ) kann die Anregung nachgewiesen werden. Im Detail setzt sich der Detektionszyklus wie folgt zusammen (siehe Abbildung 1.19.a)): Durch Einstrahlen von Licht mit einer Wellenlänge von 393 nm wird mögliche Besetzung im Grundzustand durch optisches Pumpen in

den  $3^2D_{5/2}$  überführt. Zur Zustandsdetektion wird Licht bei 397 nm und 866 nm eingestrahlt. Für den Fall, dass die Rydberganregung erfolgreich war und sich die Besetzung im  $3^2D_{5/2}$  Zustand befindet, fluoresziert das Calciumion nicht (siehe Abbildung 1.19.b)) und die Rydberganregung konnte nachgewiesen werden. Ist die Rydberganregung nicht erfolgreich oder ist der angeregte Rydbergzustand in das Ausgangsniveau  $3^2D_{3/2}$  zerfallen, fluoresziert das Calciumion und es konnte keine Rydberganregung nachgewiesen werden.

Anregungs- und Detektionszyklus werden mehrfach wiederholt, um die Anregungswahrscheinlichkeit für die gewählte Wellenlänge des vakuumultravioletten Lichts statistisch zu bestimmen. Für die Messung einer Resonanz wird die Wellenlänge des vakuumultravioletten Lichts durchgestimmt und die Anregungswahrscheinlichkeit für jede Wellenlänge gemessen.

Alternativ zur Rydberganregung aus dem Ausgangszustand  $3^2D_{3/2}$ , kann auch aus dem  $3^2D_{5/2}$  Niveau angeregt werden (siehe Abbildung 1.18). Erfolgt die Anregung in ein nP-Zustand, zerfällt die Besetzung in die Niveaus  $4^2S_{1/2}$ ,  $3^2D_{3/2}$  und  $3^2D_{5/2}$ , im Fall eines nF-Rydbergzustands in die Niveaus  $3^2D_{3/2}$  und  $3^2D_{5/2}$  (siehe Abbildung 1.20.a)). Durch Einstrahlen von Lichtfeldern bei 397 nm und 866 nm wird überprüft, ob die Anregung erfolgreich war. Die Rydberganregung wird nachgewiesen, falls die Besetzung sich im  $4^2S_{1/2}$  oder  $3^2D_{3/2}$  befindet. In diesem Fall fluoresziert das Calciumion (siehe Abbildung 1.20.b)). War die Rydberganregung nicht erfolgreich oder ist das Calciumion in den  $3^2D_{5/2}$ -Zustand zerfallen, fluoresziert das Ion nicht und es konnte keine Anregung nachgewiesen werden.

Bei der Suche nach den Resonanzfrequenzen der Rydbergübergänge aus Publikation 4 wurde sowohl das metastabile  $3^2D_{3/2}$ - als auch das  $3^2D_{5/2}$ -Niveau als Ausgangszustand verwendet. Da die in [XXZ<sup>+</sup>98] experimentell bestimmten Resonanzfrequenzen nicht reproduziert werden konnten und die Unsicherheit der theoretischen Vorhersagen [SKFK<sup>+</sup>11] zu groß ist, war es notwendig, einen Bereich von etwa 180 GHz auf mögliche Übergänge zu überprüfen.



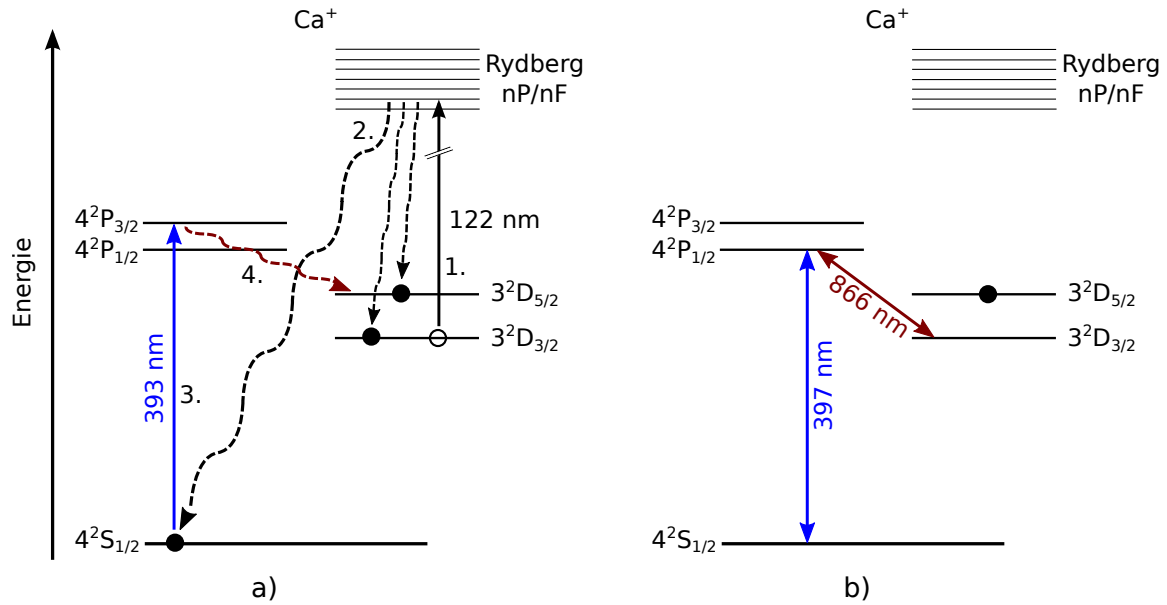


Abbildung 1.19.: **Detektionsschema für eine Rydberganregung aus dem  $3^2D_{3/2}$ -Niveau.** a) Das Calciumion ist im  $3^2D_{3/2}$ -Niveau präpariert (Kreis) und Licht bei 122 nm wird eingestrahlt (1.). Erfolgt die Rydberganregung in ein nP-Niveau, zerfällt der angeregte Zustand hauptsächlich in die Zustände  $4^2S_{1/2}$ ,  $3^2D_{3/2}$  und  $3^2D_{5/2}$  und für ein nF-Niveau in die Zustände  $3^2D_{3/2}$  und  $3^2D_{5/2}$  (ausgefüllte Kreise) (2.). Mögliche Besetzung im Grundzustand wird durch Einstrahlen von Licht bei 393 nm und dem anschließenden spontanen Zerfall in das  $3^2D_{5/2}$  Niveau überführt. b) Falls sich das Calciumion nach erfolgreicher Rydberganregung und optischem Umpumpen im Zustand  $3^2D_{5/2}$  befindet, kann die Anregung nachgewiesen werden, indem Licht bei 397 nm und 866 nm eingestrahlt wird. In diesem Fall fluoresziert das Ion nicht. Falls die Rydberganregung nicht erfolgt ist oder das Ion nach erfolgreicher Rydberganregung in den Ausgangszustand  $3^2D_{3/2}$  zurückfällt, fluoresziert das Ion und eine Anregung kann nicht nachgewiesen werden.

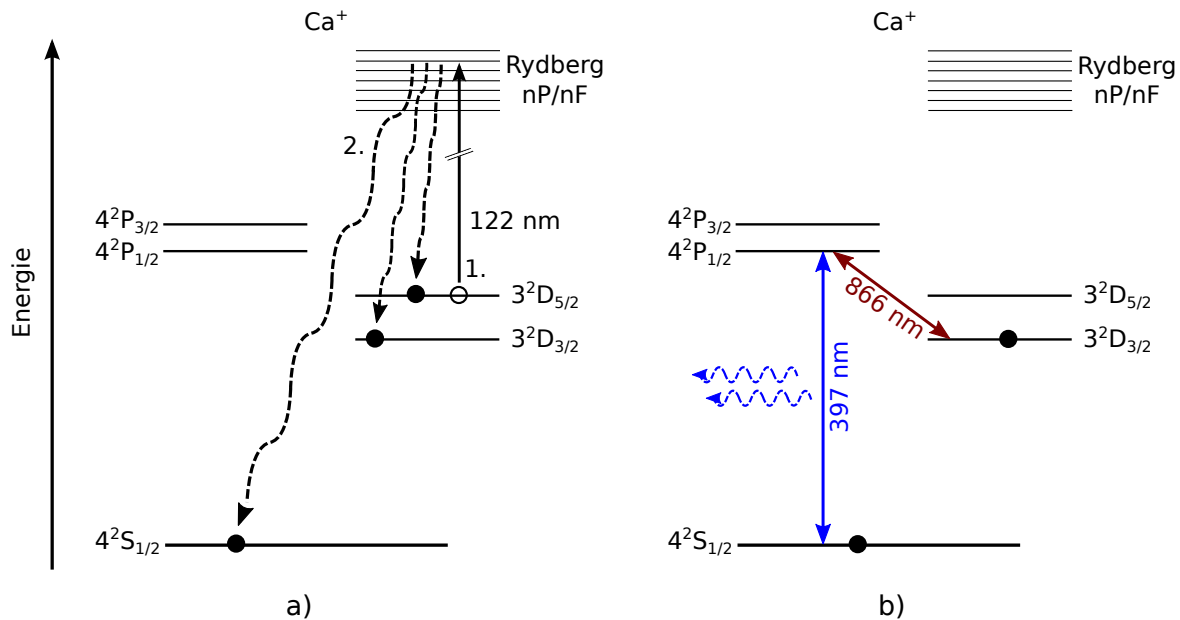


Abbildung 1.20.: **Detektionsschema für eine Rydberganregung aus dem  $3^2D_{5/2}$ -Niveau.** a) Das Calciumion ist im  $3^2D_{5/2}$ -Niveau (Kreis) präpariert und Licht bei 122 nm wird eingestrahlt (1.). Erfolgt die Rydberganregung in ein nP-Niveau, zerfällt der angeregte Zustand hauptsächlich in die Zustände  $4^2S_{1/2}$ ,  $3^2D_{3/2}$  und  $3^2D_{5/2}$ , im Fall eines nF-Niveaus in die Zustände  $3^2D_{3/2}$  und  $3^2D_{5/2}$  (ausgefüllte Kreise) (2.). b) Falls sich das Calciumion nach erfolgreicher Rydberganregung im Zustand  $4^2S_{1/2}$  oder  $3^2D_{3/2}$  befindet, kann die Anregung nachgewiesen werden, indem Licht bei 397 nm und 866 nm eingestrahlt wird. In diesem Fall fluoresziert das Ion, wie im Bild dargestellt. Falls die Rydberganregung nicht erfolgt ist oder das Ion nach erfolgreicher Rydberganregung in den Ausgangszustand  $3^2D_{5/2}$  zurückfällt, fluoresziert das Ion nicht und eine Anregung kann nicht nachgewiesen werden.

## 1.6. Identifikation von Rydbergzuständen

Zur Identifikation von gemessenen Rydbergresonanzen mit Quantenzahlen ist ein Vergleich der experimentellen Daten mit theoretischen Berechnungen nötig. Die Lage der Energieniveaus lässt sich bei alkaliartigen Atomen und Ionen durch die Quantendefektheorie berechnen [Sea83]. Die Anregungsenergie aus dem Grundzustand der Rydbergniveaus lässt sich im nichtrelativistischen Grenzfall durch folgende Formel bestimmen:

$$E_{n,\delta_L} = E_{Ion} - \frac{hcR_\infty Z^2}{1 + \frac{m_e}{m_{Ca^+}}} \times \frac{1}{(n - \delta_L)^2}, \quad (1.13)$$

wobei  $E_{Ion}$  die Ionisierungsenergie aus dem Grundzustand,  $h$  die Planck-Konstante,  $R_\infty$  die Rydbergkonstante,  $Z$  die Ladungszahl des Kernbereichs,  $m_e$  die Elektronenmasse,  $m_{Ca^+}$  die Masse eines Calciumions,  $n$  die Hauptquantenzahl und  $\delta_L$  der Quantendefekt ist. Der Ausdruck  $hcR_\infty = 13,6 \text{ eV}$  ist die bekannte Bindungsenergie eines Grundzustandelektrons im Wasserstoff. Die Ähnlichkeit von Gleichung (1.13) zur Energieformel des Wasserstoffs resultiert daraus, dass bei alkaliartigen Atomen oder Ionen das Valenzelektron bei großen Abständen zum Kernbereich in guter Näherung ein Potential  $\sim Z/r$  analog zum Wasserstoffatom (mit  $Z=2$ ) erfährt. Durch Subtraktion des Parameters  $\delta_L$  von der Hauptquantenzahl wird die Abweichung des Potentials vom Wasserstoffpotential berücksichtigt, die bei kleinen Abständen des Valenzelektrons zum Kernbereich auftritt. Die Abhängigkeit des Quanteneffekts von der Drehimpulsquantenzahl  $L$  ergibt sich aus den unterschiedlichen Aufenthaltswahrscheinlichkeiten des Elektrons im Kernbereich für verschieden  $L$ -Quantenzahlen. Befindet sich das Elektron in einem Zustand mit kleiner Nebenquantenzahl  $L$  so hat die Ortswellenfunktion einen relativ großen Überlapp mit dem Kernbereich. Dadurch erfährt es eine größere Anziehung und hat somit eine höhere Bindungsenergie verglichen zum Wasserstoffatom. Der Wert des Quantendefekts  $\delta_L$  ist in diesem Fall groß. Im umgekehrten Fall, für große Nebenquantenzahl  $L$ , geht der Wert des Quantendefekts gegen Null, da sich das Elektron kaum im Kernbereich aufhält. Die Bindungsenergie entspricht näherungsweise der des Wasserstoffatoms (mit  $Z=2$ ). In Tabelle 1.1 sind die Quantendefekte von  $Ca^+$  für  $L=S,P,D,F,G$  ( $L=0,1,2,3,4$ ) aufgeführt [MLLZ08].

In [XXZ<sup>+</sup>98] wurden die Anregungsenergien von 51 aufeinander folgenden Rydbergresonanzen in  $Ca^+$  gemessen. An diesem Beispiel lässt sich zeigen, wie man bei der

Tabelle 1.1.: **Quantendefekte von  $Ca^+$**  [MLLZ08].

$\delta_S$	1,800
$\delta_P$	1,437
$\delta_D$	0,623
$\delta_F$	0,026
$\delta_G$	0,006

Tabelle 1.2.: **Quantendefekte.** Der ersten beobachteten Rydbergresonanz werden verschiedene Hauptquantenzahlen zugewiesen. Aus einem Fit von Gleichung (1.14) an die experimentellen Daten aus [XXZ+98] erhält man den Quantendefekt.

erste Resonanz	Quantendefekt
$n=37$	$-0,48\pm 0,05$
$n=38$	$0,52\pm 0,05$
$n=39$	<b><math>1,51\pm 0,04</math></b>
$n=40$	$2,51\pm 0,05$
$n=41$	$3,52\pm 0,05$

Identifikation von Rydbergzuständen vorgehen kann. Da im betrachteten Experiment die Anregung aus einem S-Zustand erfolgt, müssen die Rydberzustände aufgrund der Auswahlregeln P-Zustände sein. Mit Gleichung (1.13),  $\delta_P=1,437$  und  $E_{Ion}=95751,87\pm 0,03 \text{ cm}^{-1}$  [KYRN14] berechnet man die Anregungsenergien der Rydbergzustände aus dem Grundzustand. Die kleinsten Abweichungen von Theorie- und experimentellen Werten ergeben sich, wenn man der ersten beobachteten Rydbergresonanz die Hauptquantenzahl 39 zuweist. Für kleine Hauptquantenzahlen ( $n \sim 40$ ) weichen die theoretischen Werte um etwa 1,5 % ab, für große Hauptquantenzahlen ( $n \sim 85$ ) bis zu 7 %. Während bei kleinen Hauptquantenzahlen eine eindeutige Identifizierung noch plausibel erscheint, liegen bei größeren Hauptquantenzahlen (ab  $n \sim 60$ ) die gemessenen Bindungsenergien zwischen zwei berechneten Energien, so dass eine Zuordnung nicht mehr möglich ist. Die Ungenauigkeit von Gleichung (1.13) ist demnach zu groß, um eine eindeutige Identifikation der Zustände zu gewährleisten. Stattdessen kann die Energiedifferenz zweier Rydbergzustände betrachtet werden. Die Energiedifferenz lässt sich mit Gleichung (1.13) zu

$$\Delta E_{n_1, n_2, \delta} = -\frac{R_\infty Z^2}{1 + \frac{m_e}{m_{Ca^+}}} \times \left( \frac{1}{(n_1 - \delta)^2} - \frac{1}{(n_2 - \delta)^2} \right), \quad (1.14)$$

bestimmen. Da im angeführten Experiment 51 aufeinander folgende Rydbergzustände gemessen wurden, können jeweils zwei benachbarte Niveaus  $n_1 = n$  und  $n_2 = n + 1$  betrachtet werden. Gleichung (1.14) kann an die experimentellen Daten angepasst werden, wobei  $\delta$  der Fitparameter ist. In Tabelle 1.2 sind die erhaltenen Werte für  $\delta$  für verschiedene Zuweisungen der Hauptquantenzahlen aufgeführt. Weist man der ersten beobachteten Rydbergresonanz die Hauptquantenzahl 39 zu, ergibt sich für den Quantendefekt  $\delta=1,52\pm 0,05$  erhält. Dieser Wert ist nah am erwarteten Wert  $\delta_P$  und führt zu einer eindeutigen Identifikation der Resonanzen. In Abbildung 1.21 sind die experimentellen Werte gezeigt und die angepasste Kurve gezeigt.

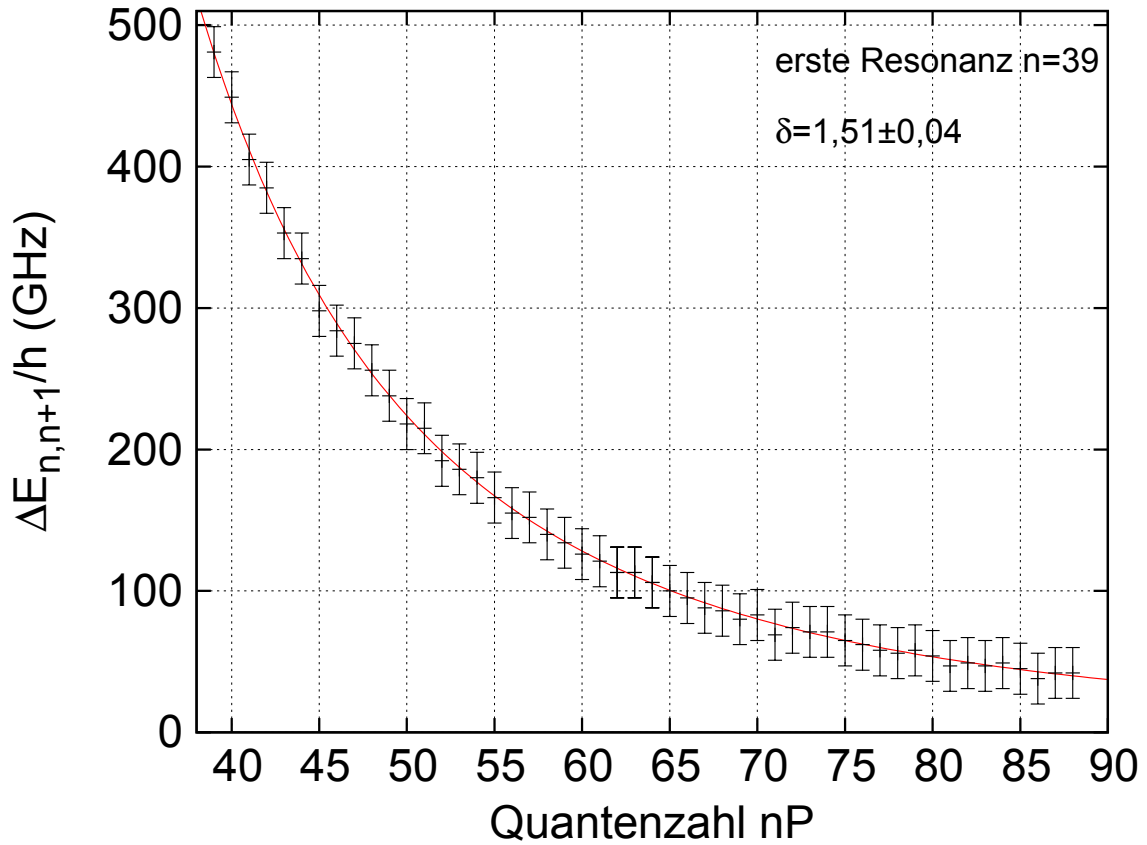


Abbildung 1.21.: **Energiedifferenzen Rydbergzustände.** Aufgetragen sind die Energiedifferenzen  $\Delta E_{n_1, n_2}$  der in [XXZ<sup>+</sup>98] gemessenen Rydbergresonanzen gegen die Quantenzahlen  $nP$ . Gleichung (1.14) ist an die Daten angepasst. Der ersten beobachteten Resonanz ist die Quantenzahl 39P zugeordnet.



## 2. Publikationen

In diesem Kapitel werden die vier Publikationen [SSKW13, SKW14, FPS<sup>+</sup>14, FBS<sup>+</sup>15] vorgestellt. Sie enthalten die experimentellen Ergebnisse, die in meiner Promotionszeit zwischen 2011 und 2015 erzielt wurden. Die Veröffentlichung [SSKW13] beschreibt ein leistungsstarkes Lasersystem bei 545 nm, das eines der drei fundamentalen Felder bereitstellt, die für das Vierwellenmischen in Quecksilber verwendet werden. Dieses System wurde für die Rydberganregung von Calciumionen auf eine Wellenlänge von 555 nm optimiert. [SKW14] beschreibt eine Methode zur effizienten Frequenzverdopplung in einem periodisch gepolten Kristall, bei der der infrarote Strahl zwei Mal durch den Kristall geführt wird. Diese Methode kann bei der Erzeugung der fundamentalen Felder angewandt werden, um hohe und stabile Ausgangsleistungen und eine weite kontinuierliche Frequenzverstimmbbarkeit zu erhalten. Durch Verwendung von fundamentalen Feldern bei Wellenlängen von 254 nm, 408 nm und 540 nm wird durch Vierwellenmischen in Quecksilberdampf vakuumultraviolette Strahlung bei 121,3 nm erzeugt. Fokussiert man Licht dieser Wellenlänge auf einen gefangenen Ionenkristall entstehen durch Ionisierung gemischte Kristalle bestehend aus einfach und doppelt ionisierten Calciumatomen. In [FPS<sup>+</sup>14] werden Messungen vorgestellt, die an diesen heterogenen Kristallen durchgeführt wurden. Ersetzt man das fundamentale Feld bei 540 nm durch das erwähnte Lasersystem bei 555 nm, so erhält man durch Vierwellenmischen in Quecksilberdampf vakuumultraviolette Strahlung bei 122 nm. Strahlung bei dieser Wellenlänge wird auf einen Ionenkristall fokussiert, um einzelne Calciumionen in einen Rydbergzustand zu überführen. Die beobachteten Resonanzlinien werden in [FBS<sup>+</sup>15] präsentiert und eingehend analysiert.

## 2.1. Publikation 1: Faserverstärkersystem

### Ein einfrequenter Hochleistungsfaserverstärker im Dauerstrichbetrieb bei 1091 nm und Frequenzverdopplung zu 545,5 nm

Der Artikel „**A high power, continuous-wave, single-frequency fiber amplifier at 1091 nm and frequency doubling to 545.5 nm**“ wurde 2013 in *Laser Physics* veröffentlicht [SSKW13] und beschreibt ein leistungsstarkes, verstimmbares Lasersystem bei 1091 nm und eine anschließende Frequenzverdopplung zu 545,5 nm.

Die Veröffentlichung ist in vier Abschnitte unterteilt. In Abschnitt 1 wird eine kurze Einführung in den Forschungsstand von optischen Verstärkern, basierend auf Ytterbium-dotierten Glasfasern, die im nahinfraroten Spektralbereich emittieren, sowie von Frequenzverdopplungen in den grünen Spektralbereich gegeben. In Abschnitt 2 werden der zweistufige Aufbau des Ytterbium-Faserverstärkers vorgestellt und die Ausgangsspektren und -leistungen beider Stufen diskutiert. Abschnitt 3 enthält den Aufbau und die Ergebnisse zur Frequenzverdopplung in einem Überhöhungresonator mit einem Lithiumtriborat-Kristall und zur Frequenzverdopplung in einem periodisch gepolten MgO-dotierten Lithiumtantalat-Kristall. In Abschnitt 4 folgt eine Zusammenfassung. Die Messungen zu diesem Lasersystem wurden zu Beginn meiner Promotionszeit abgeschlossen. Anschließend wurde das System für die Emission bei einer Wellenlänge von 1110 nm und Frequenzverdopplung zu 555 nm optimiert: Beide Verstärkerstufen werden rückseitig gepumpt, was sowohl den Verstärkungsprozess der Signalwellenlänge verbessert als auch eine deutlich einfachere Einkopplung der Signalleistung in die dotierte Faser ermöglicht und so eine bessere Unterdrückung der Verstärkung bei parasitären Wellenlängen garantiert. Zwischen erster und zweiter Stufe wird ein entsprechender optischer Filter eingesetzt, der Licht bei ungewollten Wellenlängen blockt. Außerdem war der Einsatz eines neuen Signallasers bei 1110 nm nötig. Eine hohe Ausgangsleistung und gute Verstimbarkeit, die essentiell für die Rydberganregung von Calciumionen sind, konnte für das neue Lasersystem bei 555 nm erreicht werden.



# A high power, continuous-wave, single-frequency fiber amplifier at 1091 nm and frequency doubling to 545.5 nm

M Stappel<sup>1</sup>, R Steinborn, D Kolbe and J Walz

Institut für Physik, Johannes Gutenberg-Universität Mainz and Helmholtz-Institut Mainz, D-55099 Mainz, Germany

E-mail: [stappel@uni-mainz.de](mailto:stappel@uni-mainz.de), [r.steinborn@uni-mainz.de](mailto:r.steinborn@uni-mainz.de), [kolbed@uni-mainz.de](mailto:kolbed@uni-mainz.de) and [jochen.walz@uni-mainz.de](mailto:jochen.walz@uni-mainz.de)

Received 17 August 2012, in final form 13 March 2013

Accepted for publication 14 March 2013

Published 16 May 2013

Online at [stacks.iop.org/LP/23/075103](http://stacks.iop.org/LP/23/075103)

## Abstract

We present a high power single-frequency ytterbium fiber amplifier system with an output power of 30 W at 1091 nm. The amplifier system consists of two stages, a preamplifier stage in which amplified spontaneous emission is efficiently suppressed (>40 dB) and a high power amplifier with an efficiency of 52%. Two different approaches to frequency doubling are compared. We achieve 8.6 W at 545.5 nm by single-pass frequency doubling in a MgO-doped periodically poled stoichiometric LiTaO<sub>3</sub> crystal and up to 19.3 W at 545.5 nm by frequency doubling with a lithium-triborate crystal in an external enhancement cavity.

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

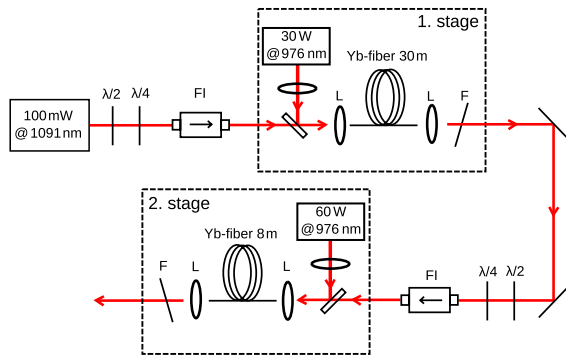
## 1. Introduction

Ytterbium fiber amplifiers pumped at 975 nm are excellent sources to provide amplification in the range of 1000–1150 nm [1]. The highest output powers above the 100 W level have been realized in the range of 1040–1085 nm [2–5], where ytterbium fibers exhibit the highest gain. For signal wavelengths beyond 1085 nm high power single-frequency operation is far more demanding. The main challenge is to overcome the higher gain of amplified spontaneous emission (ASE), which competes with the signal wavelength and, if not sufficiently suppressed, limits the available output power. Efficient suppression of ASE requires careful selection of the amplifying fiber parameters (like core diameter, length and dopant concentration) and multiple amplifier stages with ASE filtering [5, 6]. Furthermore, for amplification of narrow linewidth signals (in particular single-frequency operation), which has been demonstrated in

the past [7, 8], high intrafiber signal intensities can lead to stimulated Brillouin scattering (SBS), which also limits the available output power [9]. This effect is most important for the design of the final amplifier stage, which provides high output power. The selection of a large fiber core diameter reduces the intrafiber intensity and SBS can be avoided.

High power, narrow linewidth infrared laser sources enable efficient second-harmonic generation (SHG) in the green spectral region. Lithium triborate (LBO) is the ideal nonlinear crystal to produce high power levels of green light due to its tolerance to optical powers. By placing an LBO crystal inside a cavity a power of 134 W at 532 nm was achieved, only limited by available fundamental power [10]. In recent years periodically poled devices, especially MgO-doped periodically poled stoichiometric LiTaO<sub>3</sub> (MgO:PPLT), have turned out to be an attractive alternative for SHG of high power infrared laser sources near 1  $\mu\text{m}$  of wavelength [11, 12]. Their nonlinear coefficient is much higher, which makes single-pass SHG feasible. This simplifies the experimental setup considerably because no

<sup>1</sup> Author to whom any correspondence should be addressed.



**Figure 1.** The setup of the fiber amplifier system. Light from a fiber oscillator at 1091 nm is amplified in a first amplifier stage to medium output power and in a second amplifier to high output power. The two stages use a (free space) forward pumping scheme.  $\lambda/2$ : half-wave plate,  $\lambda/4$ : quarter-wave plate, FI: Faraday isolator, L: lens, F: ASE-filter.

external cavity or locking electronics are required. Up to 20 W of radiation in the green has been demonstrated [12], although at these high power levels thermal issues become increasingly severe [12, 13].

In our group, high power laser radiation at 545.5 nm is needed for a continuous-wave Lyman- $\alpha$  source based on four-wave sum frequency mixing in mercury vapor [14, 15] for future laser cooling of trapped antihydrogen [16–18] and Rydberg excitation of trapped  $\text{Ca}^+$  ions [19, 20]. To date, a combination of a commercial fiber amplifier system and a commercial frequency doubling unit has been used, producing a harmonic output power of up to 4.1 W at 545.5 nm [21].

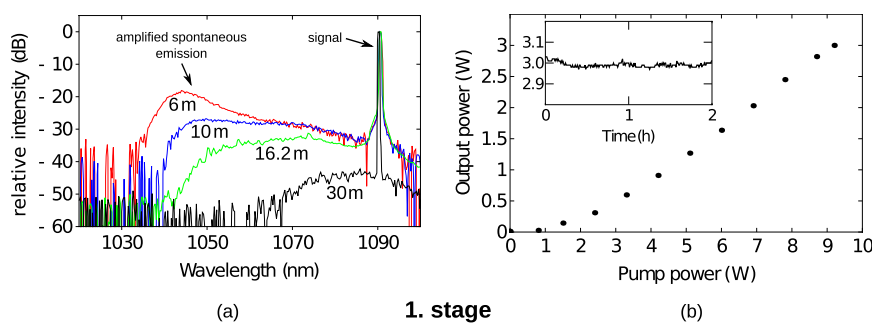
In this paper we describe a high power, single-frequency, continuous-wave ytterbium fiber amplifier system at 1091 nm and frequency doubling of the infrared light to 545.5 nm. In section 2 we give a detailed description of the two fiber amplifier stages. The first amplifier stage provides up to 3 W output power with efficient ASE-suppression ( $>40$  dB) and the second stage amplifies the output power to 30 W. In section 3 two different approaches of frequency doubling of the infrared light are compared. Single-pass SHG in a

$\text{MgO}:\text{PPLST}$  crystal and SHG with LBO in an external cavity are investigated. Maximum harmonic output powers of 8.6 W and 19.3 W at 545.5 nm are obtained, respectively.

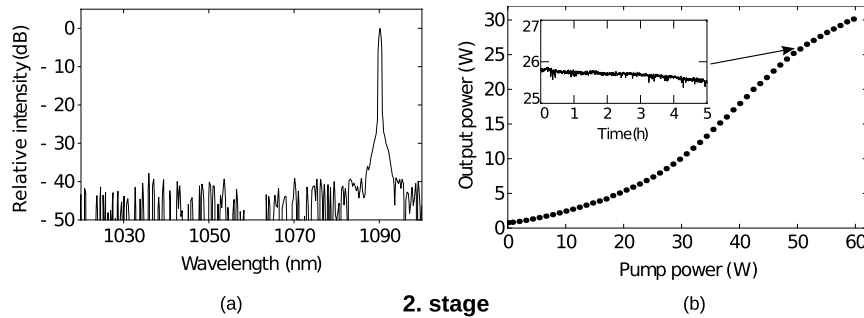
## 2. Fiber amplifier system

Figure 1 shows the setup of the fiber amplifier system. A single-frequency fiber laser (Koheras Adjustic Model RTAdY10PztS) with an output of 100 mW at 1091 nm serves as master oscillator and is amplified in two stages. Faraday isolators in front of the two amplifier stages protect the devices from backreflections (Polytec 716 TGG, transmission 80%, isolation  $>60$  dB). After each stage a filter (Semrock SEM-LP02-1064RS-25, cutoff at 1075 nm) rejects the generated amplified spontaneous emission (ASE). We use a forward pumping scheme, where both seed and pump light are (free space) combined by a dichroic mirror ( $R = 99.5\%$  at 976 nm,  $T = 92\%$  at 1091 nm) and coupled into the fiber.

The first amplifier stage is designed to provide medium output power with high ASE-suppression as a seed source for the second amplifier stage. The amplifier consists of an ytterbium-doped double-clad large-mode-area fiber (Nufern, LMA-YDF-10/400, core diameter 11.5  $\mu\text{m}$ , NA 0.075, pump cladding diameter 400  $\mu\text{m}$ , NA 0.46) which maintains single-mode operation. We coil the fiber to a radius of 20 cm. In [4] it was observed that this leads to a stable polarization of the amplified signal for non-polarization-maintaining fibers and was attributed to stress induced birefringence. A fiber-coupled laser diode module (Limo Lissotschenko, LIMO30-F200-DL980-T3) with up to 30 W at 976 nm is used to pump the active fiber. Different fiber lengths of 6, 10, 16.2 and 30 m are tested to optimize output power and ASE-suppression. To measure the output spectrum of the amplified light we place an optical spectrum analyzer (OSA) behind the first amplifier stage. Figure 2(a) shows spectral intensity versus wavelength for all tested fiber lengths. All output spectra exhibit a narrow peak at the signal wavelength, a broad maximum at smaller wavelengths and a noise floor, which corresponds to the OSA background noise. The broad maximum results from ASE and its suppression compared to the signal peak strongly depends on the fiber length. It



**Figure 2.** (a) Optical output spectra for fiber lengths of 6, 10, 16.2 m at a pump power of 10.5 W and 30 m at a pump power of 8.7 W. Reabsorption in longer fibers reduces the amplified spontaneous emission and shifts its maximum towards longer wavelengths. (b) Output power versus pump power of the first amplifier stage. The inset shows long-time stability at maximum output power.



**Figure 3.** (a) The optical output spectrum of the second amplifier stage. Amplified spontaneous emission is completely suppressed. (b) Output power versus pump power of the second amplifier stage. The deviation from linear dependence is caused by a shift in pump wavelength with pump power. The inset shows stable operation at about 26 W over several hours.

is reduced with longer fiber length and the maximum of the ASE distribution is shifted to longer wavelengths due to reabsorption. We select the 30 m fiber, since it provides the best ASE-suppression of about 40 dB and the highest output power. Figure 2(b) shows the output power of the first stage as a function of pump power. We achieve a maximum output power of 3 W corresponding to a slope efficiency of 42%. This power is stable over hours, as shown in the inset of figure 2(b). At higher pump powers, ASE becomes too strong, which leads to self-pulsing at these wavelengths, and damage to the fiber's front facet occurs. To test beam quality we use a beam profiling camera (DataRay, WinCamD). An  $M^2$  value of 1.13 is measured, which is close to single mode. This is expected for the selected fiber and ensures effective seeding of the second stage.

For the second amplifier stage we choose an 8 m long fiber with a large core diameter of 30  $\mu\text{m}$  (Nufern, LMA-YDF-30/400, core NA 0.06) to avoid too high intensities in the fiber, which may limit the available output power as a result of stimulated Brillouin scattering [7]. The second stage is seeded with the radiation from the first amplifier stage, which is operated at about 2 W. A fiber-coupled laser diode module with up to 60 W at 976 nm (Lumics, LU0975C060-51522A00) is used to pump the active fiber. Again, we analyze the output spectrum with an OSA. The output spectrum is shown in figure 3(a) and has a peak at the signal wavelength. At all other wavelengths there is only background noise. The absence of the broad ASE maximum shows that the seed power is sufficient to suppress ASE completely. Figure 3(b) shows the amplified signal power plotted against the pump power. The amplified signal power deviates from the expected linear dependence. This is caused by the power dependence of the wavelength of the pump laser, which starts at 968 nm and increases linearly to 976 nm at maximum. At small pump powers the wavelength is far away from the absorption peak of ytterbium at 975 nm. Therefore, only a small fraction of the coupled pump power is absorbed in the core and the efficiency is low. As the pump power increases the wavelength of the pump light comes closer to the absorption peak, more pump power is absorbed and the efficiency rises. The maximum output power of the second amplifier stage is 30 W with an efficiency of 52%, which

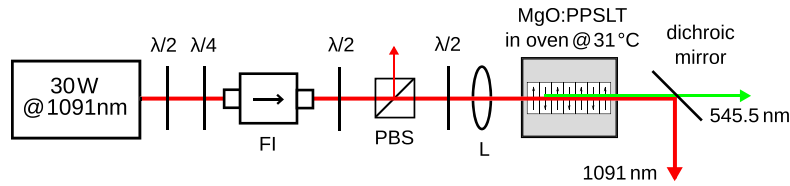
is only limited by available pump power. For pump powers above 15 W it is necessary to cool the connector at the front end of the fiber with a fan to prevent it from heating up strongly. Still, a constant but small decrease in output power can be observed over hours, as shown in the inset of figure 3(b). We assume that this is due to a self-induced process where some residual heating leads to a misalignment of the fiber, which lowers the pump light coupling efficiency and leads to more heating. However, this effect can be minimized by realigning the fiber coupling after some time of operation. We use a beam profiling camera to test the beam quality and find that it is close to single mode ( $M^2 = 1.2$ ). Although the fiber is not explicitly polarization maintaining, we observe no change of the polarization over several hours of operation.

### 3. Frequency doubling to 545.5 nm

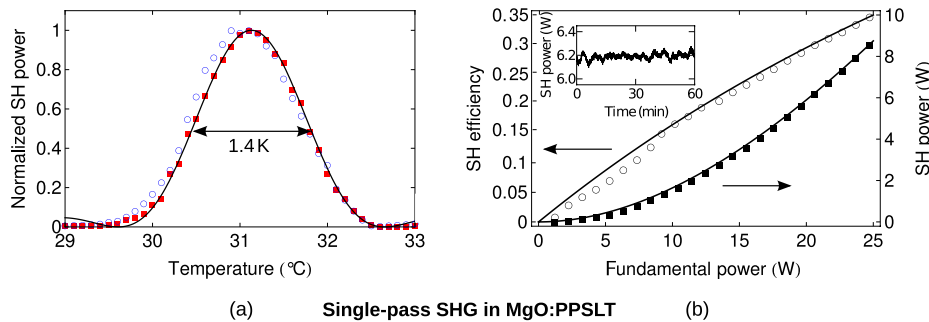
In this section we present two different approaches to frequency doubling the infrared light at 1091 nm. Firstly, we use a periodically poled MgO:PPLT crystal, which has a high nonlinear coefficient and thus assures high conversion efficiencies even in a single-pass second-harmonic generation (SHG) scheme. Secondly, we investigate frequency doubling in an LBO crystal, which has a smaller nonlinear coefficient but a higher tolerance to optical powers. Therefore, one can place the LBO crystal in an optical cavity, which enhances the infrared power and makes high harmonic output powers possible.

#### 3.1. Single-pass second-harmonic generation in MgO:PPLT

The experimental setup for second-harmonic generation in the periodically poled crystal is illustrated in figure 4. The fiber amplifier system described above is used as the fundamental pump source. To prevent backreflections a Faraday isolator (Moltec MT-5/1091-60, transmission 89%, isolation >60 dB) is placed behind the fiber amplifier. Although the Faraday isolator is specified for high power levels, we observe a considerable change in beam properties with increasing infrared power, which can be attributed to thermal lensing in the TGG (terbium gallium garnet) crystal. To avoid this



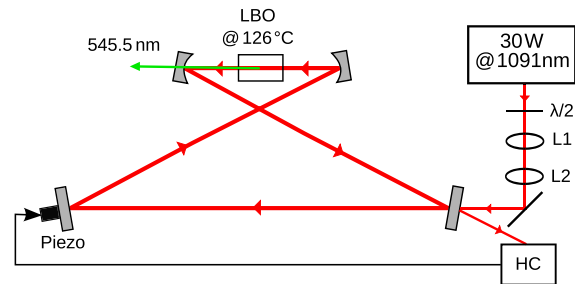
**Figure 4.** Experimental setup for single-pass SHG in MgO:PPLT.  $\lambda/2$ : half-wave plate,  $\lambda/4$ : quarter-wave plate, FI: Faraday isolator, PBS: polarizing beam splitter, L: lens.



**Figure 5.** (a) The temperature tuning curves of MgO:PPLT for 1 mW of green output power (red squares) and 6 W of green output power (open blue circles). (b) Second-harmonic (SH) efficiency (open circles) and second-harmonic power (black squares) as a function of fundamental power for single-pass SHG in MgO:PPLT.

problem the maximum available infrared power is transmitted through the Faraday isolator and the incident power on the nonlinear crystal is adjusted by a half-wave plate and a polarizing beam splitter. An additional half-wave plate adjusts the correct polarization for SHG.

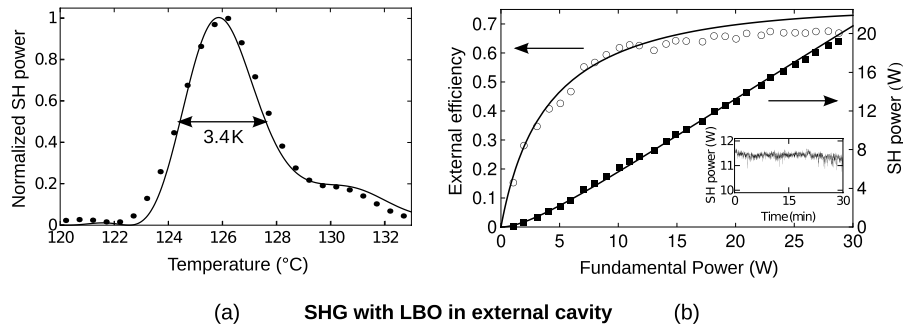
The beam is focused in the center of a 30 mm long MgO:PPLT crystal (HC Photonics) with a beam waist radius of  $34 \mu\text{m}$ , which is slightly larger than the optimum waist radius of  $29 \mu\text{m}$ , defined by the Boyd–Kleinman parameter  $l/b = 2.84$  [22], where  $l$  is the crystal length and  $b$  is the confocal parameter. The crystal contains a single grating period of  $8.61 \mu\text{m}$  and is antireflection coated for both the fundamental ( $R < 0.5\%$ ) and the harmonic wavelength ( $R < 1\%$ ). It is mounted in a home-made oven, which is temperature stabilized with a  $30 \times 30 \text{ mm}^2$  Peltier element. To ensure good heat exchange an indium foil is used between the oven and the crystal surface. The generated harmonic radiation is separated from the fundamental radiation by a dichroic mirror ( $R > 99.9\%$  at 1091 nm,  $T > 95\%$  at 545.5 nm). Figure 5(a) shows the temperature tuning curves for low power ( $\sim 1 \text{ mW}$ ) and high power ( $\sim 6 \text{ W}$ ) of generated harmonic radiation. The experimental data are in good agreement with the theoretical  $\text{sinc}^2$ -function. For the low power measurement the phase matching temperature is  $31.3^\circ\text{C}$  and the full width at half-maximum bandwidth is 1.4 K. For the high power measurement the phase matching temperature is only slightly reduced to  $31.0^\circ\text{C}$  with the same acceptance bandwidth. At high harmonic powers a deviation from the symmetric shape can occur [23]. Here, at comparable powers such a behavior cannot be observed. This verifies the uniform heat distribution inside the crystal, which can be attributed to the high thermal



**Figure 6.** Experimental setup for SHG in an external cavity. L1, L2: mode matching lenses, HC: Häscher-Couillaud lock.

conductivity of the MgO:PPLT crystal and the excellent thermal contact between the crystal and the oven.

The measured second-harmonic output power and the conversion efficiency as a function of incident fundamental power are shown in figure 5(b). A maximum harmonic power of 8.6 W and an efficiency of 35% are achieved. The theoretical  $\tanh^2$ -function is matched to the experimental data (solid curve), which results in a normalized conversion efficiency of  $1.8\% \text{ W}^{-1}$  and an effective nonlinear coefficient of  $10.9 \text{ V pm}^{-1}$ . The deviation from the specified value of  $13.8 \text{ V pm}^{-1}$  can be attributed to non-ideal focusing conditions and beam quality. Even at the maximum fundamental power no saturation of conversion efficiency can be observed, indicating that thermal dephasing does not occur. The power stability of the harmonic radiation at high power is shown in the inset of figure 5(b). A peak-to-peak fluctuation of 3% is observed over 1 h. To investigate the beam quality



**Figure 7.** (a) The temperature tuning curve of the LBO crystal. (b) External SH efficiency (open circles) and SH power (black squares) as a function of fundamental power for SHG in an external cavity.

we use a beam profile camera. At all harmonic power levels the  $M^2$  values are  $< 1.1$ .

### 3.2. Second-harmonic generation with LBO in an external cavity

In figure 6 the experimental setup for second-harmonic generation in the external cavity is shown. Two lenses match the infrared beam to the resonator eigenmode. The external cavity is set up in the bow-tie configuration with two concave mirrors (curvature radius 50 mm,  $R > 99.9\%$  at 1091 nm,  $T > 95\%$  at 545.5 nm), a plane mirror on a piezo-actuator ( $R > 99.9\%$  at 1091 nm,  $T > 95\%$  at 545.5 nm) and a plane input coupler ( $R = 92\%$  at 1091 nm). Between the two concave mirrors a focus is generated in the center of the 15 mm long LBO crystal. The LBO crystal is AR-coated for both the fundamental ( $R < 0.2\%$ ) and the harmonic wavelength ( $R < 0.5\%$ ) and temperature phase matched. The beam reflected at the input coupler is analyzed by the Hänsch–Couillaud technique and the resulting error signal is fed to the locking electronics which controls the piezo-actuator.

Figure 7(a) shows the temperature tuning curve of the LBO crystal. The phase matching temperature is  $126^\circ\text{C}$  and the temperature bandwidth is 3.4 K. The temperature tuning curve has an asymmetric shape caused by the strong focusing of the infrared beam. We matched a theoretical curve to our data (solid curve), which is valid for focused Gaussian beams [20]. For the matched curve we attain a waist radius of  $15\ \mu\text{m}$ . This corresponds to a Boyd–Kleinman parameter of  $l/b = 7.5$ , which is 2.6 times larger than the optimum value of  $l/b = 2.84$ . As a consequence of this non-ideal Boyd–Kleinman parameter the SH efficiency is decreased by a factor of about 2. This is in agreement with the measured single-pass conversion efficiency of  $0.018\% \text{ W}^{-1}$ , which is half of the optimum value. However, at intra-cavity frequency doubling this parameter is less critical compared to single-pass frequency doubling, as the lower conversion efficiency is compensated to some extent by increased enhancement of the infrared light. Figure 7(b) shows the external conversion efficiency (second-harmonic output power divided by fundamental input power) and second-harmonic output power as a function of the input fundamental power. A maximum second-harmonic power

of 19.3 W and external conversion efficiency of 67% are measured. The theoretical curve is matched to the experimental data, which yields a mode matching factor of 0.79. This is the main limiting factor of external efficiency at high incident power levels. However, the external efficiency deviates from the theoretical values, when the fundamental power is increased beyond 18 W, and stays nearly constant for higher infrared input powers. We believe that this is due to a thermally induced change of the cavity mode leading to a decrease of the mode matching factor. The output power was recorded over 30 min to test long-term stability (inset of figure 7(b)). A maximum peak–peak fluctuation of 5% appears and only a slight decrease of harmonic power can be observed. To analyze the beam quality we used a beam profile camera. At all harmonic power levels the  $M^2$  values are  $< 1.1$ .

## 4. Conclusion

A high power, continuous-wave, single-frequency ytterbium fiber amplifier system has been demonstrated, which is capable of producing 30 W of infrared power at 1091 nm. There is no evidence of stimulated Brillouin scattering at this power level. The signal output may thus be further enhanced by using a pump laser with more power.

Single-pass SHG in MgO:PPSLT yields a harmonic power of 8.6 W at 545.5 nm. No degradation of SH efficiency at highest harmonic powers due to thermal dephasing was observed. Therefore additional fundamental power should increase the produced green power further. In comparison with frequency doubling in an external cavity, single-pass SHG is attractive, because of the experimental simplicity and the intrinsic stability.

Frequency doubling of the infrared light in an external cavity using LBO as a nonlinear medium with an output of 19.3 W at 545.5 nm was achieved. The produced harmonic light exhibited high beam quality and long-time stability.

## Acknowledgments

This work was supported by the German Ministry for Education and Research (BMBF) and by the State of Rhineland-Palatinate via the Research Centre ‘Elementary Forces and Mathematical Foundations’.

## References

- [1] Paschotta R, Nilsson J, Tropper A C and Hanna D C 1997 *IEEE J. Quantum Electron.* **33** 1049
- [2] Gray S, Liu A, Walton D, Wang J, Li M-J, Chen X, Ruffin A B, DeMeritt J A and Zenteno L A 2007 *Opt. Express* **15** 17044
- [3] Jeong Y et al 2005 *Opt. Lett.* **30** 459
- [4] Hildebrandt M, Frede M and Kracht D 2007 *Opt. Lett.* **32** 2345
- [5] Mermelstein M D, Brar K, Andrejco M J, Yablon A D, Fishteyn M, Headley C and DiGiovanni D J 2008 Fiber lasers V: technology, systems, and applications *Proc. SPIE* **6873** 68730L
- [6] Grot S, Bordais S, Jaouen Y, Allain J-Y, Loas G and Goldberg L 2003 *Electron. Lett.* **39** 1507-9
- [7] Nicolaescu R, Walther T, Fry E S and Muendel M 1999 *Appl. Opt.* **38** 1784
- [8] Zawischa I, Plamann K, Fallnich C, Welling H, Zellmer H and Tünnermann A 1999 *Opt. Lett.* **24** 469
- [9] Liem A, Limpert J, Zellmer H and Tünnermann A 2003 *Opt. Lett.* **28** 1537
- [10] Meier T, Willke B and Danzmann K 2010 *Opt. Lett.* **35** 3742
- [11] Tovstonog S V, Kurimura S and Kitamura K 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 051115
- [12] Sinha S, Hum D S, Urbanek K E, Lee Y-W, Digonnet M J F, Fejer M M and Byer R L 2008 *J. Lightwave Technol.* **26** 3866
- [13] Tovstonog S V, Kurimura S, Suzuki I, Takeno K, Moriwaki S, Ohmae N, Mio N and Katagai T 2008 *Opt. Express* **16** 11294
- [14] Scheid M, Kolbe D, Markert F, Hänsch T W and Walz J 2009 *Opt. Express* **17** 11274
- [15] Kolbe D, Beczkowiak A, Diehl T, Koglbauer A, Müllers A, Scheid M, Stappel M, Steinborn R and Walz J 2011 *PSAS: Proc. Int. Conf. of Precision Physics of Simple Atomic Systems (May-June 2010) Can. J. Phys.* **89** 25
- [16] Gabrielse G et al 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 113002
- [17] Andresen G B et al 2010 *Nature* **468** 673
- [18] Hänsch T W and Zimmermann C 1993 *Hyperfine Interact.* **100** 47
- [19] Schmidt-Kaler F, Feldker T, Kolbe D, Walz J, Müller M, Zoller P, Li W and Lesanovsky I 2011 *New J. Phys.* **13** 075014
- [20] Kolbe D, Scheid M and Walz J 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 063901
- [21] Markert F, Scheid M, Kolbe D and Walz J 2007 *Opt. Express* **15** 14476
- [22] Boyd G D and Kleinman D A 1968 *J. Appl. Phys.* **39** 3597
- [23] Chaitanya Kumar S, Samanta G K and Ebrahim-Zadeh M 2009 *Opt. Express* **17** 13711



## 2.2. Publikation 2: Frequenzverdopplung im Zweifachdurchgang

### **Frequenzverdopplung im Zweifachdurchgang durch einen MgO:PPSLT-Kristall mit einer Konversionseffizienz von 60 % im Dauerstrichbetrieb**

Der Artikel „**Continuous-wave, double-pass second-harmonic generation with 60% efficiency in a single MgO:PPSLT crystal**“ wurde 2014 in *Optics Letters* veröffentlicht [SKW14]. Darin wird eine Methode zur effizienten Frequenzverdopplung in einem periodisch gepolten Kristall vorgestellt. Für das verwendete Frequenzverdopplungsschema wurde ein Patent angemeldet [SKW13].

Die Veröffentlichung ist wie folgt aufgebaut. Zunächst wird ein kurzer Überblick zum aktuellen Forschungsstand bezüglich der Frequenzverdopplung in periodisch gepolten Kristallen gegeben und die Anforderungen beschrieben, die im Zusammenhang mit hohen optischen Leistungen in den Kristallen auftreten. Anschließend wird der experimentelle Aufbau der Frequenzverdopplung im Zweifachdurchgang vorgestellt und die erzielte Konversionseffizienz im Einfachdurchgang mit der im Zweifachdurchgang verglichen. Außerdem wird der Einfluss von der eingestellten Phase zwischen harmonischem und fundamentalem Lichtfeld auf die resultierende harmonische Leistung untersucht. Es wird ein theoretisches Modell zur Beschreibung der Frequenzverdopplung im Zweifachdurchgang vorgestellt, mit dem die Ergebnisse analysiert werden. Schließlich werden die erzielten Resultate zusammengefasst.



# Continuous-wave, double-pass second-harmonic generation with 60% efficiency in a single MgO:PPLT crystal

Matthias Stappel,<sup>1,\*</sup> Daniel Kolbe,<sup>1,2</sup> and Jochen Walz<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Institut für Physik, Johannes Gutenberg-Universität Mainz and Helmholtz-Institut Mainz, 55099 Mainz, Germany

<sup>2</sup>Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e. V., Institut für Technische Physik, Pfaffenwaldring 38-40, 70569 Stuttgart, Germany

\*Corresponding author: stappel@uni-mainz.de

Received February 12, 2014; revised April 8, 2014; accepted April 14, 2014; posted April 17, 2014 (Doc. ID 206301); published May 12, 2014

We present a double-pass scheme for high-efficiency, high-power, second-harmonic generation (SHG) in a single MgO-doped periodically poled stoichiometric lithium tantalate (MgO:PPLT) crystal. The device is pumped by a single-frequency, continuous-wave fiber amplifier laser system at a wavelength of 1091 nm. For the double-pass scheme, a conversion efficiency of 60% and a harmonic power of 12.8 W at a wavelength of 545.5 nm with a high beam quality of ( $M^2 < 1.2$ ) is achieved. Compared to single-pass SHG, a double-pass enhancement factor of more than two is observed at the highest fundamental pump power. © 2014 Optical Society of America

OCIS codes: (190.4360) Nonlinear optics, devices; (140.7300) Visible lasers.

<http://dx.doi.org/10.1364/OL.39.002951>

In the past, single-pass second-harmonic generation (SHG) in periodically poled nonlinear crystals turned out to be an attractive approach for frequency doubling of laser sources in the infrared wavelength region. Quasi-phase matching gives access to the large value of the nonlinear coefficient  $d_{33}$ . In this case, fundamental and second-harmonic waves propagate along a principal crystal axis, which avoids beam walk-off and degradation of the beam quality. As a consequence, it is possible to use long crystals.

At high harmonic powers in the green wavelength range, MgO:PPLT (MgO-doped periodically poled stoichiometric lithium tantalate) exhibits superior SHG performance compared to other periodically poled crystals (e.g., PPLT, periodically poled lithium niobate, and periodically poled potassium titanyl phosphate). This results from the high nonlinear coefficient  $d_{33} \sim 14$  pm/V, the low linear absorption at wavelengths in the green ( $\sim 1.6\%/cm$  [1]), and the high thermal conductivity (8.8 W/mK [2]), which avoids saturation of SHG efficiency due to thermal dephasing. Additionally, MgO:PPLT has a high resistance to photorefractive damage [2] and to green-induced infrared absorption (GRIIRA) [3]. Single-pass SHG efficiencies as high as 35% [4] and harmonic powers up to 19 W [5] have been reported.

A further increase in SHG efficiency can be achieved in a multicrystal arrangement [6]. In this setup, a conversion efficiency of 55% and 56% for two and three cascaded 30 mm long MgO:PPLT crystals was obtained, respectively. However, high fundamental powers led to a roll-off in conversion efficiency in both cases. At maximum harmonic power a slightly degraded beam quality was measured ( $M_x^2 < 1.6$  and  $M_y^2 < 1.3$ ).

An alternative approach to increase SHG efficiency is a double-pass or multi-pass scheme, where the fundamental pump wave and the generated harmonic wave are refocused into the nonlinear crystal two or more times. For an  $N$ -pass configuration with a nonlinear crystal of

length  $l$  the conversion efficiency scales with  $N^2l$ , which gives an enhancement of  $N^2$  compared to a single-pass configuration [7]. This multi-pass enhancement was demonstrated for low fundamental powers in the mW regime [7] and for medium fundamental powers in the low  $W$  regime [8]. Even higher conversion efficiencies and output powers can be reached by using enhancement cavities, where conversion efficiencies of over 90% and output powers of up to 134 W have been reported [9]. However, compared to multi-pass setups, additional optics and locking electronics is required and the setup is more complex.

In this Letter, we report a double-pass SHG configuration with an SHG conversion efficiency of 60% with an MgO:PPLT crystal, corresponding to a harmonic power of 12.8 W [10]. At the highest fundamental pump power, we observe a double-pass enhancement of more than two compared to a single-pass SHG in the same crystal.

The experimental setup of the double-pass SHG scheme is shown in Fig. 1. As a pump source we use a single-frequency, continuous-wave fiber laser amplifier system [4]. It has a maximum output power of 30 W at a wavelength of 1091 nm with a spectral linewidth of 60 kHz, an  $M^2 < 1.2$ , and polarization extinction ratio of 40:1. A Faraday isolator (FI) (MolTech MT-5/1091-60, isolation  $>60$  dB [11]) is used to protect the fiber amplifier from backreflections.

A fundamental power of 22 W is available behind the FI, which can be adjusted by a half-wave plate and a polarizing beamsplitter. The beam is focussed by a plano-convex lens and deflected into the crystal with a D-shaped mirror. The MgO:PPLT crystal (30 mm  $\times$  2 mm  $\times$  1 mm, HCPhotonics) has a single grating period of  $\Lambda = 8.61$   $\mu\text{m}$  and is antireflection coated for both the fundamental ( $R < 0.5\%$ ) and the harmonic wavelength ( $R < 1\%$ ). The crystal is mounted in a homemade copper oven, which is temperature stabilized to 32°C. Indium foil is used between the oven and the crystal surface to

2952 OPTICS LETTERS / Vol. 39, No. 10 / May 15, 2014

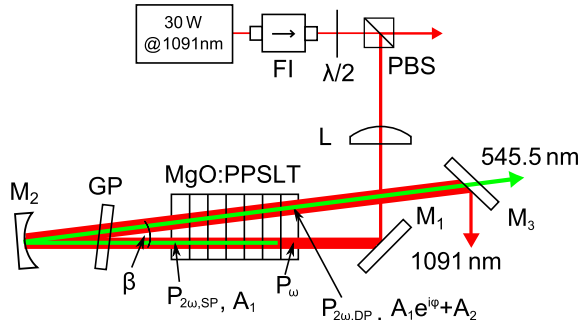


Fig. 1. Setup of double-pass second-harmonic generation in MgO:PPLST. FI, Faraday isolator;  $\lambda/2$ , half-wave plate; PBS, polarizing beam splitter; L, lens; GP, glass plate;  $M_1$ , D-shaped mirror;  $M_2$ , concave mirror;  $M_3$ , dichroic mirror;  $\beta$ , angle between first and second pass; A, field amplitude; P, crystal internal power. See text for further details.

ensure good thermal contact. The beam waist radius of  $40 \mu\text{m}$  in the crystal is chosen to be larger than the ideal waist radius  $w_{\text{opt}} = 29 \mu\text{m}$ , defined by the Boyd–Kleinman parameter  $\xi_{\text{opt}} = l/b = 2.84$  [12], where  $l$  is the crystal length,  $b = 2\pi w_{\text{opt}}^2 n_1 / \lambda$  is the confocal parameter,  $n_1$  is the refractive index of the fundamental wave in the crystal, and  $\lambda$  is the fundamental wavelength. The larger waist radius decreases the intensity inside the crystal and avoids damage.

For the second pass through the crystal, a concave mirror ( $M_2$ ,  $R = 75 \text{ mm}$ ) is used, which is highly reflective for both the fundamental and the harmonic wavelength ( $R > 99\%$  at 1091 and 545.5 nm). The concave mirror is set up in a confocal arrangement, to match the foci of the first and the second pass. An antireflection coated glass plate (GP) between the crystal and the concave mirror compensates for the phase shift of the fundamental and the harmonic wave caused by the dispersion in the air [13]. The concave mirror is tilted slightly to generate a small angle  $\beta$  ( $\lesssim 17 \text{ mrad}$ ) between the second pass and the incident fundamental beam. The incident beam is deflected on the outer aperture of the D-shaped mirror ( $M_1$ ) to separate the second pass from the incident fundamental beam. A dichroic mirror ( $M_3$ ,  $R > 99.9\%$  at 1091 nm,  $T = 99\%$  at 545.5 nm) separates the fundamental from the harmonic wave.

Figure 2 shows the harmonic power as a function of the fundamental power for single-pass (SP) and double-pass (DP) schemes. For the SP and DP schemes a maximum harmonic power of 5.7 and 12.8 W is achieved, respectively. Both the fundamental power  $P_1$  and the harmonic power  $P_2$  are crystal internal powers, where losses at the surfaces of optical elements for the incident fundamental wave (total loss of 2%, reflection at lens, D-shaped mirror and crystal surfaces) and the harmonic wave (total loss of 2%, reflection at crystal surfaces and dichroic mirror) are taken into account, while the crystal internal losses are neglected.

In the following paragraph we derive an expression for the generated SH power for the DP scheme. The used quantities are denoted in Fig. 1. The first pass of the infrared wave generates a harmonic wave with the complex field amplitude  $A_1$ . For gaussian beams and

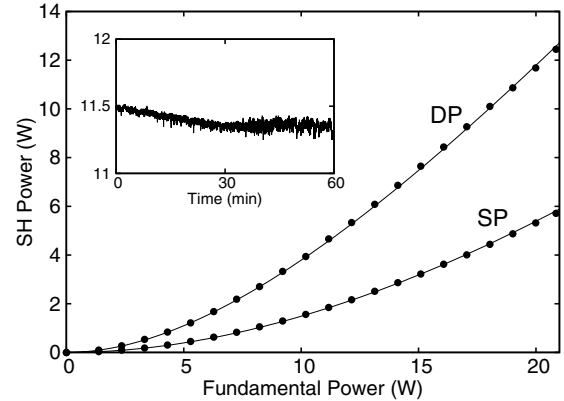


Fig. 2. Single-pass (SP) and double-pass (DP) second-harmonic power as a function of fundamental power. The inset shows the SH power stability.

for small infrared powers the SP harmonic power at the end of the crystal is [12]

$$P_{2\omega, \text{SP}} = P_{\omega} b_1 \gamma = |A_1|^2, \quad (1)$$

$$\gamma = \frac{16\pi^2 d_{\text{eff}}^2 h}{\epsilon_0 c n_1 n_2 \lambda^3} P_{\omega},$$

where  $P_{\omega}$  is the fundamental power,  $\gamma$  is the SP conversion efficiency, which depends on the fundamental power  $P_{\omega}$ ,  $d_{\text{eff}} = 2d_{33}/\pi$  is the effective nonlinear coefficient for first-order quasi-phase matching,  $\epsilon_0$  is the dielectric constant,  $c$  is the speed of light in vacuum, and  $n_2$  is the refractive index for the harmonic wave in the crystal.  $h = h(\xi = l/b, \Delta k_q)$  is a function of the Boyd–Kleinman parameter  $\xi$  and the phase mismatch  $\Delta k_q = k_2 - 2k_1 - 2\pi/\Lambda$  [14], where  $k_2$  and  $k_1$  are the wavevectors of the harmonic and the fundamental wave, respectively, and  $\Lambda$  is the grating period length. For the focussing conditions in our setup and for optimum phase matching,  $h(\xi = 1.48, \Delta k_q = \Delta k_{q, \text{opt}}) = 0.91$ . However, in practice, the generated SH power will be smaller because of imperfect beam-quality of the fundamental beam, the linear absorption of the fundamental and the harmonic wave, and deviation from the optimum phase matching condition. Therefore, we introduced the parameter  $0 \leq b_1 \leq 1$  to take losses for the first pass induced by these nonideal conditions into account. Accordingly, the second pass of the infrared wave generates a harmonic wave amplitude  $A_2$  with magnitude  $|A_2| = \sqrt{P_{\omega} b_2 \gamma}$ , where  $b_2$  contains the losses because of imperfections for the second pass. The DP harmonic field amplitude is

$$A_{\text{DP}} = A_1 e^{i\phi} + A_2, \quad (2)$$

where  $\phi$  is the phase difference between the first and the second pass, which results from the dispersion mismatch of the fundamental and the harmonic waves in the air and in the glass plate. For Gaussian beams, this phase must be  $\phi = \pi$  for maximum DP field amplitude, since the accumulated Guoy phase leads to a phase difference of  $\pi$  between the amplitudes of the two passes  $A_1$  and  $A_2$  [15]. Then the harmonic power is

$$P_{2\omega,DP} = |A_{DP}|^2 = P_{\omega} (\sqrt{b_1} + \sqrt{b_2})^2 \gamma. \quad (3)$$

For high fundamental powers, pump depletion occurs and Eqs. (1) and (3) are modified to [16]

$$P_{2\omega,SP/DP} = P_{\omega} \tanh^2 \sqrt{b_{SP/DP}} \gamma, \quad (4)$$

where  $b_{SP} = b_1$  and  $b_{DP} = (\sqrt{b_1} + \sqrt{b_2})^2$ .

Equation (4) is matched to low fundamental powers (solid lines in Fig. 2) by choosing the parameters  $b_1$  and  $b_2$  for the SP and DP schemes, respectively. For both the SP and DP configuration the model is in agreement at all fundamental powers, which confirms that Eq. (4) provides an adequate theoretical description of the SHG process. The parameters for the first and second pass are  $b_1 = 0.82$  and  $b_2 = 0.47$ . The lower value of  $b_2$  compared to  $b_1$  indicates, that the second pass is less efficient. We attribute this to the fact that, for the second pass the effective grating period  $\Lambda(\beta) = \Lambda / \cos(\beta)$  is increased, where  $\beta$  is the angle between the first and the second pass. The increased grating period leads to a  $\Delta k_q(\beta) = k_2 - 2k_1 - 2\pi/\Lambda(\beta)$  which deviates from the optimum phase matching value. As a result, the conversion efficiency of the second pass is decreased by a factor, which can be approximated to  $\text{sinc}^2(\Delta k_q(\beta)l/2)$ . For a value of  $\beta = 17$  mrad this factor is about 0.4, which is close to the ratio  $b_2/b_1 = 0.55$ . The discrepancy between the two values might result from the different crystal temperatures for single-pass and double-pass configurations, which are adjusted for maximum second-harmonic output power, respectively. In the case of the double-pass configuration, the change of the temperature compared to single-pass configuration leads to an increased phase mismatch of the first pass and a decreased phase mismatch of the second pass, and therefore to a higher value of  $b_2$ . In principle, it should be possible to achieve a higher SHG efficiency by using a symmetrical arrangement in the crystal, which leads to the same effective grating period length for both passes.

The inset of Fig. 2 shows the SH power stability in the DP configuration over a duration of an  $h$  at a power of 11.5 W. A peak-to-peak fluctuation <2% is observed. The slight decrease in harmonic output power results from thermal loading, which leads to a deviation from the optimum phase matching temperature. We measure the beam quality of the harmonic wave with a beam profiling camera at the highest harmonic power. We obtain  $M^2 < 1.2$ , confirming a high beam quality.

Figure 3 shows the SH efficiency for SP and DP configurations and the DP enhancement of the conversion efficiency as a function of fundamental power. The solid lines of the SP efficiency, DP efficiency, and DP enhancement are given by  $\epsilon_{SP} = P_{2\omega,SP}/P_{\omega}$ ,  $\epsilon_{DP} = P_{2\omega,DP}/P_{\omega}$  and  $\epsilon_{DP}/\epsilon_{SP}$ , respectively, where  $P_{2\omega,SP}$  and  $P_{2\omega,DP}$  are determined by Eq. (4) with the same values of the parameters  $b_{SP}$  and  $b_{DP}$  as before. In the limit of low fundamental powers, the DP enhancement is given by  $b_{DP}/b_{SP}$  and is about three. Theoretically, the enhancement factor scales with  $N^2 = 4$  in a double-pass scheme. Again, the deviation from the expected value can be attributed to imperfect conditions in the second pass. For high

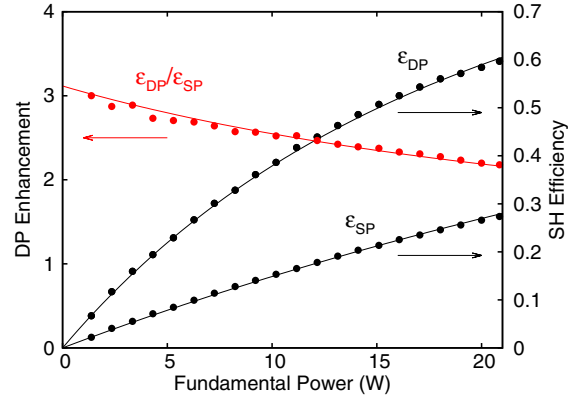


Fig. 3. Single-pass second-harmonic efficiency  $\epsilon_{SP}$ , double-pass second-harmonic efficiency  $\epsilon_{DP}$ , and double-pass enhancement factor  $\epsilon_{DP}/\epsilon_{SP}$  as a function of fundamental power.

fundamental powers the enhancement factor decreases to about two because of the pump depletion. At the maximum fundamental power the SH efficiency is 60%.

Figure 4 shows DP temperature tuning curves for two different phases  $\phi$  between the fundamental and the harmonic wave [Eq. (2)] for high fundamental powers and the SP temperature tuning curve. The phase is adjusted by the tilting angle of the glass plate (Fig. 1). In the first case  $\phi \approx \pi$ , the phase is adjusted for maximum output power. The temperature tuning curve exhibits a central, slightly asymmetric peak with a smaller peak on each side (filled blue squares). The full width at half-maximum (FWHM) is 0.5 K, corresponding approximately to the half-width of SP SH temperature tuning curve, which is  $\sim 1.1$  K (gray dashed line). In the second case  $\phi \approx 0$ , where the phase is mismatched, two nearly equal high peaks occur (open red circles), which are significantly smaller than the central peak in the first case. This shows that a careful adjustment of phase and crystal temperature is necessary for full benefit of the DP scheme. To

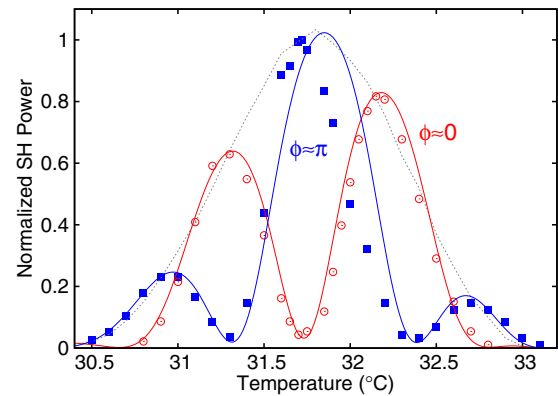


Fig. 4.  $\phi \approx \pi$  (filled blue squares): temperature tuning curve phase matched for maximum second-harmonic (SH) output.  $\phi \approx 0$  (open red circles): temperature tuning curve with mismatched phase. Gray dashed line: Measured single-pass temperature tuning curve. SH powers are normalized to maximum output power. The solid lines are numerical calculations of the temperature tuning curves.

compare the measured DP temperature tuning curves to theory, we solve the differential equation for the harmonic field for a Gaussian beam in double-pass configuration numerically, analogous to [15]. Pump depletion is included according to Eq. (4). The free parameters in this calculation are the phase  $\phi$  between the two passes, a temperature offset, and scale factors in temperature and in SH power direction. The amplitudes of the two passes are weighted with the parameters  $\sqrt{b_1}$  and  $\sqrt{b_2}$  determined above. Matching the theoretical curves to the measured data (solid lines), gives  $\phi = -0.25\pi$  for the first case and  $\phi = 0.97\pi$  for the second case, which are close to the expected phases. In the first case, the theoretical curve shows good agreement with the measured data of the sidelobes, but presents a clear deviation at the central maximum, because of the asymmetry of the measured data at high powers. The asymmetry at high optical powers can be attributed to the thermal loading of the crystal because of infrared and green light absorption as found in [8]. In the second case, the theoretical curve is in good agreement with all data points.

In conclusion, a double-pass scheme for a high-efficiency SHG in MgO:PPLT has been demonstrated. We achieve a conversion efficiency of 60% and a harmonic power of 12.8 W. Since no additional saturation beyond pump depletion was observed, we expect stable SH powers even at higher fundamental powers. The harmonic beam exhibits high long-term stability and high beam quality. The double-pass configuration increases the conversion efficiency by more than a factor of two compared to single-pass SHG. This setup is straightforward to apply to any other single-pass SHG experiment, to increase the conversion efficiency considerably.

This work was supported by the German Ministry for Education and Research (BMBF).

## References

1. S. Chaitanya Kumar, G. K. Samanta, and M. Ebrahim-Zadeh, *Opt. Express* **17**, 13711 (2009).
2. S. Kurimura, N. E. Yu, Y. Nomura, M. Nakamura, K. Kitamura, and T. Sumiyoshi, in *Advanced Solid-State Photonics (TOPS)*, C. Denman and I. Sorokina, eds., Vol. **98** of OSA Trends in Optics and Photonics (Optical Society of America, 2005), paper 92.
3. K. Kitamura, Y. Furukawa, S. Takekawa, M. Nakamura, A. Alexandrovski, and M. M. Fejer, in *Summaries of Papers Presented at the Conference on Lasers and Electro-Optics 2001*, Technical Digest (2001), pp. 138–139.
4. M. Stappel, R. Steinborn, D. Kolbe, and J. Walz, *Laser Phys.* **23**, 075103 (2013).
5. S. Sinha, D. S. Hum, K. E. Urbanek, Y.-W. Lee, M. J. F. Digonnet, M. M. Fejer, and R. L. Byer, *J. Lightwave Technol.* **26**, 3866 (2008).
6. G. Samanta, S. Kumar, K. Devi, and M. Ebrahim-Zadeh, *Opt. Lett.* **35**, 3513 (2010).
7. G. Imeshev, M. Proctor, and M. Fejer, *Opt. Lett.* **23**, 165 (1998).
8. S. Spiekermann, F. Laurell, V. Pasiskevicius, H. Karlsson, and I. Freitag, *Appl. Phys. B* **79**, 211 (2004).
9. T. Meier, B. Willke, and K. Danzmann, *Opt. Lett.* **35**, 3742 (2010).
10. M. Stappel, D. Kolbe, and J. Walz, "Frequenzvervielfachende Kristallanordnung mit hohem Wirkungsgrad," German patent pending 10 2013 107 196.1 (July 9, 2013).
11. Molecular Technology (MolTech) GmbH, <http://www.mt-berlin.com>.
12. G. D. Boyd and D. A. Kleinman, *Appl. Opt.* **39**, 3597 (1968).
13. J. M. Yarborough, J. Falk, and C. B. Hitz, *Appl. Phys. Lett.* **18**, 70 (1971).
14. D. S. Hum and M. M. Fejer, *C. R. Phys.* **8**, 180 (2007).
15. V. A. Akulov, S. A. Babin, S. I. Kablukov, and K. S. Raspopin, *Laser Phys.* **21**, 935 (2011).
16. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic, 2008).



## 2.3. Publikation 3: Heterogene Calciumkristalle

### Modendesign in heterogenen Kristallen aus $^{40}\text{Ca}^{2+}$ und $^{40}\text{Ca}^+$

In der Veröffentlichung „**Mode shaping in mixed ion crystals of  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  and  $^{40}\text{Ca}^+$** “, erschienen 2014 in *Applied Physics B (Lasers and Optics)* [FPS<sup>+</sup>14], ist die erste nachgewiesene Wechselwirkung zwischen kohärenter vakuumultravioletter Strahlung und gefangenen Calciumionen beschrieben. Die in einer Paulfalle gefangenen Calciumionen wurden in dem langlebigen metastabilen Zustand  $3^2\text{D}_{3/2}$  präpariert und anschließend mit Strahlung bei einer Wellenlänge von 121,3 nm ionisiert.

Die Publikation ist in sechs Abschnitte unterteilt. Im ersten Abschnitt werden Motivation und mögliche Anwendungen für das Modendesign von Calciumkristallen erläutert. In Abschnitt 2 wird der verwendete experimentelle Aufbau vorgestellt und das Ionisationsschema beschrieben. Durch Ionisation einzelner Calciumionen wurden heterogene Kristalle erzeugt. Die gegenüber homogenen Kristallen veränderten Resonanzfrequenzen der transversalen Schwingungsmoden wurden für verschiedene Kristallanordnungen untersucht. Die Ergebnisse sind in Abschnitt 3 aufgeführt. Die Veränderung des Verhältnisses von longitudinaler zu radialer Fallenfrequenz kann einen linearen Kristall in eine Zickzack-Konfiguration überführen. Dieser strukturelle Phasenübergang wird in Abschnitt 4 für verschiedene Kristallanordnungen des heterogenen Kristalls untersucht. Abschnitt 5 behandelt die Ergebnisse zur Erzeugung lokaler Moden in einem heterogenen Kristall, der durch ein  $\text{Ca}^{2+}$  in zwei Bereiche unterteilt wurde. In Abschnitt 6 folgen Zusammenfassung und Ausblick.

Die experimentellen Arbeiten und Messungen dieser Veröffentlichung wurden in einer Kollaboration der Arbeitsgruppen Walz und Schmidt-Kaler der QUANTUM Mainz des Instituts für Physik durchgeführt. Der Schwerpunkt meiner experimentellen Arbeit lag auf dem Aufbau der kohärenten vakuumultravioletten Laserlichtquelle zur Ionisierung von gefangenen Calciumionen, dem Aufbau der Vakuumapparatur zwischen Laserquelle und Calciumfalle sowie der Strahlformung und Fokussierung des vakuumultravioletten Lichts.

## Mode shaping in mixed ion crystals of $^{40}\text{Ca}^{2+}$ and $^{40}\text{Ca}^+$

T. Feldker · L. Pelzer · M. Stappel ·  
P. Bachor · R. Steinborn · D. Kolbe ·  
J. Walz · F. Schmidt-Kaler

Received: 3 June 2013 / Accepted: 25 September 2013 / Published online: 22 October 2013  
© Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2013

**Abstract** We present studies of mixed Coulomb crystals of  $^{40}\text{Ca}^+$  and  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  ions in a linear Paul trap. Doubly charged ions are produced by photoionization of trapped  $^{40}\text{Ca}^+$  with a vacuum ultraviolet laser source and sympathetically cooled via Doppler cooled  $^{40}\text{Ca}^+$  ions. We investigate experimentally and theoretically the structural configurations and the vibrational modes of these mixed crystals. Our results with  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  are an important step towards experimental realization of the proposals for mode shaping in a linear crystal and spin-dependent configuration changes from zigzag to linear as proposed by Li et al. (Phys Rev A 87:052304, 2013) and Li and Lesanovsky (Phys Rev Lett 108:023003, 2012) using ions excited to Rydberg states.

### 1 Introduction

Trapped ions are among the most promising systems for the realization of a quantum computer. While excellent control over single qubits [1], high-fidelity entangling of two qubits [2, 3], simple quantum algorithms [4, 5] and

entangling of up to 14 qubits [6] has been demonstrated, one major remaining challenge in scaling to large numbers of qubits is the increasingly complex mode spectrum of large ion crystals.

Performing high-fidelity quantum gate operations even in long linear ion crystals [7] using optimized laser pulses [8, 9] is an highly interesting yet challenging approach to scale up the number of qubits available for quantum information processing with trapped ions. The idea of mode shaping has the potential to drastically simplify this approach since the complexity of the mode spectrum can be significantly reduced. Such tailoring of vibrational modes may be possible employing the unique properties of Rydberg states [10], where the polarizability of the ion is strongly enhanced leading to significant modifications of the radial trapping potential [11, 12].

Equally fascinating is the perspective of spin-dependent trap-ion interactions exhibiting a strength rivalling the Coulomb forces, such that structural configuration changes of ion crystals are induced. Again, Rydberg excitations have been proposed to induce such a phase transitions [13] between a linear string and a zigzag crystal. Hence, Rydberg excitation of ions may be used to quench an ion crystal [14, 15], producing a nonequilibrium situation and eventually even enter the quantum regime [16] of this phase transition.

The experimental work presented here features important aspects of mode shaping using mixed crystals with doubly charged ions instead of Rydberg excitations. We investigate in detail radial modes and configuration changes, thus providing a complete understanding of the mode shaping which would be required for quantum gate operation. For the measurements, we benefit from the effectively infinite lifetime of  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  ions as compared to a lifetime of about 100  $\mu\text{s}$  for a Rydberg excitation. The

T. Feldker (✉) · L. Pelzer · M. Stappel · P. Bachor ·  
R. Steinborn · D. Kolbe · J. Walz · F. Schmidt-Kaler  
QUANTUM, Institut für Physik, Universität Mainz,  
Staudingerweg 7, 55128 Mainz, Germany  
e-mail: feldker@uni-mainz.de

M. Stappel · P. Bachor · R. Steinborn · D. Kolbe · J. Walz  
Helmholtz-Institut, 55099 Mainz, Germany

*Present Address:*

D. Kolbe  
Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e. V.,  
Institut für Technische Physik, Pfaffenwaldring 38-40,  
70569 Stuttgart, Germany

presented experiments with  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  ions can be considered as an important step towards mode-shaping experiments with Rydberg excitations. Still, one important aspect of the proposed mode shaping and ion crystal configuration is not captured: only coherent Rydberg excitation would give complete control over these effects, including superposition states.

Compared to other experiments measuring the modes of mixed ion crystals consisting of singly and doubly charged ions where  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  is created by intense laser pulses [17] or  $\text{Yb}^{2+}$  is created by electron bombardment [18], we generate mixed Coulomb crystals by ionizing single  $^{40}\text{Ca}^+$  ions with a continuous wave, vacuum ultraviolet (VUV) laser source [19]. The wavelength of the VUV source can be changed from ionization to Rydberg excitation wavelength, and a very similar excitation scheme is used in both cases.

The paper is organized as follows: After describing the experimental set-up, we introduce the photoionization scheme for selectively ionizing trapped  $^{40}\text{Ca}^+$ . In the following, we describe the frequency measurement of various modes of mixed crystals and compare the results to simulations. We also investigate structural changes of the crystals, as depending on the trap parameters and the position of the  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  ion. In a last section, we investigate local modes created by a  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  impurity in a longer ion chain.

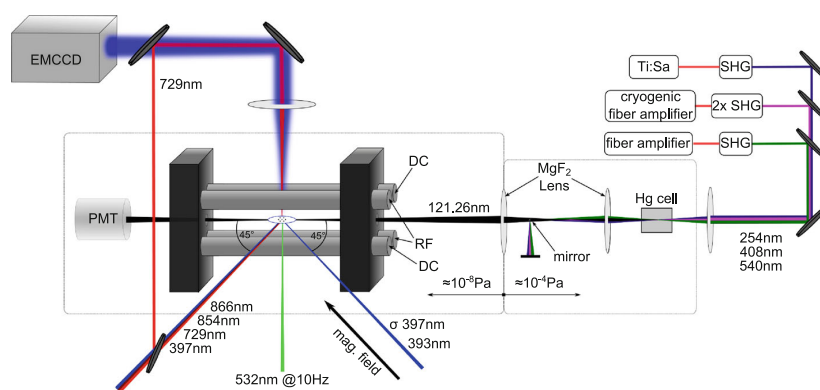
## 2 Experimental set-up

The ions are trapped in a linear Paul trap (Fig. 1, described in detail in [11]) consisting of four cylindrical electrodes

(diameter 2.5 mm) and two endcaps (distance 10 mm) with holes (diameter 1 mm) to provide axial optical access to the ions. The distance from the trap centre to the electrodes is  $r_0 = 1.1$  mm. The Paul trap is operated with an RF-amplitude of  $U_{\text{rf}} = 100\text{--}200$  V at a frequency  $\Omega/(2\pi) = 10.66\text{MHz}$ . An additional offset voltage of  $U_{\text{of}} = -1.5$  V is applied to the DC-electrodes to lift the radial degeneracy of the trapping potential. The resulting trapping frequencies are  $\omega_x/(2\pi) = 150\text{--}500$  kHz and  $\omega_y/(2\pi) = 450\text{--}650$  kHz depending on the RF-amplitude. The endcaps are operated at a DC-voltage of 400 V which yields an axial trapping frequency of  $\omega_z/(2\pi) = 119$  kHz.

The ions are produced by photoionization with a pulsed laser at 532 nm from a neutral atom beam of  $^{40}\text{Ca}$ . Ions are cooled and repumped by copropagating laser beams at wavelengths of 397, 866 and 854 nm. With a diode laser at 393 nm ions can be optically pumped into the  $3^2\text{D}_{5/2}$  state with nearly 100 % efficiency. The level scheme of  $^{40}\text{Ca}^+$  ions including important transitions and laser wavelengths is depicted in Fig. 2. All laser beams are switched by acousto-optic modulators (AOM) in double-pass configuration. Additionally, a stabilized ( $\Delta\nu < 1\text{kHz}$ ) Titanium:Sapphire (Ti:Sa) laser at 729 nm allows for resolving motional sidebands on the quadrupole transition  $4^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 3^2\text{D}_{5/2}$ . As depicted in Fig. 1, there are two spectroscopy beams available, one overlapped with the Doppler cooling beam, having a projection on all principle trap axes and one propagating through the high numerical aperture (NA) camera lens. The latter is tightly focussed to about 5  $\mu\text{m}$  and can be used for addressing single ions in a bigger crystal.

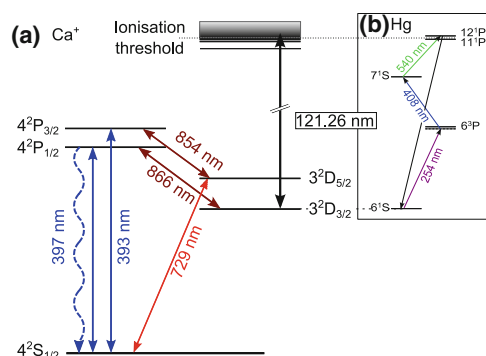
The imaging system consists of a lens with focal length 66.8 mm which maps the ion crystal via a folding mirror



**Fig. 1** Experimental set-up showing the Paul trap with laser beams for trapping, cooling and spectroscopy of  $^{40}\text{Ca}^+$  and the EMCCD detection system. The vacuum ultraviolet (VUV) generation is accomplished by four-wave mixing (FWM) in a Hg-vapour cell. The fundamental beams are frequency doubled by second-harmonic generation (SHG), overlapped, and focussed into the Hg-vapour. After

the FWM region, they are dispersively separated from the VUV light with a  $\text{MgF}_2$  lens ( $f = 130$  mm) and a tiny mirror. A second  $\text{MgF}_2$  lens ( $f = 125$  mm) at a distance to the ions of about 240 mm focusses and aligns the VUV beam to the ion crystal and is used for vacuum separation between the ion trap and the FWM region.





**Fig. 2** **a** Level scheme of  $^{40}\text{Ca}^+$  with transitions at 397 nm used for Doppler cooling and detection, repumping at 866 and 854 nm, spectroscopy at 729 nm and ionization at 121.26 nm. The laser near 393 nm allows for pumping to the  $3^2\text{D}_{5/2}$  state. **b** Relevant Hg levels used in the four-wave mixing process. The UV and blue lasers are fixed to the two-photon resonance  $6^1\text{S} \rightarrow 7^1\text{S}$ , the VUV wavelength is determined by the third laser

on an electron multiplying charge-coupled device (EMCCD) chip. The numerical aperture of 0.27 limits the theoretical resolution to 0.9  $\mu\text{m}$ , the magnification can be determined by comparison of simulated and measured ion positions to a value of 17. The exposure time for a single picture may be varied between 1 and 50 ms.

For single-photon ionization, a continuous wave coherent light source at 121.26 nm is used. A detailed description of this laser can be found in [11, 19]. Coherent VUV radiation at 121.26 nm is produced by triple resonant four-wave mixing in mercury with three fundamental waves at 254, 408 and 540 nm (see Fig. 2b). In the four-wave mixing scheme, the three fundamental lasers are tuned close to the transitions  $6^1\text{S}-6^3\text{P}$  [20],  $6^3\text{P}-7^1\text{S}$  and  $7^1\text{S}-12^1\text{P}$  in mercury, respectively, which significantly increases the yield of VUV power to about 1  $\mu\text{W}$  at 121.26 nm. The set-up of the VUV laser is shown in Fig. 1. The three fundamental beams are superimposed by dichroic mirrors and focussed into mercury vapour for VUV generation. The fundamental beams are dispersively separated from the VUV light with a  $\text{MgF}_2$  lens and a tiny mirror. With a second  $\text{MgF}_2$  lens mounted on a 3D-translation stage, the VUV light is focussed and aligned to the trap. The VUV radiation propagates through holes in the endcaps of the trap and is detected with a photomultiplier tube (PMT) behind the trap. The measured focus has a width of  $\omega_0 \approx 20 \mu\text{m}$ .

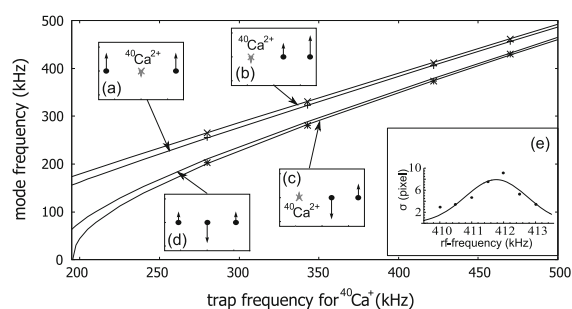
For photoionization of  $^{40}\text{Ca}^+$ , we first load a linear string of three ions. The ions are pumped to the  $3^2\text{D}_{3/2}$  state by laser light at 397 nm wavelength, before we apply ionization light near 121.26 nm. Since a doubly charged ion does not resonantly scatter light near 397 nm, a successful formation of  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  is characterized as a dark gap in the ion crystal. However, such dark gaps may also result from loading of

ions from ionized background gas. In order to verify the ionization of a  $^{40}\text{Ca}^+$  and to discriminate  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  from accidentally loaded ions of other species, we check the length of the crystal, which increases by 21 % ( $\approx 8 \mu\text{m}$ ) for a  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  ion in central position. To produce larger crystals with an impurity ion, we also start from a three-ion crystal, ionize one of the ions, and finally, load the desired number of additional  $^{40}\text{Ca}^+$  ions into the trap. This way we make sure that the crystal contains a  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  ion.

### 3 Vibrational modes of mixed three-ion crystals

The  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  impurity leads to modified vibrational modes compared to a  $^{40}\text{Ca}^+$  crystal. The broken symmetry of the crystal gives rise to radial modes which, except for the rocking mode with  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  in central position ( $\uparrow\downarrow$ ) (arrows indicate the eigenvectors of the vibrational mode), are no longer orthogonal to the centre of mass mode. Hence, modes can be excited by applying a resonant radiofrequency to one of the DC-electrodes. We concentrate on the radial modes of the crystal since these are the most interesting for mode shaping. The axial modes of a three-ion crystal with  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  have been measured previously by Kwapien et al. [17] using similar detection techniques as in our experiment.

For frequency determination, the oscillation amplitude of the ions with respect to the applied radiofrequency at a constant RF-amplitude is measured. The oscillation amplitude results in a smeared out fluorescence of the ion and can be determined from the camera image. The eigenfrequency of the mode is determined as the central frequency of a gaussian, fitted to the oscillation amplitude



**Fig. 3** Measured and simulated frequencies of selected modes of mixed ion crystals. Dots represent measured values while lines are from numerical simulations. The small insets (a–c) show the modes which were measured. For comparison, the simulated frequency of the zigzag mode (d) without  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  is also shown. (e) The oscillation amplitude of the ions is plotted for different radiofrequencies. The eigenfrequency is determined as the centre frequency of a gaussian fitted to the oscillation amplitude as a function of the applied RF-frequency

as a function of the applied RF-frequency. We avoid nonlinear response [21] by keeping a low excitation amplitude. The simulated and measured frequencies are shown in Fig. 3 and agree to about 1 kHz, the deviation can be explained by errors in the determination of the eigenfrequency (0.5 kHz) and a drift of the trapping potential between measurement and calibration where the trap frequencies  $\omega_{x,y,z}$  are measured with a single  $^{40}\text{Ca}^+$ . The RF-amplitude  $U_{\text{rf}}$  is not completely constant but decreases slowly over time which leads to the observed trapping potential drift of  $\Delta\omega_{x,y}/(2\pi) \approx 10$  kHz over the course of a day. The highest frequency modes where the  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  exhibits an approximately 50 times higher oscillation amplitude than the  $^{40}\text{Ca}^+$  are missing in the plot because they could not be measured exactly. This is because the  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  ion cannot be detected while the oscillation amplitude of  $^{40}\text{Ca}^+$  ions remains small.

The zigzag mode of a crystal with  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  in outer position (Fig. 3c) is shifted to lower frequencies compared to the zigzag mode of a three-ion  $^{40}\text{Ca}^+$  crystal, while the zigzag mode of a crystal with  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  in central position (Fig. 3a) is shifted to higher frequencies. This result agrees with the observed behaviour of the zigzag transition in section 4.

#### 4 Structural changes in a three-ion crystal by an $^{40}\text{Ca}^{2+}$ impurity

Assuming the well-justified pseudopotential approximation [22], a linear Paul trap is fully described by a static potential in axial direction with angular frequency  $\omega_z = 2\sqrt{q\beta/M}$  and a pseudopotential in radial direction with angular frequency  $\omega_r = \sqrt{2((q\gamma/(M\Omega))^2 - q\beta/M)}$  where  $q$  denotes the charge,  $M$  the mass of the ion and  $\gamma$ ,  $\beta$  the curvatures of the electric potentials. By applying an offset voltage  $V_{\text{of}}$  to the DC-electrodes an additional static electric potential  $\beta_{\text{rad}}$  is induced and the radial pseudopotential reads:

$$\omega_{x,y} = \sqrt{2((q\gamma/(M\Omega))^2 - q\beta/M \mp q\beta_{\text{rad}}/M)} \quad (1)$$

The configuration of an ion crystal in this potential is determined by the anisotropy parameters  $\alpha_{x,y} = \omega_z^2/\omega_{x,y}^2$ . For tight radial confinement  $\omega_{x,y} \gg \omega_z$ , the ions form a linear string aligned on the  $z$ -axis. Lowering the radial confinement causes a phase transition to a zigzag configuration at  $\alpha = \alpha_{\text{crit}}$  [14, 15, 24]. For  $\alpha_x > \alpha_y$ , this zigzag crystal is confined to the  $xz$ -plane which prevents it from rotating around the  $z$ -axis.

From eq. 1 follows that the static ( $\propto \sqrt{q/m}$ ) and dynamic ( $\propto q/m$ ) parts of the potential scale differently with

$q/m$ , resulting in a different  $\alpha$  for  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  compared to singly ionized calcium. The values of  $\alpha$  given in this work always refer to the trapping frequencies of singly charged  $^{40}\text{Ca}^+$ . To measure the phase transitions of different three-ion crystals, the static potentials  $\beta = 14.7(2)$  kV/m<sup>2</sup> and  $\beta_{\text{rad}} = 37(1)$  kV/m<sup>2</sup> are kept constant, the values are determined from the oscillation frequency of a single trapped  $^{40}\text{Ca}^+$  ion. The dynamic potential  $\gamma$  is varied using a RF-attenuator.

Measured and simulated configurations of the Coulomb crystal are shown in Fig. 4. In the case of a mixed ion crystal,  $\alpha_{\text{crit}}$  depends on the position of the  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  ion. We observe three different regimes: For  $\alpha < \alpha_{\text{crit1}}$  all crystals are linear strings, for  $\alpha_{\text{crit1}} < \alpha < \alpha_{\text{crit2}}$  only the crystal with  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  in outer position is in zigzag configuration while the others are still linear and for  $\alpha > \alpha_{\text{crit2}}$  the crystal with a central  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  ion is the last one remaining in the linear configuration. We could not observe a zigzag crystal with  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  in central position at all, instead the  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  always moves to the outside for  $\alpha \gg \alpha_{\text{crit2}}$ . The theoretical predicted critical anisotropy parameter for the three-ion  $^{40}\text{Ca}^+$  crystal  $\alpha_{\text{crit2}} = 0.42$  and the  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  at the outer position  $\alpha_{\text{crit1}} = 0.37$  fits well with the experiment.

In order to compare observed ion positions of the three-ion crystal with the simulation, a coordinate conversion is applied to the pictures. The line of sight of the imaging system and the crystal plane normal is under  $45^\circ$ , so the scaling in  $x$ - and  $z$ -direction is stretched by a factor of  $\sqrt{2}$ . Additionally a deviation of  $3^\circ$  between the crystals centre line and the  $z$ -direction, due to misalignment of the imaging system, has been taken into account.

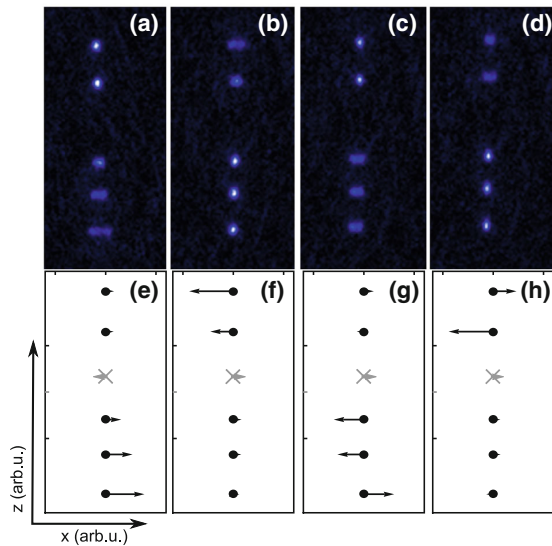
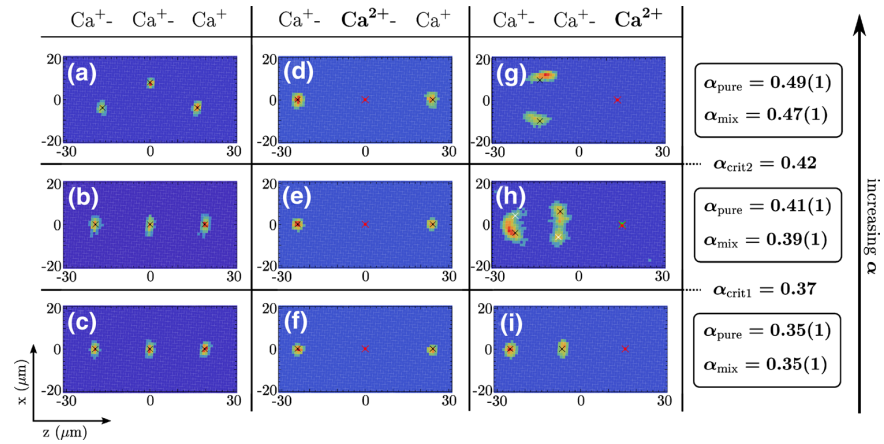
After this transformation, the deviation between simulated and measured positions is below  $1 \mu\text{m}$  for all pictures except for Fig. 4g with a deviation of  $3.7 \mu\text{m}$  and Fig. 4h where a fit was not possible. Such deviation may be attributed to a drift of the trapping potential which occurs between calibration and measurement. The additional deviation in Fig. 4g can be attributed to a small error in stray field compensation so that the trapping potential minimum is shifted for  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  compared to  $^{40}\text{Ca}^+$ .

Close to the critical trap anisotropy, when  $\alpha$  is barely bigger than  $\alpha_{\text{crit}}$ , the potential barrier between mirrored degenerate configurations is small enough to enable the ion to change configurations many times during camera exposure time under Doppler cooling conditions [23]. This results in a broadening of the detected peak, as seen in of Fig. 4h and prevents exact determination of ion positions.

#### 5 Local modes in linear crystal with $^{40}\text{Ca}^{2+}$ impurity

A long ion chain can be divided into separately oscillating parts by impurity ions. Here, we use a  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  ion which is subjected to a much stiffer radial confinement in the trap

**Fig. 4** Fluorescence images (a–i) of three-ion crystals, without  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  ion and with  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  ion in central or outer position, for different anisotropic parameters. Simulated positions are indicated as black ( $^{40}\text{Ca}^+$ ) and red ( $^{40}\text{Ca}^{2+}$ ) crosses. In (h), there are additional crosses in white ( $^{40}\text{Ca}^+$ ) and green ( $^{40}\text{Ca}^{2+}$ ) for the mirrored configuration. The reason for slightly different  $\alpha$  for crystals with ( $\alpha_{\text{mix}}$ ) and without  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  ( $\alpha_{\text{pure}}$ ) is a drift of the trapping potential between these measurements



**Fig. 5** Upper part Fluorescence images of excited local modes (a–d) in a linear string with  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  impurity. The local excitation of ions is observed from the broadening of the ion image in radial direction. The oscillation amplitudes of the ions fit well to the simulated eigenvectors of the modes (e–f)

for the tailoring of radial modes. We prepare a string of five  $^{40}\text{Ca}^+$  and one  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  positioned as the third ion in the chain and excite the radial modes. We find that for each mode, the oscillation is almost completely restricted to one of the two parts separated by the impurity ion (see Fig. 5).

The measured frequencies and eigenvectors are in good agreement with simulations. The eigenfrequencies of the modes are  $2\pi \times 468$  kHz (Fig. 5a),  $2\pi \times 463$  kHz (Fig. 5b),  $2\pi \times 423$  kHz (Fig. 5c) and  $2\pi \times 403$  kHz (Fig. 5a) for trap frequencies of  $\omega_z = 2\pi \times 119$  kHz,  $\omega_x = 2\pi \times 480$  kHz and  $\omega_y = 2\pi \times 630$  kHz for a single  $^{40}\text{Ca}^+$  ion. In addition to the measured modes shown

in Fig. 5, there is a mode at  $2\pi \times 1,006$  kHz where mainly the  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  oscillates and a mode at  $2\pi \times 352$  kHz where the oscillation is localized to the lower subcrystal. Simulations show that for the modes at  $2\pi \times 423$  kHz and at  $2\pi \times 403$  kHz, the oscillation amplitude on different sides of the  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  differs by a factor of  $\approx 30$  while ions on the same subcrystal have similar oscillation strength. The results also show that the mode density for the subcrystals is much lower than for a string of six  $^{40}\text{Ca}^+$  ions trapped in the same potential. The minimal frequency separation for modes on the same subcrystal is  $2\pi \times 45$  kHz compared to  $2\pi \times 15$  kHz for a pure  $^{40}\text{Ca}^+$  crystal.

## 6 Conclusion and outlook

We measured the mode structure of mixed coulomb crystals with three ions. The resulting eigenfrequencies are in good agreement with values from numerical simulations. We observe the configuration of these crystals the transition from linear to zigzag configuration depending on the position of the doubly ionized ion. The positions of the  $^{40}\text{Ca}^+$  ions agree to 1  $\mu\text{m}$  with values from numerical simulations. These results confirm the proposed zigzag transition using Rydberg excitation in a three-ion crystal [13].

We observe localized modes created by dividing longer ion chains with doubly charged ions. In future experiments, such localized modes could possibly be exploited to implement parallel gate execution on different parts of the ion string [10].

An exciting perspective for future experiments is the possibility to use coherently excited Rydberg states. The Rydberg excitation from the  $3^2\text{D}_{5/2}$  state, together with the single ion addressing of the  $4^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 3^2\text{D}_{5/2}$  transition, may allow for a full control over the radial mode structure. In future, one may extend the mode shaping to

two-dimensional ion crystals with an even more complex mode structure [25].

**Acknowledgments** We thank Weibin Li, Alexander Glaetzle, Rejish Nath, Igor Lesanovsky and Peter Zoller for helpful discussions. Further, we thank Julian Naber for earlier contributions to the experiment. We acknowledge financial support by the EU Chist-Era Project R-Ion and by the BMBF.

## References

1. R. Blatt, D.J. Wineland, *Nature* **453**, 1008 (2008)
2. J. Benhelm, G. Kirchmair, C.F. Roos, R. Blatt, *Nat. Phys.* **4**, 463 (2008)
3. J.P. Home, D. Hannecke, J.D. Jost, J.M. Amini, D. Leibfried, D.J. Wineland, *Science* **325**, 1227 (2009)
4. M. Riebe, H. Häffner, C.F. Roos, W. Hänsel, J. Benhelm, G.P.T. Lancaster, T.W. Körber, C. Becher, F. Schmidt-Kaler, D.F.V. James, R. Blatt, *Nature* **429**, 734 (2004)
5. B.P. Lanyon, C. Hempel, D. Nigg, M. Müller, R. Gerritsma, F. Zähringer, P. Schindler, J.T. Barreiro, M. Rambach, G. Kirchmair, M. Hennrich, P. Zoller, R. Blatt, C.F. Roos, *Science* **334**, 57–61 (2011)
6. T. Monz, P. Schindler, J.T. Barreiro, M. Chwalla, D. Nigg, W.A. Coish, M. Harlander, W. Hänsel, M. Hennrich, R. Blatt, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 130506 (2011)
7. G.D. Lin, S.L. Zhu, R. Islam, K. Kim, M.S. Chang, S. Korenblit, C. Monroe, L.M. Duan, *EPL* **86**, 60004 (2009)
8. J.J. Garcia-Ripoll, P. Zoller, J.I. Cirac, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 157901 (2003)
9. L.M. Duan, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 100502 (2004)
10. W. Li, A.W. Glaetzle, R. Nath, I. Lesanovsky, *Phys. Rev. A* **87**, 052304 (2013)
11. F. Schmidt-Kaler, T. Feldker, D. Kolbe, J. Walz, M. Müller, P. Zoller, W. Li, I. Lesanovsky, *New J. Phys.* **13**, 075014 (2011)
12. M. Müller, L. Liang, I. Lesanovsky, P. Zoller, *New J. Phys.* **10**, 093009 (2008)
13. W. Li, I. Lesanovsky, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 023003 (2012)
14. S. Ulm, J. Roßnagel, G. Jacob, C. Degünther, S.T. Dawkins, U.G. Poschinger, R. Nigmatullin, A. Retzker, M.B. Plenio, F. Schmidt-Kaler, K. Singer, *Nat. Commun.* **4**, 2290 (2013). doi:[10.1038/ncomms3290](https://doi.org/10.1038/ncomms3290)
15. K. Pyka, J. Keller, H.L. Partner, R. Nigmatullin, T. Burgmeister, D.M. Meier, K. Kuhlmann, A. Retzker, M.B. Plenio, W.H. Zurek, A. Campo, T.E. Mehlstäubler, *Nat. Commun.* **4**, 2291 (2013). doi:[10.1038/ncomms3291](https://doi.org/10.1038/ncomms3291)
16. J.D. Baltrusch, C. Cormick, G. Morigi, *Phys. Rev. A* **86**, 032104 (2012)
17. T. Kwapien, U. Eichmann, W. Sandner, *Phys. Rev. A* **75**, 063418 (2007)
18. M.M. Schauer, J.R. Danielson, D. Feldbaum, M.S. Rahaman, L. B. Wang, J. Zhang, X. Zhao, J.R. Torgerson, *Phys. Rev. A* **82**, 062518 (2010)
19. D. Kolbe, M. Scheid, J. Walz, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 063901 (2012)
20. D. Kolbe, M. Scheid, J. Walz, *Appl. Phys. B* (2012). doi:[10.1007/s00340-013-5510-6](https://doi.org/10.1007/s00340-013-5510-6).
21. N. Akerman, S. Kotler, Y. Glickman, Y. Dallal, A. Keselman, R. Ozeri, *Phys. Rev. A Rap. Commun.* **82**, 061402 (2010)
22. D. Leibfried, R. Blatt, C. Monroe, D. Wineland, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 281 (2003)
23. D. Reiß, K. Abich, W. Neuhauser, Ch. Wunderlich, P.E. Toschek, *Phys. Rev. A* **65**, 053401 (2002)
24. D.G. Enzer, M.M. Schauer, J.J. Gomez, M.S. Gulley, M.H. Holzscheiter, P.G. Kwiat, S.K. Lamoreaux, C.G. Peterson, V.D. Sandberg, D. Tulpa, A.G. White, R.J. Hughes, D.F.V. James, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2466 (2000)
25. H. Kaufmann, S. Ulm, G. Jacob, U. Poschinger, H. Landa, A. Retzker, M.B. Plenio, F. Schmidt-Kaler *Phys. Rev. Lett.* **109**, 263003 (2012)



## 2.4. Publikation 4: Rydberganregung von $\text{Ca}^+$

### Rydberganregung eines einzelnen gefangenen Calciumions

Der Artikel „**Rydberg excitation of a single trapped ion**“, 2015 angenommen zur Veröffentlichung bei *Physics Review Letters* [FBS<sup>+</sup>15], präsentiert die erste beobachtete Anregung von Calciumionen in einen Rydbergzustand. Es konnten drei verschiedene Rydbergzustände bei verschiedenen vakuumultravioletten Anregungswellenlängen identifiziert werden.

Der Artikel wird mit der Motivation und den Anwendungsmöglichkeiten von gefangenen Ionen in Rydbergzuständen eingeleitet. Es folgt eine Beschreibung des Versuchsaufbaus und des verwendeten Anregungs- und Detektionsschemas. Anschließend werden die beobachteten Rydbergresonanzen vorgestellt und die Identifizierung dieser Resonanzen mit den zugewiesenen Haupt- und Nebenquantenzahlen diskutiert. Die spektrale Form und Lage in Abhängigkeit von den Fallenparametern wird theoretisch behandelt. Abschließend werden die Ergebnisse zusammengefasst.

Die experimentellen Arbeiten und Messungen dieser Veröffentlichung wurden, wie bei Publikation 3, in einer Kollaboration der Arbeitsgruppen Walz und Schmidt-Kaler der QUANTUM des Instituts für Physik durchgeführt. Der Aufbau der kohärenten VUV Laserlichtquelle zur Rydberganregung von gefangenen Calciumionen war der Schwerpunkt meiner Arbeit. Zudem wurde die Strahlformung des vakuumultravioletten Lichts optimiert, um eine bessere Fokussierung des Strahls zu erreichen.

Beim folgenden Artikel handelt es sich um eine Version, die von *Physics Review Letters* angenommen aber noch nicht veröffentlicht wurde. Die auf *arxiv.org* verfügbare Version [FBS<sup>+</sup>15] unterscheidet sich davon an einige Stellen.

## Rydberg excitation of a single trapped ion

T. Feldker,<sup>1,\*</sup> P. Bachor,<sup>1,2</sup> M. Stappel,<sup>1,2</sup> D. Kolbe,<sup>1,2,†</sup> R. Gerritsma,<sup>1</sup> J. Walz,<sup>1,2</sup> and F. Schmidt-Kaler<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Institut für Physik, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Staudingerweg 7, D-55128 Mainz, Germany*<sup>†</sup>

<sup>2</sup>*Helmholtz-Institut Mainz, Johann-Joachim-Becherweg 36, D-55128 Mainz, Germany*

(Dated: August 25, 2015)

We demonstrate excitation of a single trapped cold  $^{40}\text{Ca}^+$  ion to Rydberg levels by laser radiation in the vacuum-ultraviolet at a wavelength of 122 nm. Observed resonances are identified as  $3d^2D_{3/2}$  to 51 F, 52 F and  $3d^2D_{5/2}$  to 64 F. We model the lineshape and our results imply a large state-dependent coupling to the trapping potential. Rydberg ions are of great interest for future applications in quantum computing and simulation, in which large dipolar interactions are combined with the superb experimental control offered by Paul traps.

PACS numbers: 37.10.Ty, 32.80.Ee, 42.50.Ex

The properties of Rydberg atoms are dominated by one electron being in a state of high principal quantum number, which leads to long lifetimes and large dipole moments [1, 2]. This results in giant dipolar interactions between Rydberg atoms [3] which enable the formation of ultralong-range molecules [4], quantum logic gate operations between two neutral atoms [5, 6], and the control of the state of transmitted light through a Rydberg sample at the single photon level [7]. A completely new approach to this field of research is the Rydberg excitation of trapped ions [8–10], which aims to combine the long-range Rydberg-blockade mechanism, demonstrated in the case of neutral atoms [11–13], with the superb level of control over single ions achieved in Paul traps [14, 15]. Rydberg ions in Coulomb crystals will allow for shaping localized vibrational modes for quantum simulation and fast parallel execution of quantum gates [16, 17]. Further applications are dynamical structural phase transitions and non-equilibrium dynamics driven by Rydberg excitations [18].

Two major challenges have to be met in order to access the unique features of Rydberg ions: Firstly, excitation energies are large compared to the case of neutral atoms such that either a vacuum ultraviolet (VUV) laser source [9, 19] or multi-step excitation [20] with UV lasers is required; secondly, the large polarizability of Rydberg states makes them very sensitive to residual electric fields in the Paul trap, where an oscillating field with quadrupolar geometry and gradients of about  $10^7$ – $10^9$  V/m<sup>2</sup> provides stable trapping conditions. Ions are confined near the node (field-zero) of the electric quadrupole, nevertheless residual fields at the position of the ion perturb the Rydberg state and lead to a shifted and broadened resonance.

In this Letter, we present laser excitation of a single trapped cold ion to Rydberg states. Ions are initialized in the metastable  $3d^2D_{3/2}$  or  $3d^2D_{5/2}$  state before they are excited to the 51 F and 52 F (from  $D_{3/2}$ ), or respectively 64 F (from  $D_{5/2}$ ), state using vacuum ultraviolet radiation near 122 nm. By applying a state dependent fluorescence measurement following the decay of the Rydberg state, population transfer out of the initial D-state is detected. The polarizability of the Rydberg ion is deduced from the observed line-shift and line-

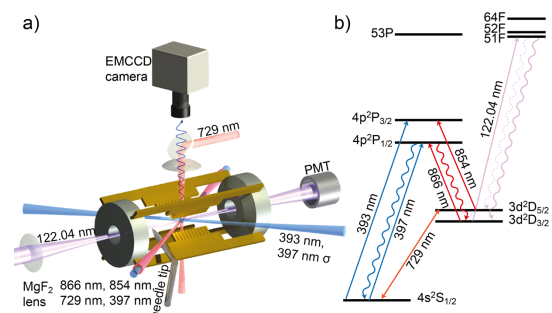


FIG. 1. a) Sketch of the x-shaped ion trap (B) with two segmented gold-covered DC blades and two RF blades. Laser beams near 397 nm, 866 nm, 854 nm, 393 nm and 729 nm can be switched and serve for cooling, optical pumping and state analysis. Fluorescence light near 397 nm is collected by a lens with numerical aperture  $NA = 0.27$  and imaged on an electron-multiplying charge-coupled device (EMCCD) camera. Holes in the end caps provide access for the VUV beam. The VUV beam intensity is monitored with a photomultiplier tube (PMT). A sharp tip can be moved into the trap for aligning the VUV beam. b) Levels and transitions in  $^{40}\text{Ca}^+$ . Ions are cooled on the  $S_{1/2}$  to  $P_{1/2}$  transition near 397 nm with optical pumping on the  $D_{3/2}$  to  $P_{1/2}$  transition at 866 nm and initialized for the Rydberg excitation by optical pumping into the  $D_{3/2}$  ( $D_{5/2}$ ) level with light near 397 nm (393 nm).

broadening, caused by residual electric fields in the trap.

Experiments were carried out in two different linear Paul traps. Trap (A) consists of four cylindrical rods with diameter  $d = 2.5$  mm at a diagonal distance of 2.2 mm, and two end caps at a distance of 10 mm [9, 21]. It has a rather large trapping volume and features stable ion trapping at very low field gradients. Trap (B) is constructed from x-shaped gold-covered blades at a diagonal distance of 0.96 mm (see ref. [22] and Fig. 1 a). Axial confinement is provided by applying voltages to the segments of the DC blades. The improved design of this trap allows for a more precise alignment of the electrodes. Thus residual fields at the ion are reduced and the trap can be operated at higher vibrational frequencies as compared to trap (A). Ions are loaded from a thermal beam of neutral calcium atoms by photo ionization with laser light near 423 nm and 375 nm. Trapped ions are illuminated by laser radiation

near 397 nm and 866 nm for optical cooling and fluorescence detection with an electron-multiplying charge-coupled device (EMCCD) camera. Additional laser beams at 393 nm, 854 nm and 729 nm allow for optical pumping, sideband spectroscopy and coherent manipulation of the  $4s^2S_{1/2} - 3d^2D_{5/2}$  transition, respectively.

Figure 1 b shows relevant energy levels of the calcium ion. The Rydberg transition is driven by VUV single-photon excitation at 122 nm wavelength from the metastable  $D_{3/2}$  and  $D_{5/2}$  levels. To generate continuous-wave coherent VUV radiation we employ four-wave sum-frequency mixing in mercury vapor. Power levels in the  $\mu\text{W}$  range are achieved using a triple-resonant scheme with fundamental light fields at 254 nm, 408 nm and 555 nm which are generated by frequency-doubling and frequency-quadrupling of lasers in the near infrared [9, 19]. The wavelength of these lasers are monitored by a wavelength meter (HighFinesse WSU-10), which is calibrated to the  $4s^2S_{1/2} - 3d^2D_{5/2}$  transition and thus accurate to about 100 MHz at the sum frequency. The VUV radiation is focused on the ion by a pair of  $\text{MgF}_2$  lenses and the transmitted power is monitored by a photomultiplier tube (PMT). For a precise determination of the focus we use a sharp tip which can be temporarily moved into the trap and monitor the transmission of the VUV beam. For the alignment of the beam the  $\text{MgF}_2$  lens closest to the trap as well as the ion trap's vacuum vessel are mounted on translation stages. Free movement between VUV source, focusing lens and ion trap is enabled by vacuum bellows on both sides of the lens. The  $\text{MgF}_2$  lens additionally acts as a seal between the ion trap's ultra-high vacuum ( $< 10^{-10}$  mbar) and the vacuum for transmitting the VUV radiation ( $\approx 10^{-6}$  mbar).

We search Rydberg resonances at wavelengths near 122.04 nm, where the efficiency of the four-wave mixing process is strongly enhanced by the nearby  $7^1S-11^1P$  resonance in mercury. Initial information about the expected resonances [23] could not be reproduced, and uncertainties of theory predictions [9] are too large, so that we had to search the full range of about 180 GHz between Rydberg states of consecutive principle quantum number.

Measurements have been performed with single ions and, in order to speed up data acquisition, with linear three-ion and five-ion crystals. Ions are excited to the Rydberg state in a sequence of steps. i) Initialization by optical pumping to the  $3d^2D_{3/2}$  state (lifetime: 1176(11) ms [24]). ii) VUV excitation by a 30 ms pulse. The Rydberg state then decays and within 30 ms is either back in the initial state, the  $3d^2D_{5/2}$  (lifetime: 1168(9) ms [24]), or the ground state  $4s^2S_{1/2}$  and the detection efficiency is therefore dominated by the branching fractions out of the initial state. iii) Optionally, ground state population is optically pumped into the  $3d^2D_{5/2}$  state with resonant light at 393 nm. This step is necessary for detection of Rydberg P states only and was dropped after we confirmed the excitation to the Rydberg F state. iv) Detection: Under resonant excitation with laser light at 397 nm and 866 nm the ion emits no fluorescence light, if the Rydberg excitation in (ii) was successful. Figure 2 a shows the

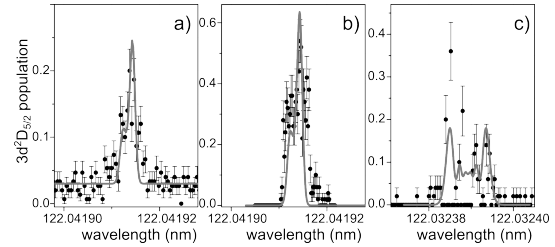


FIG. 2. a) and b): Rydberg excitation from the  $3d^2D_{3/2}$  to the 51 F state, at a VUV power of  $\approx 0.5 \mu\text{W}$  and 30 ms pulse duration. The trap (A) is operated at motional frequencies of  $\omega_{ax,rad}/(2\pi) = (90, 200)$  kHz. Different peak heights are due to variations of the VUV power and alignment for different measurement runs. a) Ground state population is optically pumped to the  $3d^2D_{5/2}$  state after the Rydberg excitation. The linewidth is  $\approx 60$  MHz full-width-at-half-maximum (FWHM). b) No optical pumping, only the direct population transfer to  $3d^2D_{5/2}$  is observed. This data confirms that the Rydberg level is a F-state (see text for details). c) Excitation from the  $3d^2D_{3/2}$  to the 52 F state in trap (B), operated at motional frequencies of  $\omega_{ax,rad}/(2\pi) = (270, 700)$  kHz. The line shape model includes broadening by thermal excitation, magnetic field, micromotion and Stark effect. Measurements were performed with a single ion, 150 cycles for each data point in a), while for b) and c) each data point is obtained from 50 cycles, the error bars depict the quantum projection noise.

observed resonance. Omitting step (iii) leads to a background free measurement since there is no population transfer from the  $3d^2D_{3/2}$  state to the  $3d^2D_{5/2}$  state without exciting a Rydberg resonance (the data is shown in Fig. 2 b).

We observe Rydberg excitation to the 51 F state at 122.041913(5) nm and to the 52 F state at 122.032384(10) nm wavelength. The linewidth of the excitation to the 51 F varies between 60 MHz and 400 MHz full-width at half-maximum (FWHM), depending on the trap control parameters. For the F resonances the branching ratio between the decay from the Rydberg state into the  $D_{5/2}$  and  $D_{3/2}$  state is estimated to be about 7 %, using data from lower-lying Rydberg states (cf. NIST atomic spectra database). In addition to the population transfer, double ionization followed by ion loss, is observed on resonance in  $\sim 0.3\%$  of the Rydberg excitations.

Higher lying Rydberg states are searched by initializing the ions in the  $3d^2D_{5/2}$  state using the detection sequence described above. We do not observe population transfer exceeding the 3% background caused by the finite lifetime of the  $3d^2D_{5/2}$  state. However, we see significantly increased ion loss rates, as in the case of the other resonances, between 122.04046 nm and 122.04055 nm wavelength. We ascribe this ion loss to the excitation of the 64 F state at 122.04050(5) nm. The resonance was scanned in 50 MHz steps with 50 cycles at each frequency. As the main broadening effect, polarization of the Rydberg state by residual electric fields, is proportional to  $n^7$ , the resonance width of  $\approx 2$  GHz full width is in agreement with the linewidth observed for the resonances to 51 F and 52 F.



Energy levels for Rydberg states are given by

$$E_{n,\delta} = -\frac{R_\infty}{1 + \frac{m_e}{m_{\text{Ca}^+}}} \times \frac{Z^2}{(n - \delta)^2} \quad (1)$$

where  $R_\infty$  is the Rydberg constant,  $m_e$  is the electron mass,  $m_{\text{Ca}^+}$  is the mass of the calcium ion,  $Z$  is the charge-state, and  $n$  is the principal quantum number.  $\delta$  denotes the quantum defect and values from theory [25] are  $\delta_F = 0.026$  and  $\delta_P = 1.44$  for F-states and P-states, respectively. Comparing measured excitation energies from the  $3d^2D_{3/2}$  state with data from earlier experiments [23] and theory [9], the principal quantum number  $n$  can be narrowed down to be in the vicinity of 52. Applying Eq. 1 we find that the observed energy differences correspond to  $n = 51$ ,  $n = 52$  and  $n = 64$  with quantum defects calculated from pairs of resonances as  $\delta_{5152} = -0.08(3)$ ,  $\delta_{5164} = 0.01(1)$  and  $\delta_{5264} = 0.03(1)$ . While the latter two are in agreement with theory, there is a deviation  $> 3\sigma$  for  $\delta_{5152}$ . This discrepancy might indicate effects beyond single channel quantum defect theory for  $\text{Ca}^{2+} + e^-$  [26]. Table 1 shows the transition frequencies and energies determined. Measured frequencies of 411 042 130 MHz for the  $4s^2S_{1/2} - 3d^2D_{5/2}$  transition [27] and 1 819 599 MHz for the  $3d^2D_{5/2} - 3d^2D_{3/2}$  fine structure splitting [28] have been used in the data analysis. The identification of the resonances is supported by the fact that decay from the Rydberg F-states is mainly into the D states as observed experimentally (see Fig. 2 b), in contrast to Rydberg P-states which would predominantly decay into the ground state [29].

state	wavelength from $D_{3/2}$	wavelength from $D_{5/2}$	$\Delta E \text{ cm}^{-1}$
51F	122.041 913(5) nm	–	95589.258(3)
52F	122.032 384(10) nm	–	95595.656(7)
64F	–	122.040 50(5) nm	95650.901(33)

TABLE I. Levels, transition vacuum wavelengths, and energies from the  $S_{1/2}$  ground state.

In order to model the observed resonance lines, the electric field, the motional state of the ion and the magnetic field are taken into account: Due to fabrication imperfections in the geometry of trap (A), the ion is exposed to an alternating electric field proportional to the trap drive amplitude  $E_{geom} = 0.8(3) \times U_{RF}/m \times \sin(\Omega t)$ , where  $U_{RF}$  is the applied radio frequency voltage at the trap drive frequency  $\Omega/2\pi$ . This has been determined by measuring the micromotion broadening of the  $4s^2S_{1/2} - 4p^2P_{3/2}$  transition. In comparison, additional fields  $E_{charge}$  in radial direction due to charging of electrodes by scattered VUV light are about an order of magnitude smaller when compensated optimally.

The oscillating field  $E_{geom}$  is pointing in the axial direction along the VUV laser beam, and leads to a modulation of the Rydberg energy due to the electric polarizability  $\alpha$ , and, in addition, to a modulation of the Doppler effect due to the induced micromotion. The instantaneous resonance frequency reads:

$$\omega(t) = \omega_0 + kx_{mm}\Omega \sin \Omega t - \frac{\alpha E_{geom}^2}{2} \cos^2 \Omega t. \quad (2)$$

Here,  $\omega_0$  is the bare resonance frequency,  $k$  is the wavenumber of the laser along the motion of the ion,  $E_{geom}$  is the electric field amplitude and  $x_{mm}$  is the micromotion amplitude. From this equation we can derive the temporal shape of the resonance laser field

$$E_{res}(t) \propto e^{-i\omega_0 t} e^{i2\beta_\alpha \Omega t} \times \sum_n J_n(\beta_{mm}) e^{in(\Omega t + \frac{\pi}{2})} \times \sum_m (-1)^m J_m(\beta_\alpha) e^{2im\Omega t}. \quad (3)$$

In this equation we define the modulation index in the Bessel functions  $J_n(\beta)$  due to the axial micromotion by  $\beta_{mm} = kx_{mm}$  and due to the oscillating Stark shift by  $\beta_\alpha = \alpha E_{geom}^2/8\Omega$ . The second exponent in Eq. (3) denotes a static frequency shift due to the fact that the modulated Stark shift can only reduce the transition frequency to the F states. It is apparent that the lineshape comes from a complicated interplay from the sidebands at  $n \times \Omega_{rf}$  caused by the micromotion and the sidebands at  $2n \times \Omega_{rf}$  caused by the oscillating Stark shift. Thermal ion motion at  $T \approx 5$  mK, as determined from the Doppler broadening of the  $4s^2S_{1/2} - 3d^2D_{5/2}$  transition and the magnetic field of  $B = 0.45$  mT, determined from the Zeeman splitting of the  $4s^2S_{1/2} - 3d^2D_{5/2}$  transition, are leading to a broadening of  $\sigma \sim 10$  MHz. Thus, the lineshape observed in the experiment is a convolution of Eq. (3) and a Gaussian. As the Paul trap is operated at  $\Omega_{rf}/2\pi$  between 3.5 MHz and 5.2 MHz, the sidebands are not resolved in the spectrum.

With the known electric field amplitude  $E_{geom}$  we estimate  $\alpha$  from the fit of the observed resonance line shape, the data is presented in Fig. 3 a). Calculated lineshapes at various electric fields for the transitions to the 51F-state and 51P-state are presented in Fig. 3 b) and c), the polarizabilities used in the calculation are estimated from second-order perturbation theory with neglected spin-orbit coupling. We use the quantum defects found in [25] and the method developed in [30] to obtain approximate analytical wavefunctions for computing matrix elements. As a check of the accuracy of this approach, we compare the calculated lifetime of the 4P state of 6.55 ns, to the experimental value of 7 ns, which agrees reasonably well. In the second-order perturbation theory, we set  $m_L = 0$ , which is justified as this state experiences the largest Stark shift for the states of interest. In the calculation, we take couplings to the states  $n = 40, \dots, 60$  into account, which was found to lead to convergence.

The experimentally determined  $\alpha/2 = 5_{-3}^{+7} \times 10^2 \text{ MHz}/(\text{V}/\text{cm})^2$  is in agreement with the polarizability of the 51 F state,  $\alpha_{51F}/2 \approx 4 \times 10^2 \text{ MHz}/(\text{V}/\text{cm})^2$  obtained from second-order perturbation theory and neglecting spin-orbit coupling. Under the assumption that

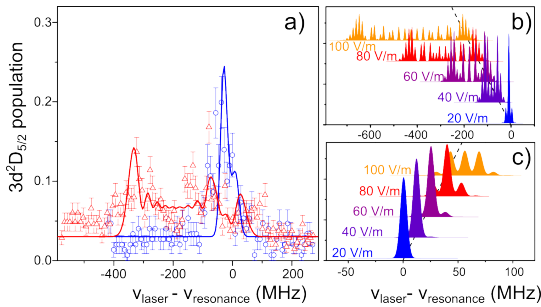


FIG. 3. a) Experimental data (trap A) of the  $3d^2D_{3/2}$  to 51F resonance with  $E_{geom} = 24$  V/m (blue) and 84 V/m (red). Fitting the data with our lineshape model, we determine  $\alpha_{51F}/2 = 5^{+7}_{-3} \times 10^2$  MHz/(V/cm) $^2$  for the polarizability. Measurements were performed with one ion and 150 cycles per data point for the resonance at 24 V/m (blue) while at 84 V/m (red) a five ion crystal and 70 cycles per data point were used. The error bars depict the quantum projection noise. b) Calculated lineshapes for the  $D_{3/2}$  to 51 F transition at different residual electric fields. The axial micromotion is neglected (trap B) and cooling to the Doppler limit is assumed. Features of this calculation are compatible with experimental data. c) Set of lineshapes for the transition  $D_{3/2}$  to 51 P with the same parameters as in b). Features of this calculation are incompatible with experimental data. This observation corroborates the identification of the excited Rydberg levels as F-states.

the Rydberg level is the 51 P state, the determined electric polarizability would be inconsistent with the theoretical value of  $\alpha_{51P}/2 \approx -37 \times \text{MHz}/(\text{V/cm})^2$  from ref. [31]. Again, this supports the identification of the Rydberg levels as F-states.

In trap (B), axial micromotion is negligible, but residual electric fields  $E_{charge}$  generated by charging the surface of the trap electrodes with VUV radiation are stronger as compared to trap (A) due to a smaller distance from the ion. The resulting field is thus pointing in the radial direction and linebroadening by micromotion in the direction of the VUV beam is small while the Stark effect remains the dominant line broadening effect. As this stray field  $E_{charge}$  is subjected to drifts during the run of the experiment we have not used it for polarizability measurements.

In both traps we have observed that Rydberg excitation becomes unstable after several months of experimenting. Contamination of electrode surfaces by Ca from the loading atomic beam might be an explanation for this behavior; as the work function of Ca is much smaller compared to Au, we expect a high flux of electrons from contaminated surfaces, accelerated by the rf-trap. These electrons may perturb the highly susceptible Rydberg states preventing us from observing the resonance.

In the future, we plan to use a dedicated ion-loading zone well separated from the spectroscopy zone [32, 33] which is shielded from the calcium beam to avoid VUV-induced photoemission of electrons close to the trapped ions. Increased VUV power and tighter focusing will allow for significantly higher excitation rates. This should enable the excitation of Rydberg P-states, where the dipole matrix elements are lower by about one order of magnitude. Much narrower excitation

resonances are expected from Rydberg P-states, because the electric polarizability is lower ( $\alpha_P/\alpha_F \approx 0.1$ ). For a single ion in the motional ground state, and exposed to residual electric field of 65 V/m as deduced from the Rydberg resonance in Trap (B), we expect a modulation index of 0.6. This results in a strong carrier and resolved sidebands at a frequency of  $\pm 2 \times \Omega_{rf}$  weaker by a factor of three. In view of driving coherent dynamics, we note that with the values for VUV power of  $3 \mu\text{W}$  and a waist of  $10 \mu\text{m}$  already achieved, Rabi frequencies of up to  $2\pi \times 150$  kHz for the transition  $3d^2D_{3/2}$  to 52 P are expected [9], which is much faster than the natural decay of  $217 \mu\text{s}$  [34].

In conclusion we have observed and identified Rydberg excitations of a single cold ion and measured the lineshape of the resonance which implies a strong state-dependent coupling to the electric trapping potential. This experimental work is a starting point for establishing a novel platform of Rydberg matter, where the unique possibilities of state dependent electric forces as well as long-range dipole-dipole interactions are combined with the outstanding control over quantum states in trapped ion crystals.

*Acknowledgments* The authors acknowledge helpful discussions with W. Li, I. Lesanovsky, P. Zoller and M. Drewsen. We acknowledge G. Jakob and S. Wolf for support with the assembly of trap (B). This work was funded by the BmBF and the chist-era network (R-ION consortium) and by the European Union H2020 FET Proactive project RySQ (grant N. 640378).

\* feldker@uni-mainz.de

† Present address: Institut für Technische Physik, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt, Pfaffenwaldring 38-40, D-70569 Stuttgart, Germany

‡ <http://www.quantenbit.de>

- [1] J. M. Raimond, M. Brune, and S. Haroche, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 565 (2001).
- [2] M. Saffman, T. Walker, and K. Mølmer, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2313 (2010).
- [3] M. D. Lukin, M. Fleischhauer, R. Cote, L. M. Duan, D. Jaksch, J. I. Cirac, and P. Zoller, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 037901 (2001).
- [4] V. Bendkowsky, B. Butscher, J. Nipper, J. P. Shaffer, R. Löw, and T. Pfau, *Nature* **458**, 1005 (2009).
- [5] T. Wilk, A. Gaëtan, C. Evellin, J. Wolters, Y. Miroshnychenko, P. Grangier, and A. Browaeys, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 010502 (2010).
- [6] L. Isenhower, E. Urban, X. L. Zhang, A. T. Gill, T. Henage, T. A. Johnson, T. G. Walker, and M. Saffman, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 010503 (2010).
- [7] T. Peyronel, O. Firstenberg, Q. Y. Liang, S. Hofferberth, A. V. Gorshkov, T. Pohl, M. D. Lukin, and V. Vuletic, *Nature* **488**, 57 (2012).
- [8] M. Müller, L. Liang, I. Lesanovsky, and P. Zoller, *New J. Phys.* **10**, 093009 (2008).
- [9] F. Schmidt-Kaler, T. Feldker, D. Kolbe, J. Walz, M. Müller, P. Zoller, W. Li, and I. Lesanovsky, *New J. Phys.* **13**, 075014 (2011).





## 3. Zusammenfassung der Ergebnisse

Ziel dieser Arbeit war die Realisierung einer leistungsstarken kontinuierlichen Laserquelle im vakuumultravioletten Spektralbereich für die Rydberganregung von gefangene Calciumionen. Die Erzeugung dieser Strahlung erfolgt durch Vierwellenmischen in Quecksilberdampf.

Voraussetzung für eine hohe Konversionseffizienz dieses nichtlinearen Prozesses sind fundamentale Lasersysteme, deren Lichtfrequenzen nahresonant zu den atomaren Übergängen des nichtlinearen Mediums eingestellt werden können. Um eine hohe optische Ausgangsleistung der vakuumultravioletten Strahlung zu erhalten, sind außerdem hohe Leistungen dieser fundamentalen Lasersysteme nötig. Ein weiterer wichtiger Aspekt für eine zuverlässige vakuumultraviolette Lichtquelle ist die Stabilität in Leistung und Frequenz und der Wartungsaufwand der fundamentalen Lasersysteme.

### 3.1. Entwicklung der fundamentalen Lasersysteme und der vakuumultravioletten Laserquelle

In den vergangenen Jahren und besonders im Rahmen dieser Arbeit konnte die vakuumultraviolette Laserquelle in allen genannten Eigenschaften - Effizienz, Leistung und Zuverlässigkeit - verbessert werden, indem neue fundamentale Lasersysteme entwickelt wurden. Den größten Anteil daran haben die selbst gebauten Ytterbium-Faserverstärkersysteme.

Ytterbium-Faserverstärkersysteme zeichnen sich durch ihren großen spektralen Verstärkungsbereich, hohe Ausgangsleistungen, hohe Strahlqualität und geringen Wartungsaufwand aus. Diese Eigenschaften weist auch das in Publikation 1 (Abschnitt 2.1) vorgestellte Ytterbium-Faserverstärkersystem auf. Es wurde zunächst für eine Wellenlänge von 1091 nm konzipiert, bei der eine optische Ausgangsleistung von 30 W mit einer optisch-zu-optischen Effizienz von 52 % erzielt werden konnte. Damit konnte eine Leistung von 19,3 W bei 545 nm für die Frequenzverdopplung in einem Überhöhungsresonator mit einem LBO-Kristall und 8,6 W bei 545 nm für die Frequenzverdopplung im Einfachdurchgang durch einen periodisch gepolten Kristall erreicht werden. Die Leistungsschwankung sind kleiner als 5 % bzw. 3 % und die Ausgangsleistung fällt über längere Betriebszeiten nur geringfügig ab. Der infrarote Strahl ( $M^2 = 1,2$ ) sowie der grüne Strahl ( $M^2 < 1,2$ ) weisen jeweils eine hohe Strahlqualität auf. Beim Langzeitbetrieb über mehrere Monate zeigt das System eine hohe Stabilität mit geringem War-

tungsaufwand. Lediglich die Einkopplung der Signallaserstrahlung in den Kern der ersten und zweiten Verstärkerglasfaser sollte im Abstand von mehreren Wochen optimiert werden. Das Lasersystem wurde für den Betrieb bei einer Wellenlänge von 1110 nm umgebaut und optimiert. Dabei konnte eine Leistung von 8 W im Infraroten und eine Leistung von 5 W bei 555 nm für die Frequenzverdopplung in einem Überhöhungsresonator mit einem LBO-Kristall und 1,2 W bei 555 nm für die Frequenzverdopplung in einem periodisch gepolten Kristall erzielt werden. Es weist die gleiche Leistungs- und Langzeitstabilität wie das ursprüngliche System auf.

Nach dem Vorbild des in Publikation 1 vorgestellten Faserverstärkersystems wurde in dieser Gruppe ein kryogenes Ytterbium-Faserverstärkersystem bei einer Wellenlänge von 1015 nm entwickelt, mit dem eine Ausgangsleistung von 3,5 W erreicht wird. Durch zwei aufeinander folgende Frequenzverdopplungen wird Licht bei 254 nm mit Leistungen bis zu 500 mW erzeugt. Die ultraviolette Leistung ist momentan durch die zur Verfügung stehende infrarote Leistung begrenzt. Es wurde jedoch bereits ein weiteres kryogenes Faserverstärkersystem mit einer Ausgangsleistung von 10 W bei 1015 nm aufgebaut [SKB<sup>+</sup>13], womit Leistungen von bis zu 750 mW bei 254 nm erreicht werden sollten [SMW<sup>+</sup>07].

Die Vorzüge der Faserverstärkersysteme werden deutlich, wenn man sie mit den Lasern der ersten Erzeugung von kontinuierlicher Strahlung bei 121,56 nm vergleicht [EWH99]. Damals wurde im ultravioletten Spektralbereich ein frequenzverdoppelter Argon-Ionen-Laser mit einer Leistung von 750 mW bei einer Wellenlänge von 257 nm und im grünen Spektralbereich ein Farbstofflaser mit einer Leistung von 640 mW bei einer Wellenlänge von 545 nm verwendet. Gegenüber diesen Lasern besitzen die modernen Faserverstärkersysteme mehrere Vorteile: Faserverstärker weisen eine höhere elektrische zu optische Effizienz auf und benötigen verglichen zu Argon-Ionen-Lasern eine deutlich geringere elektrische Leistung (kein Drehstrom notwendig). Sie sind robuster und weniger wartungsaufwändig, insbesondere im Vergleich zu Farbstofflasern. Faserverstärker bieten einen großen spektralen Verstärkungsbereich, während Argon-Ionen-Laser nur diskrete Emissionswellenlängen aufweisen. Für das Faserverstärkersystem mit Frequenzvervierfachung im ultravioletten Spektralbereich ist es daher möglich, eine Wellenlänge beliebig nahe der Anregungswellenlänge von 253,65 nm des  $6^1S-6^3P$ -Übergangs in Quecksilber zu wählen, wodurch die Effizienz des Vierwellenmischprozesses gesteigert werden kann [KSW13]. Zudem wird für die Phasenanpassung eine geringere Temperatur benötigt, durch die ein Niederschlag von Quecksilber an den optischen Elementen vermieden wird. Schließlich können Faserverstärker hohe Ausgangsleistungen aufweisen. So besitzt das Faserverstärkersystem mit Frequenzverdopplung im grünen Spektralbereich im Vergleich zum Farbstofflaser eine um den Faktor 30 höhere Leistung.

Die in [EWH99] vorgestellte vakuumultraviolette Laserquelle, mit fundamentalen Feldern bei Wellenlängen von 257 nm, 399 nm und 545 nm, liefert eine Leistung von 0,5 nW bei einer Wellenlänge von 121,56 nm. Die auf die Eingangsleistungen normierte Konver-

Tabelle 3.1.: **Vakuumultraviolette Leistung bei 121,56 nm.** Die Werte der ersten Zeile sind [EWH99] entnommen. In der zweiten Zeile werden die maximalen fundamentalen Leistungen angenommen, die im Rahmen dieser Arbeit gemessen wurden. Unter Berücksichtigung der Verluste der fundamentalen Leistung errechnet sich die vakuumultraviolette Leistung (grau).

	$P_{UV}$	$P_{blau}$	$P_{grün}$	Konv.eff.	$P_{VUV}$
[EWH99]	0,75 W @ 257 nm	0,3 W @ 399 nm	0,64 W @ 545 nm	11 nW/W <sup>3</sup> @ 121,56 nm	0,5 nW @ 121,56 nm
aktuelle Lasersysteme	0,5 W @ 254 nm	2 W @ 408 nm	19,3 W @ 545 nm	69 nW/W <sup>3</sup> [KSW13] @ 121,56 nm	530 nW @ 121,56 nm

sionseffizienz liegt bei 11 nW/W<sup>3</sup>. Durch Ausnutzen des 6<sup>1</sup>S - 6<sup>3</sup>P-Übergangs in Quecksilber konnte in [KSW13] mit fundamentalen Feldern bei Wellenlängen von 254 nm, 408 nm und 545 nm eine deutlich höhere Konversionseffizienz von 69 nW/W<sup>3</sup> erzielt werden. Unter Berücksichtigung dieser Konversionseffizienz ist für die maximalen Leistungen der aktuellen Lasersysteme eine Leistung von etwa 530 nW zu erwarten. Dabei wurden die Verluste der Fundamentalen durch Strahlformung und an der Fokussierlinse vor der Quecksilberdampfzelle berücksichtigt, die insgesamt etwa 40 % betragen. Die zu erwartende Steigerung durch die neuen Fundamentallasersysteme beträgt mehr als drei Größenordnungen. In Tabelle 3.1 sind die verwendeten Leistungen zusammengefasst. Dreifach-resonantes Vierwellenmischen wurde erstmals in [KSW12] untersucht. Dabei wurden fundamentale Felder bei Wellenlängen von 254 nm, 408 nm und 540 nm verwendet, um die Resonanzen 6<sup>1</sup>S-6<sup>3</sup>P, 6<sup>1</sup>S-7<sup>1</sup>S und 6<sup>1</sup>S-12<sup>1</sup>P in Quecksilber zu nutzen. Es konnte eine maximale Leistung von 6  $\mu$ W mit einer Konversionseffizienz von 256  $\mu$ W/W<sup>3</sup> bei einer Wellenlänge von 121,26 nm generiert werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine kontinuierliche vakuumultraviolette Laserquelle bei einer Wellenlänge von 122,04 nm durch Vierwellenmischen in Quecksilber mit Fundamentalfeldern bei Wellenlängen von 254 nm, 408 nm und 555 nm realisiert. Dabei werden die Resonanzen 6<sup>1</sup>S-6<sup>3</sup>P, 6<sup>1</sup>S-7<sup>1</sup>S und 6<sup>1</sup>S-11<sup>1</sup>P in Quecksilber ausgenutzt. Bei der Justage wurde die Überlagerung der Foki der Fundamentalstrahlen und die Ausrichtung der Quecksilberdampfzelle optimiert. Es konnte eine maximale Leistung von 60  $\mu$ W mit einer Effizienz von etwa 1,5 mW/W<sup>3</sup> bei einer Wellenlänge von 122,0406 nm erzielt werden. Dabei betragen die fundamentale Leistungen in der Quecksilberzelle gemessen 0,1 W bei 254 nm, 1,13 W bei 408 nm und 0,87 W bei 555 nm. Die vakuumultraviolette Leistung konnte damit um eine Größenordnung gesteigert werden. Stehen die vollen fundamentalen Leistungen von 0,5 W bei 254 nm, 2 W bei 408 nm und 5 W bei 555 nm zur Verfügung errechnet sich bei gleicher Konversionseffizienz und unter Berücksichtigung der Verluste der Fundamentalstrahlen eine vakuumultraviolette Leistung von drei Milliwatt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3.2 zusammengefasst.

Tabelle 3.2.: **Vakuultraviolette Leistung bei dreifach-resonantem Vierwellenmischen in Quecksilber.** Die Werte der ersten Zeile sind [KSW12] entnommen. Die in der zweiten Zeile aufgeführte vakuultraviolette Leistung wurden im Rahmen dieser Arbeit gemessen. Daraus wurde unter Berücksichtigung der Verluste der Fundamentalstrahlen von 40 % die Konversionseffizienz berechnet. In der dritten Zeile werden die maximalen fundamentalen Leistungen angenommen. Unter Berücksichtigung der Verluste der Fundamentalstrahlen errechnet sich die vakuultraviolette Leistung (grau).

	$P_{UV}$	$P_{\text{blau}}$	$P_{\text{grün}}$	Konv.eff.	$P_{VUV}$
[KSW12]	0,18 W @ 254 nm	0,25 W @ 408 nm	0,23 W @ 540 nm	0,26 mW/W <sup>3</sup> @ 121,26 nm	6 $\mu$ W @ 121,26 nm
aktuelle Lasersysteme	0,1 W @ 254 nm	1,13 W @ 408 nm	0,87 W @ 555 nm	1,5 mW/W <sup>3</sup> @ 122,04 nm	60 $\mu$ W @ 122,04 nm
maximale Leistung	0,5 W @ 254 nm	2 W @ 408 nm	5 W @ 555 nm	1,5 mW/W <sup>3</sup> @ 122,04 nm	3 mW @ 122,04 nm

Die Frequenzverdopplung von nahinfraroten Feldern ist eine etablierte Methode, um leistungsstarke kohärente Strahlung im sichtbaren Spektralbereich bereitzustellen. Die für das Vierwellenmischen verwendeten fundamentalen Felder werden jeweils durch eine Frequenzverdopplung von nahinfraroten Lasersystemen mit optischen Leistungen im Wattbereich erzeugt. Konventionelle Frequenzverdopplungskristalle weisen eine geringe Nichtlinearität auf. Um dennoch hohe Leistungen der harmonischen Strahlung zu erhalten werden diese in Überhöhungsresonatoren verwendet, deren Länge auf ein Vielfaches der Fundamentalwellenlänge stabilisiert wird. Eine Alternative bieten periodisch gepolte Kristalle, die eine deutlich höhere Nichtlinearität besitzen. Daher kann man bereits bei der Frequenzverdopplung im Einfachdurchgang je nach verfügbarer Fundamentalleistung Konversionseffizienzen von mehreren 10 Prozent erreichen. Der Aufbau einer solchen Frequenzverdopplung ist kostengünstiger und weniger zeitaufwändig. Zudem ist die Frequenzverdopplung im Einfachdurchgang in der Leistung intrinsisch stabil und eignet sich für durchstimmbare Lasersysteme.

Dennoch wird in vielen Fällen auf Frequenzverdopplungsresonatoren zurückgegriffen, da die zur Verfügung stehende Fundamentalleistung zu klein ist, um hohe Konversionseffizienzen zu erzielen. In Publikation 2 (Abschnitt 2.2) wird eine Frequenzverdopplung im Zweifachdurchgang durch einen periodisch gepolten Kristall vorgestellt, die deutlich höhere Konversionseffizienzen ermöglicht. Mit diesem Schema konnte eine Konversionseffizienz von 60 % und eine Leistung von 12,8 W bei einer Wellenlänge von 545,5 nm erzielt werden. Die erreichte Konversionseffizienz stellte zum Veröffentlichungszeitpunkt, nach bestem Wissen, den höchsten Wert in periodisch gepolten Kristallen in dieser Leistungsklasse dar. Insbesondere für kleine fundamentale Leistungen konnte gegenüber der



Frequenzverdopplung im Einfachdurchgang eine deutliche Steigerung um einen Faktor drei festgestellt werden. Für das verwendete Frequenzverdopplungsschema wurde ein Patent angemeldet [SKW13].

Die Anwendung dieses Schemas ist generell immer möglich, falls periodisch gepolte Kristalle in dem betreffenden Wellenlängenbereich erhältlich sind. Für die in dieser Arbeit verwendeten Fundamentallasersysteme ist es denkbar, die Frequenzverdopplungen von 1110 nm zu 555 nm, von 1080 nm zu 540 nm, von 1015 nm zu 507,5 nm und von 816 nm zu 408 nm im Zweifachdurchgang durch einen periodisch gepolten Kristall aufzubauen. Dabei bleiben die Vorteile einer hohen Leistungsstabilität und einer guten kontinuierlichen Durchstimbarkeit der Frequenzverdopplung im Einfachdurchgang erhalten und werden um eine hohe Konversionseffizienz ergänzt.

## 3.2. Wechselwirkung von vakuumultravioletter Strahlung mit gefangenen Calciumionen

Im Rahmen dieser Arbeit konnte erstmals eine Wechselwirkung zwischen kohärenter Strahlung im vakuumultravioletten Spektralbereich und gefangenen Calciumionen nachgewiesen werden: Licht bei einer Wellenlänge von 121,26 nm wurde auf einen Ionenkristall fokussiert und führte zur Ionisation von einzelnen  $\text{Ca}^+$ -Ionen. Mit einer optischen Leistung von  $0,5 \mu\text{W}$  und einem Strahldurchmesser von etwa  $60 \mu\text{m}$  konnten Ionisationsraten von 1/min erreicht werden.

Heterogene Kristalle, bestehend aus einem  $\text{Ca}^{2+}$  und mehreren  $\text{Ca}^+$ -Ionen, die sich auf diese Weise erzeugen lassen, wurden untersucht.

Es wurden die Vibrationsmoden von gemischten Kristallen mit zwei  $\text{Ca}^+$  und einem  $\text{Ca}^{2+}$  in Abhängigkeit von der Position des  $\text{Ca}^{2+}$  analysiert. Das gemessene Modenspektrum stimmt gut mit Werten aus einer numerischen Simulation überein. Außerdem wurden solche Kristall-Strukturübergänge von einer linearen Kette in eine Zickzack-Konfiguration für verschiedene Positionen des  $\text{Ca}^{2+}$ -Ions untersucht. Die experimentell beobachteten Phasenübergänge zwischen den verschiedenen Strukturen sind konsistent mit den theoretischen Werten der kritischen Anisotropieparameter. Die beobachteten Phasenübergänge bei heterogenen Kristallen zeigen, dass die Änderung des internen Zustands eines einzelnen Ions durch Wechselwirkung mit vakuumultravioletter Strahlung von starken mechanischen Kräften begleitet wird und so die äußere Struktur des Gesamtkristalls beeinflusst. Sie sind damit als wichtiger Zwischenschritt zu den in [LL12] vorgeschlagenen Phasenübergängen durch Anregung eines Ions in einen Rydbergzustand anzusehen, was zu einer kohärenten Kopplung von internen und externen Zuständen führt. Dies ermöglicht unter anderem die Erzeugung nichtklassischer Bewegungszustände [MMK<sup>+</sup>96]. Darüber hinaus konnten lokale Vibrationsmoden in einem gemischten Ionenkristall nachgewiesen werden. Dafür wurde ein linearer Kristall aus fünf  $\text{Ca}^+$  und einem  $\text{Ca}^{2+}$  im Zentrum erzeugt. Dadurch entstanden im Kristall zwei

Tabelle 3.3.: **Anregungswellenlängen und -energien der gefundenen Rydbergresonanzen.**

	Anregungswellenlänge von 3D-Zustände	Anregungsenergie vom 4S-Zustand
<b>Resonanz 1</b>	122,041913(5) nm	95589,258(3) cm <sup>-1</sup>
<b>Resonanz 2</b>	122,032384(10) nm	95595,656(7) cm <sup>-1</sup>
<b>Resonanz 3</b>	122,040500(5) nm	95650,901(33) cm <sup>-1</sup>

Bereiche mit zwei bzw. drei Ca<sup>+</sup>-Ionen, deren Vibrationsmoden mit unterschiedlichen Resonanzfrequenzen angeregt werden konnten. Die Oszillationen beschränkten sich dabei fast ausschließlich auf einen der beiden Teile mit den einfach geladenen Calciumionen. Die gemessenen Vibrationsfrequenzen und Oszillationsamplituden zeigen eine gute Übereinstimmung mit simulierten Werten. Die Ausbildung lokaler Moden könnte in Zukunft dafür verwendet werden, um eine parallele Ausführung von Quantenoperationen auf räumlich getrennten Bereichen einer Ionenkette durchzuführen [LGNL13], wobei eine Erweiterung auf zweidimensionale Kristalle denkbar ist [KUJ<sup>+</sup>12, NDG<sup>+</sup>15].

Des Weiteren gelang im Rahmen dieser Arbeit erstmals eine Rydberganregung von einem gefangenen Calciumion. Die Anregung erfolgte durch einen Einphotonübergang mit kontinuierlicher Strahlung bei einer Wellenlänge von 122,04 nm. Das Licht wurde auf einen Ionenkristall fokussiert und hatte am Ort der Ionen einen Strahldurchmesser von etwa 40 μm mit einer Leistung von mehreren μW.

Ausgehend vom metastabilen 3<sup>2</sup>D<sub>3/2</sub>-Niveau wurden mit dem in Abschnitt 1.5 beschriebenen Schema Rydbergübergänge bei vakuumultravioletten Wellenlängen von 122,041913(5) nm und 122,032384(10) nm gemessen. Zusätzlich wurde bei einer Wellenlänge von 122,04050(5) nm vom metastabilen 3<sup>2</sup>D<sub>5/2</sub>-Niveau aus eine erhöhte Ionenverlustrate aus der Falle beobachtet, was auf einen weiteren Rydbergübergang hindeutet. In Tabelle 3.3 sind die Anregungswellenlänge aus den metastabilen 3D-Zuständen und Anregungsenergien aus dem Grundzustand für die gefundenen Rydbergresonanzen aufgelistet.

Mit Gleichung (1.13) aus Abschnitt 1.6 lässt sich abschätzen, dass die gemessenen drei Resonanzen in der näheren Umgebung der Hauptquantenzahlen  $n_1 = 52$ ,  $n_2 = 53$  und  $n_3 = 65$  liegen müssen. Für eine eindeutige Identifikation der Resonanzen ist es nötig, zunächst die Nebenquantenzahl der angeregten Rydbergzustände zu bestimmen. Da die Anregung aus den metastabilen D-Zuständen erfolgt, sind Übergänge in Niveaus mit Nebenquantenzahlen  $L = 1 \hat{=} P$  und  $L = 3 \hat{=} F$  möglich.

Bei Anregung der ersten beobachteten Rydbergresonanzen fiel auf, dass die angeregten Zustände hauptsächlich in die 3D-Zustände und kaum in den Grundzustand zerfallen. Das zeigt sich daran, dass die gemessene Anregungswahrscheinlichkeit aus dem 3<sup>2</sup>D<sub>3/2</sub> ohne das optische Umpumpen in den 3<sup>2</sup>D<sub>5/2</sub>-Zustand nicht kleiner wird. Ein angereg-

ter P-Zustand zerfällt zu einem großen Teil in den Grundzustand  $4^2\text{S}_{1/2}$ , wodurch das optische Pumpen in den  $3^2\text{D}_{5/2}$ -Zustand die gemessenen Anregungswahrscheinlichkeit signifikant vergrößert. Da keine Erhöhung der Anregungswahrscheinlichkeit beobachtet wurde, ist davon auszugehen, dass es sich um einen angeregten F-Zustand handelt, der hauptsächlich in die 3D-Zustände zerfällt.

Ein weiterer Hinweis auf die Nebenquantenzahl ergibt sich bei Betrachtung der Linienform der beobachteten Rydbergresonanzen. Die spektralen Breiten der gemessenen Kurven zeigen eine starke Abhängigkeit von der angelegten Amplitude des RF-Fallenfeldes, das die elektrische Feldstärke in der Nähe des Ions bestimmt. Je nach eingestellter Amplitude ist die volle Halbwertsbreite der Resonanzkurven zwischen 60 MHz und 400 MHz. Für eine theoretische Beschreibung der Linienform der gemessenen Resonanzen wurde ein Modell aufgestellt, das Beiträge durch das elektrische Feld der Falle, den Bewegungszustand des Ions und externe magnetische Felder berücksichtigt. Das aus Mikrobewegung und elektrischem Feld resultierende Seitenbandspektrum wird durch folgende Gleichung beschrieben

$$E_{res}(t) = e^{i\omega_0 t} e^{i2\beta_\alpha \Omega t} \sum_n J_n(\beta_{mm}) e^{i(n\Omega t + \pi/2)} \sum_m (-1)^m J_m(\beta_\alpha) e^{i2m\Omega t}, \quad (3.1)$$

wobei  $\beta_{mm}$  bzw.  $\beta_\alpha$  die Modulationsindizes der Besselfunktionen  $J_n$  bzw.  $J_m$ , bedingt durch die Mikrobewegung bzw. durch das elektrische Feld, und  $\omega_0$  bzw.  $\Omega$  die vakuumultraviolette Anregungsfrequenz bzw. die Fallenfrequenz sind. Berücksichtigung der thermischen Bewegung der Ionen und des magnetischen Felds führt zu einer Gaußschen Verbreiterung des Spektrums und ergibt die vollständige Linienform. Mit dem Wert des elektrischen Felds am Ort des Ions, bestimmt durch die Verbreiterung des  $4^2\text{S}_{1/2} - 4^2\text{P}_{3/2}$  Übergangs, dem magnetischen Feld am Ort des Ions ( $B = 0,45 \text{ mT}$ ), bestimmt durch die Zeemanaufspaltung des  $4^2\text{S}_{1/2} - 3^2\text{D}_{5/2}$  Übergangs, und der Temperatur des Ions ( $T \approx 5 \text{ mK}$ ), bestimmt durch die Dopplerverbreiterung des  $4^2\text{S}_{1/2} - 3^2\text{D}_{5/2}$  Übergangs kann durch Anpassung der Linienform an die experimentellen Daten die Polarisierbarkeit  $\alpha$  des angeregten Zustands bestimmt werden. Ein Fit an die Daten der ersten beobachteten Rydbergresonanz ( $122,041913(5) \text{ nm}$ ) ergibt  $\alpha/2 = 5_{-3}^{+7} \times 10^2 \text{ MHz}/(\text{V}/\text{mm})^2$ . Dieser Wert ist konsistent mit dem theoretischen Wert der Polarisierbarkeit eines F-Zustands  $\alpha_{51F}/2 = 4 \times 10^2 \text{ MHz}/(\text{V}/\text{mm})^2$  [FBS<sup>+</sup>15] ( $\alpha_{51P}/2 = -37 \times \text{MHz}/(\text{V}/\text{mm})^2$  [KO14]). Zusammenfassend sind die gemessenen Anregungswahrscheinlichkeiten und spektralen Breiten ein starkes Indiz dafür, dass die beobachteten Resonanzen F-Zustände sind.

Die genaue Bestimmung der Hauptquantenzahlen  $n$  ergibt sich durch Betrachtung der Differenzen der Anregungsenergien. Aus den experimentellen Werten erhält man  $\Delta E_{n_1, n_2} = 6,40 \pm 0,01 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\Delta E_{n_2, n_3} = 55,25 \pm 0,04 \text{ cm}^{-1}$  und  $\Delta E_{n_1, n_3} = 61,64 \pm 0,04 \text{ cm}^{-1}$ . Mit diesen Energiedifferenzen und Gleichung (1.14) aus Abschnitt 1.6 können Quantendefekte für verschiedene Kombinationen von Hauptquantenzahlen berechnet werden. In Tabelle 3.2 sind die entsprechenden Quantendefekte  $\delta(n_1, n_2)$  für die Energiediffe-

Tabelle 3.4.: **Berechnete Quantendefekte.** Gezeigt sind die Quantendefekte  $\delta(n_1, n_2)$ , die sich aus der Energiedifferenz  $\Delta E_{n_1, n_2} = 6,40 \pm 0,01 \text{ cm}^{-1}$  und Gleichung (1.14) für verschiedene Kombination von  $n_1$  (50-54) und  $n_2$  (51-57) ergeben.

Quantendefekte $\delta(n_1, n_2)$					
$n_2/n_1$	50	51	52	53	54
57					-18,91
56				-19,91	-9,99
55			-20,91	-10,99	2,92
54		-21,91	-11,99	1,91	-
53	-22,91	-12,99	0,92	-	-
52	-13,99	<b>-0,08</b>	-	-	-
51	-1,08	-	-	-	-

renz  $\Delta E_{n_1, n_2}$  und verschiedenen Kombinationen von  $n_1$  und  $n_2$  aufgeführt. Aus der Tabelle ist zu erkennen, dass die Hauptquantenzahlen  $n_1=51$  und  $n_2=52$  favorisiert werden. Für diese Kombination ergibt sich ein Quantendefekt von  $\delta=-0,08(3)$ , der nah am erwarteten Wert von  $\delta=0,026$  liegt.

Die berechneten Quantendefekte für die Energiedifferenzen  $\Delta E_{n_1, n_3}$  und  $\Delta E_{n_2, n_3}$  sind in den Tabellen in Anhang B aufgeführt. Daraus ergeben sich die Hauptquantenzahlen  $n_1=51$  und  $n_3=64$  bzw.  $n_2=52$  und  $n_3=64$ . Die zugehörigen Quantendefekte  $\delta=0,02(1)$  bzw.  $\delta=0,03(1)$  stimmen gut mit dem theoretischen Wert überein. Die resultierenden Quantenzahlen und zugehörigen Quantendefekte sind in Tabelle 3.5 zusammengefasst. Die favorisierten Hauptquantenzahlen sind untereinander konsistent und erlauben eine eindeutige Identifikation der beobachteten Rydbergresonanzen.

Für beide Ionenfallen konnte festgestellt werden, dass die Rydberganregung nach einigen Monaten nicht mehr beobachtet werden konnte. Als Grund kommt eine mögliche Verunreinigung der Fallenoberflächen mit Calciumatomen in Betracht, die durch Wechselwirkung mit dem vakuumultravioletten Licht Photoelektronen emittieren. Der dadurch resultierende konstante Elektronenfluss und ausgelöste Sekundärelektronen könnten zu einer starken Verbreiterung der Rydbergzustände führen, so dass diese nicht mehr beobachtet werden können. Um diesen Effekt zu vermeiden, soll eine neue Falle konstruiert werden, in der die Laderegion von der Spektroskopieregion räumlich separiert ist. Die Rydberganregung findet dann in der Spektroskopieregion statt, die frei von Verunreinigungen ist.

Als nächster Schritt im Experiment soll eine Spektroskopie der P-Zustände durchgeführt werden. Aufgrund der deutlich kleineren Polarisierbarkeit  $\alpha_P/\alpha_F \simeq 0,1$  sollten diese eine deutlich kleinere Linienbreite aufweisen und dadurch kohärente Anregungen ermöglichen. Außerdem soll ein neues Lasersystem bei einer Wellenlänge von

Tabelle 3.5.: Zusammenfassung der Energiedifferenzen, Quantendefekte und Quantenzahlen.

Energiedifferenz	Quantendefekt $\delta$	Niveaus
$\Delta E_{n_1, n_2}$	-0,08(3)	<b>51F, 52F</b>
$\Delta E_{n_1, n_3}$	0,02(1)	<b>51F, 64F</b>
$\Delta E_{n_2, n_3}$	0,03(1)	<b>52F, 64F</b>

580 nm aufgebaut werden, um vakuumultraviolette Strahlung bei einer Wellenlänge von 123 nm durch Vierwellenmischen zu erzeugen. Damit können deutlich niedrigere Rydbergzustände mit Hauptquantenzahlen um  $n \simeq 20$  angeregt werden. Aufgrund der starken Abhängigkeit der Polarisierbarkeit von der Hauptquantenzahl,  $\alpha \sim n^7$ , sollten die Linienbreiten dieser Zustände deutlich geringer sein als die der bisher gefundenen Resonanzen und kohärente Rydberganregungen ermöglichen.

Im Hinblick auf kohärente Anregung der Rydbergzustände soll in Zukunft die Frequenzstabilität und Leistungsstabilität des vakuumultravioletten Lichts weiter verbessert werden. Zur Steigerung der Frequenzstabilität könnten Referenzresonatoren mit höherer Finesse verwendet werden, die bereits aufgebaut und charakterisiert wurden [Sch15]. Für eine höhere Leistungsstabilität könnten die fundamentalen Lasersysteme aktiv leistungsstabilisiert werden.



# A. Quecksilberniveaus

In Tabelle A.1 sind alle Quecksilberniveaus und die zugehörigen Oszillatorstärken aufgeführt, die zur Berechnung von  $\chi_a^{(3)}$  in Kapitel 1.2 berücksichtigt wurden. Die Lage der Energieniveaus ist [Moo71] entnommen. Die aufgeführten Oszillatorstärken wurden von Smith und Alford gemessen [SA86, AS87]. Weiterhin wurden zur Berechnung von  $\chi_a^{(3)}$  Mathematica Programme aus [Kol10] verwendet.

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 $\omega$ [ $10^{12} \text{ s}^{-1}$ ]	$f_{6^1S-n^2S+1P}$	$f_{7^1S-n^2S+1P}$	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	+

## B. Berechnete Quantendefekte

In den Tabellen B.1 und B.2 sind die berechneten Quantendefekte für die Energiedifferenzen  $\Delta E_{n_1, n_3} = 55,25 \pm 0,04 \text{ cm}^{-1}$  und  $\Delta E_{n_2, n_3} = 61,64 \pm 0,04 \text{ cm}^{-1}$  aufgeführt.

Tabelle B.1.: Quantendefekte  $\delta(n_2, n_3)$

$n_3/n_2$	51	52	53	54	55
68			-2,10	-0,13	1,91
67			-1,13	-0,91	3,03
66		-2,13	-0,09	2,03	4,23
65		-1,08	1,03	3,22	5,53
64	-2,09	<b>0,03</b>	2,23	4,53	
63	-0,97	1,23	3,53		
62	0,23	2,53			
61	1,53				
60	2,95				

Tabelle B.2.: Quantendefekte  $\delta(n_1, n_3)$

$n_3/n_1$	50	51	52	53	54
68			-1,77	0,10	2,02
67			-0,90	-1,02	
66		-1,90	-0,03	2,01	
65		-0,98	1,01		
64	-1,98	<b>0,02</b>	2,08		
63	-0,99	1,08			
62	0,08	2,22			
61	1,22				
60	2,46				







# Literaturverzeichnis

- [AS87] W. J. Alford and A. V. Smith. Measured third-order susceptibility and excited-state oscillator strengths for atomic mercury. *Phys. Rev. A*, 36:641–648, 1987.
- [Bac13] P. Bachor. Frequenzstabilisierung von Lasersystemen zur Rydberganregung von Calciumionen. *Diplomarbeit, Johannes-Gutenberg Universität*, 2013.
- [Bjo75] G. C. Bjorklund. Effects of focusing on third-order nonlinear processes in isotropic media. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 11(6):287–296, 1975.
- [Bla01] E. D. Black. An introduction to Pound–Drever–Hall laser frequency stabilization. *American Journal of Physics*, 69(1):79–87, 2001.
- [Blo08] I. Bloch. Quantum coherence and entanglement with ultracold atoms in optical lattices. *Nature*, 453(7198):1016–1022, 2008.
- [Boy13] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, Amsterdam, Boston, 2013.
- [BW08] R. Blatt and D. Wineland. Entangled states of trapped atomic ions. *Nature*, 453(7198):1008 – 1015, 2008.
- [Cot79] D. Cotter. Tunable narrow-band coherent VUV source for the Lyman-alpha region. *Optics Communications*, 31(3):397 – 400, 1979.
- [CZ95] J. I. Cirac and P. Zoller. Quantum Computations with Cold Trapped Ions. *Phys. Rev. Lett.*, 74:4091–4094, 1995.
- [CZ00] J. I. Cirac and P. Zoller. A scalable quantum computer with ions in an array of microtraps. *Nature*, 404(6778):579–581, 2000.
- [Dje91] M. T. Djerad. Atomic parameters for transitions involving Rydberg states of singly ionized alkaline earths. *J. Phys. II France*, 1(1):1–9, 1991.
- [EWH99] K. S. E. Eikema, J. Walz, and T. W. Hänsch. Continuous Wave Coherent Lyman- $\alpha$  Radiation. *Phys. Rev. Lett.*, 83:3828–3831, 1999.

- [EWH01] K. S. E. Eikema, J. Walz, and T. W. Hänsch. Continuous Coherent Lyman- $\alpha$  Excitation of Atomic Hydrogen. *Phys. Rev. Lett.*, 86:5679–5682, 2001.
- [FBS<sup>+</sup>15] T. Feldker, P. Bachor, M. Stappel, D. Kolbe, R. Gerritsma, J. Walz, and F. Schmidt-Kaler. Rydberg excitation of a single trapped ion. *Angewandten zur Veröffentlichung bei Physics Review Letters*, *arXiv:1506.05958*, 2015.
- [FPS<sup>+</sup>14] T. Feldker, L. Pelzer, M. Stappel, P. Bachor, R. Steinborn, D. Kolbe, J. Walz, and F. Schmidt-Kaler. Mode shaping in mixed ion crystals of  $^{40}\text{Ca}^{2+}$  and  $^{40}\text{Ca}^+$ . *Applied Physics B*, 114(1-2):11–16, 2014.
- [Gal05] T. F. Gallagher. *Rydberg Atoms (Cambridge Monographs on Atomic, Molecular and Chemical Physics)*. Cambridge University Press, 2005.
- [GNO13] I.L. Glukhov, E.A. Nikitina, and V.D. Ovsianikov. Lifetimes of Rydberg states in ions of the group II elements. *Optics and Spectroscopy*, 115(1):9–17, 2013.
- [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.
- [Hen14] M. Hennrich. Persönliche Mitteilung. *Universität Innsbruck, Institut für Experimentalphysik*, 2014.
- [HRB08] H. Häffner, C.F. Roos, and R. Blatt. Quantum computing with trapped ions. *Physics Reports*, 469(4):155 – 203, 2008.
- [IUZ<sup>+</sup>10] L. Isenhower, E. Urban, X. L. Zhang, A. T. Gill, T. Henage, T. A. Johnson, T. G. Walker, and M. Saffman. Demonstration of a Neutral Atom Controlled-NOT Quantum Gate. *Phys. Rev. Lett.*, 104:010503, 2010.
- [JGBW<sup>+</sup>14] G. Jacob, K. Groot-Berning, S. Wolf, S. Ulm, L. Couturier, U. G. Poschinger, F. Schmidt-Kaler, and K. Singer. Single particle microscopy with nanometer resolution. *arXiv:1405.6480*, 2014.
- [KO14] A. A. Kamenski and V. D. Ovsianikov. Formal approach to deriving analytically asymptotic formulas for static polarizabilities of atoms and ions in rydberg states. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 47(9):095002, 2014.
- [Kog14] A. Koglbauer. Erzeugung vakuumultravioletter Strahlung durch Vierwellenmischen in einer Hohlfasern. *Dissertation, Johannes-Gutenberg Universität*, 2014.

- [Kol10] D. Kolbe. Effizientes Vierwellenmischen durch Ausnutzen von Resonanzen in Quecksilber. *Dissertation, Johannes-Gutenberg Universität*, 2010.
- [KSW12] D. Kolbe, M. Scheid, and J. Walz. Triple Resonant Four-Wave Mixing Boosts the Yield of Continuous Coherent Vacuum Ultraviolet Generation. *Phys. Rev. Lett.*, 109:063901, 2012.
- [KSW13] D. Kolbe, M. Scheid, and J. Walz. Influence of the  $6^1S_0$ – $6^3P_1$  resonance on continuous Lyman- $\alpha$  generation in mercury. *Applied Physics B*, 113(4):559–566, 2013.
- [KUJ<sup>+</sup>12] H. Kaufmann, S. Ulm, G. Jacob, U. Poschinger, H. Landa, A. Retzker, M. B. Plenio, and F. Schmidt-Kaler. Precise Experimental Investigation of Eigenmodes in a Planar Ion Crystal. *Phys. Rev. Lett.*, 109:263003, 2012.
- [KYRN14] A. Kramida, Yu. Ralchenko, J. Reader, and NIST ASD Team. NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.2), [Online]. Available: <http://physics.nist.gov/asd> [2015, September 8]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD., 2014.
- [LFC<sup>+</sup>01] M. D. Lukin, M. Fleischhauer, R. Cote, L. M. Duan, D. Jaksch, J. I. Cirac, and P. Zoller. Dipole Blockade and Quantum Information Processing in Mesoscopic Atomic Ensembles. *Phys. Rev. Lett.*, 87:037901, 2001.
- [LGNL13] W. Li, A. W. Glaetzle, R. Nath, and I. Lesanovsky. Parallel execution of quantum gates in a long linear ion chain via Rydberg mode shaping. *Phys. Rev. A*, 87:052304, 2013.
- [LL12] W. Li and I. Lesanovsky. Electronically Excited Cold Ion Crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 108:023003, 2012.
- [LL14] W. Li and I. Lesanovsky. Entangling quantum gate in trapped ions via Rydberg blockade. *Applied Physics B*, 114(1-2):37–44, 2014.
- [LLA13] J. Lim, H.-G. Lee, and J. Ahn. Review of cold Rydberg atoms and their applications. *Journal of the Korean Physical Society*, 63(4):867–876, 2013.
- [Mac13] T. Macha. Frequenzstabilisierung eines Titan-Saphir-Lasers und Verbesserung von Qubits mit  $Ca^+$ -Ionen. *Diplomarbeit, Johannes-Gutenberg Universität*, 2013.
- [MF98] S. A. Meyer and G. W. Faris. High-power Lyman- $\alpha$  source generated with an ArF excimer laser. *Opt. Lett.*, 23(3):204–206, 1998.

- [MLLZ08] M. Müller, L. Liang, I. Lesanovsky, and P. Zoller. Trapped Rydberg ions: from spin chains to fast quantum gates. *New Journal of Physics*, 10(9):093009, 2008.
- [MMK78] R. Mahon, T. J. McIlrath, and D. W. Koopman. Nonlinear generation of Lyman-alpha radiation. *Applied Physics Letters*, 33(4):305–307, 1978.
- [MMK<sup>+</sup>95] C. Monroe, D. M. Meekhof, B. E. King, W. M. Itano, and D. J. Wineland. Demonstration of a Fundamental Quantum Logic Gate. *Phys. Rev. Lett.*, 75:4714–4717, 1995.
- [MMK<sup>+</sup>96] D. M. Meekhof, C. Monroe, B. E. King, W. M. Itano, and D. J. Wineland. Generation of Nonclassical Motional States of a Trapped Atom. *Phys. Rev. Lett.*, 76:1796–1799, 1996.
- [Moo71] C. E. Moore. Atomic energy levels as derived from the analyses of optical spectra volume III. *NSRDS national standard reference data system*, 1971.
- [MSM<sup>+</sup>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. *J. Opt. Soc. Am. B*, 7(7):1254–1259, 1990.
- [NDG<sup>+</sup>15] R. Nath, M. Dalmonte, A. W. Glaetzle, P. Zoller, F. Schmidt-Kaler, and R. Gerritsma. Hexagonal plaquette spin-spin interactions and quantum magnetism in a two-dimensional ion crystal. *New Journal of Physics*, 17(6):065018, 2015.
- [NKW59] T. Nakayama, M. Y. Kitamura, and K. Watanabe. Ionization Potential and Absorption Coefficients of Nitrogen Dioxide. *The Journal of Chemical Physics*, 30(5):1180–1186, 1959.
- [SA86] A. V. Smith and W. J. Alford. Vacuum ultraviolet oscillator strengths of Hg measured by sum-frequency mixing. *Phys. Rev. A*, 33:3172–3180, 1986.
- [Sch15] M. Schröder. Aufbau eines Referenzresonators zur Stabilisierung eines Lasersystems. *Bachelorarbeit, Johannes-Gutenberg Universität*, 2015.
- [Sea83] M. J. Seaton. Quantum defect theory. *Reports on Progress in Physics*, 46(2):167, 1983.
- [SKB<sup>+</sup>13] R. Steinborn, A. Koglbauer, P. Bachor, T. Diehl, D. Kolbe, M. Stappel, and J. Walz. A continuous wave 10 W cryogenic fiber amplifier at 1015 nm and frequency quadrupling to 254 nm. *Opt. Express*, 21(19):22693–22698, 2013.

- [SKFK<sup>+</sup>11] F. Schmidt-Kaler, T. Feldker, D. Kolbe, J. Walz, M. Müller, P. Zoller, W. Li, and I. Lesanovsky. Rydberg excitation of trapped cold ions: a detailed case study. *New Journal of Physics*, 13(7):075014, 2011.
- [SKHR<sup>+</sup>03] F. Schmidt-Kaler, H. Häffner, M. Riebe, S. Gulde, G. P. T. Lancaster, T. Deuschle, C. Becher, C. Roos, J. Eschner, and R. Blatt. Realization of the Cirac-Zoller controlled-NOT quantum gate. *Nature*, 422(6930):408–411, 2003.
- [SKM<sup>+</sup>09] M. Scheid, D. Kolbe, F. Markert, T. W. Hänsch, and J. Walz. Continuous-wave Lyman- $\alpha$  generation with solid-state lasers. *Opt. Express*, 17(14):11274–11280, 2009.
- [SKW13] M. Stappel, D. Kolbe, and J. Walz. Frequenzvervielfachende Kristallanordnung mit hohem Wirkungsgrad. *Patentanmeldung beim Deutschen Patentamt, 10 2013 107 196.1*, 2013.
- [SKW14] M. Stappel, D. Kolbe, and J. Walz. Continuous-wave, double-pass second-harmonic generation with 60% efficiency in a single MgO:PPLT crystal. *Opt. Lett.*, 39(10):2951–2954, 2014.
- [SMW<sup>+</sup>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. *Opt. Lett.*, 32(8):955–957, 2007.
- [SSKW13] M. Stappel, R. Steinborn, D. Kolbe, and J. Walz. A high power, continuous-wave, single-frequency fiber amplifier at 1091 nm and frequency doubling to 545.5 nm. *Laser Physics*, 23(7):075103, 2013.
- [SWM10] M. Saffman, T. G. Walker, and K. Mølmer. Quantum information with Rydberg atoms. *Rev. Mod. Phys.*, 82:2313–2363, 2010.
- [THS<sup>+</sup>09] P. Thoumany, T. Hänsch, G. Stania, L. Urbonas, and T. Becker. Optical spectroscopy of rubidium Rydberg atoms with a 297 nm frequency-doubled dye laser. *Opt. Lett.*, 34(11):1621–1623, 2009.
- [Wal80] R. Wallenstein. Generation of narrowband tunable VUV radiation at the Lyman- $\alpha$  wavelength. *Optics Communications*, 33(1):119 – 122, 1980.
- [WGE<sup>+</sup>10] T. Wilk, A. Gaëtan, C. Evellin, J. Wolters, Y. Miroshnychenko, P. Grangier, and A. Browaeys. Entanglement of Two Individual Neutral Atoms Using Rydberg Blockade. *Phys. Rev. Lett.*, 104:010502, 2010.
- [XXZ<sup>+</sup>98] C. B. Xu, X. P. Xie, R. C. Zhao, W. Sun, P. Xue, Z. P. Zhong, W. Huang, and X. Y. Xu. Study on ionic Rydberg states of calcium. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 31(24):5355, 1998.





# Danksagung

Hiermit möchte ich mich bei allen Menschen bedanken, die mich während dieser Arbeit und auf dem Weg dorthin unterstützt haben.



# Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit in allen Punkten selbstständig angefertigt und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

Mainz, den 07. Oktober 2015

Matthias Stappel