

Erzeugung vakuumultravioletter Strahlung durch Vierwellenmischen in einer Hohlfaser

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

von
Andreas Koglbauer
geboren in Mainz

Mainz, 26. Februar 2014

1. Gutachter:
2. Gutachter:

Tag der mündlichen Prüfung: 21. Juli 2014

ZUSAMMENFASSUNG

In dieser Arbeit wird die Entwicklung und experimentelle Umsetzung einer kontinuierlichen, kohärenten Lichtquelle im vakuumultravioletten Wellenlängenbereich um 122 nm präsentiert. Diese basiert auf der nichtlinearen optischen Summenfrequenzmischung dreier Fundamentallaserstrahlen in einer mit Quecksilberdampf gefüllten Hohlaser. Die Wellenlängen der fundamentalen Laser sind dabei an der Niveaustruktur des Quecksilbers orientiert, um eine mehrfach resonante Überhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität zu erreichen. Der transversale Einschluss der Lichtfelder in der Faser verlängert die Wechselwirkungszone mit dem nichtlinearen Medium um mehrere Größenordnungen gegenüber dem Regime fokussierter Strahlen und erlaubt so signifikante Steigerungen der Mischeffizienz.

Im Zuge dieser Arbeit wurde neben einer umfassenden mathematischen Analyse des nichtlinearen Mischprozesses unter Einfluss der Fasercharakteristika eine Apparatur zur Erzeugung und Detektion vakuumultravioletter Strahlung entwickelt. Die Generierung ausreichend hoher Dampfdichten innerhalb des 50 μm durchmessenden Faserkerns konnten spektroskopisch nachgewiesen werden.

Das erste erfolgreiche Summenfrequenzmischen zu 121,26 nm in der Faser wurde demonstriert. Die erzielten Mischeffizienzen sind bereits mit denen vergleichbar, welche unter Verwendung fokussierter Strahlen erreicht werden, obwohl eine Phasenanpassung in der Faser bisher nicht möglich war. Die Ergebnisse dieser Arbeit markieren damit einen wichtigen Schritt hin zu Leistungssteigerungen kohärenter, kontinuierlicher vakuumultravioletter Lichtquellen.

Eine solche Quelle wird für zukünftige Laserkühlung von magnetisch gefangenem Antiwasserstoff auf dem Lyman- α Übergang, sowie die Rydberganregung von Calciumionen in einer Paulfalle zur Implementierung quantenlogischer Operationen benötigt.

Ferner hat eine Untersuchung der, für eine effiziente Konversion essentiellen, $6^1S_0 - 7^1S_0$ Zwei-Photonen Resonanz in Quecksilber Hinweise auf eine bis dato experimentell nicht beobachtete, auf einer Mehr-Photonen Anregung beruhende Licht-induzierte Drift ergeben.

SUMMARY

In this thesis, the development and experimental realization of a continuous, coherent light source in the vacuum ultraviolet wavelength domain around 122 nm is presented. It is based on the optical nonlinear sum-frequency generation of three fundamental laser beams within a mercury-vapor filled hollow core fiber. The choice of the fundamental wavelengths is based upon the level structure of mercury, to achieve a multi-resonant enhancement of the nonlinear susceptibility. The transverse confinement of the lightfields elongates the interaction region with the nonlinear medium by several orders of magnitude, giving rise to a significant increase of the mixing efficiency.

Apart from an extensive mathematical analysis of the nonlinear mixing process under the influence of the fiber characteristics, an apparatus for the generation and detection of vacuum ultraviolet radiation has been developed in the course of this thesis. Sufficiently high vapor densities have been established and spectroscopically investigated within the fibercore of 50 μm bore diameter.

The first successful sum-frequency generation to 121.26 nm inside the fiber was demonstrated.

The attained mixing efficiencies are already comparable to those achievable with focussed beams, although perfect phasematching of the process was so far not possible. Hence, the findings of this thesis mark an important step towards a power enhancement of coherent, continuous vacuum ultraviolet light sources.

Such a source will be essential for the future laser cooling of magnetically trapped antihydrogen on the Lyman- α transition and Rydberg excitation of calcium ions in a Paul trap for quantum logical operations.

Furthermore, the investigation of the $6^1S_0 - 7^1S_0$ two-photon transition in mercury, crucial for an efficient conversion, led to an evidence of a to date experimentally unobserved light induced drift, based on multi-photon excitation.

INHALTSVERZEICHNIS

Inhaltsverzeichnis	ix
1 Einleitung	1
2 Theoretische Grundlagen	9
2.1 Quecksilber als nichtlineares Medium	9
2.1.1 Die lineare Suszeptibilität $\chi^{(1)}$	10
2.1.2 Die nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$	13
2.2 Lichtwellenleitung in Hohlfasern	21
2.2.1 Zylindrische elektromagnetische Wellen	21
2.2.2 Hohlfasernmoden	22
2.2.3 Propagationskonstante von Hohlfasernmoden	26
2.3 Nichtlineare Hohlfaseroptik	27
2.3.1 Nichtlineare Wellengleichung	28
2.3.2 Fundamentalgleichung für Hohlfasern	29
2.3.3 Effektive Länge und Kernradius	34
2.3.4 Phasenanpassung und Mischeffizienz	36
2.3.5 Erweiterungen	39
2.4 Licht-induzierte Drift	43
2.4.1 LID in einer offenen Zelle	46
2.4.2 LID mit zusätzlichen Verlusten	52
3 Experimentelle Realisierung	55
3.1 Lasersystem	55
3.1.1 UV Lasersystem bei 254 nm	56
3.1.2 Blaues Lasersystem bei 408 nm	62
3.1.3 Grünes Lasersystem bei 540 nm	64
3.2 Einkopplung in die Hohlfaseroptik	67
3.2.1 Strahlqualität und Überlagerung	68
3.2.2 Einkoppeleffizienz und Propagationsverluste	71
3.2.3 Metallbedampfte Faserfacetten	72
3.3 Vakuumsystem	76
3.3.1 Spektroskopiekammer	77

3.3.2	Vierwellenmischkammer	82
3.3.3	Detektionskammer	84
4	Ergebnisse	89
4.1	Zwei-Photonen Resonanz	89
4.1.1	Fern-resonante UV Verstimmung	90
4.1.2	Nah-resonante UV Verstimmung	92
4.2	VUV Erzeugung in einer Hohlfaser	101
5	Zusammenfassung und Ausblick	107
A	Konstanten und Materialdaten	113
A.1	Konstanten	113
A.2	Quecksilberdaten	113
A.2.1	Dampfdruckkurve von Quecksilber	114
A.2.2	Übergangsfrequenzen und Oszillatorstärken	114
A.2.3	Isotopieverschiebung und Hyperfeinstrukturaufspaltung	115
A.3	Eigenschaften optischer Materialien	116
A.3.1	Komplexer Brechungsindex von Quarzglas (SiO_2)	116
A.3.2	Brechungsindex von Magnesiumfluorid (MgF_2)	117
B	Linienbreiten	119
B.1	Nomenklatur	119
B.2	Druckverbreiterung in Quecksilber	121
C	Herleitungen	123
C.1	Abhängigkeit der Mischeffizienz vom Faserkernradius	123
C.2	Diffusive Drift mehrerer Isotope	124
C.3	Umrechnung von PMT Zählrate in VUV Leistung	126
D	Mathematica Quellcode	129
E	Technische Zeichnungen	141
	Literaturverzeichnis	149

EINLEITUNG

Als vakuumultraviolette (VUV) Strahlung wird der Wellenlängenbereich des elektromagnetischen Spektrums zwischen 10 nm und 200 nm bezeichnet [1]. Nenngebend ist die starke Absorption dieser Strahlung an Luft. Ende des 19. Jahrhunderts beschäftigte sich V. Schumann intensiv mit der Erforschung von Licht immer kürzerer Wellenlängen [2] und ermöglichte es so T. Lyman die nach ihm benannten Spektrallinien des Wasserstoffs zu untersuchen [3,4].

Heutzutage findet VUV Strahlung in den unterschiedlichsten Forschungsgebieten Anwendung: VUV Spektroskopie zur Analyse der elektronischen Struktur von Atomen und Molekülen [5], Konformationsanalyse von Proteinen durch Circular-dichroismus Spektroskopie [6], winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie zur Vermessung der Bandstruktur in Festkörpern [7] oder Nanolithographie [8] sind nur einige Beispiele.

Unsere Arbeitsgruppe befasst sich intensiv mit der Erzeugung von kohärenter, kontinuierlicher VUV Strahlung im Wellenlängenbereich um 122 nm. Diese hat zwei sehr spezielle und einzigartige Anwendungen: Die Laserkühlung von magnetisch gefangenem Antiwasserstoff, welche Voraussetzung für die präzise Spektroskopie des dipolverbotenen $1S - 2S$ Übergangs ist, sowie die Rydberganregung von in einer Paulfalle gespeicherten Calciumionen zur Implementierung quantenlogischer Operationen. Im Folgenden wird erörtert inwiefern diese Vorhaben von einer kontinuierlichen Quelle mit schmaler spektraler Bandbreite profitieren.

Laserkühlung von Antiwasserstoff

Das Standardmodell der Teilchenphysik ist eine der erfolgreichsten Theorien unserer Zeit und wurde jüngst durch die Entdeckung [9,10] des lange vorhergesagten Higgs-Bosons [11,12] erneut bestätigt. Dennoch ist es in dem Sinne unvollständig, dass es einige offene Fragen der Physik nicht beantworten kann. Hierzu zählt unter anderem die beobachtete Materie/Antimaterie Asymmetrie im Universum [13]. Als Lorentz-invariante, lokale Quantenfeldtheorie, muss das Stan-

dardmodell CPT -symmetrisch sein, das heißt invariant unter gleichzeitiger Anwendung der diskreten Transformationen Ladungskonjugation (**C**harge), Raumspiegelung (**P**arity) und Zeitumkehr (**T**ime) [14]. Als Konsequenz haben Materie und Antimaterie gleiche Massen, Lebensdauern und entgegengesetzt gleiche Ladungen und gyromagnetische Momente. Eine Abweichung hiervon und damit eine CPT -Verletzung, ist eine mögliche Erklärung für die Materie/Antimaterie-Asymmetrie. Deshalb existieren eine Vielzahl von Tests im leptonischen, mesonischen und baryonischen Sektor, von denen der Massenvergleich am neutralen Kaonsystem K^0/\bar{K}^0 den bis dato präzisesten darstellt [15,16].

Als einfachstes Antiatom verspricht Antiwasserstoff (\bar{H}), der gebundene Zustand von Antiproton (\bar{p}) und Positron (e^+), als gemischt lepton-baryonisches System, ebenfalls stringente CPT -Tests. Sowohl durch einen Vergleich der mit hoher Präzision [17] bekannten $1S-2S$ Übergangsfrequenz in normalem Wasserstoff, als auch der Hyperfeinstrukturaufspaltung des Grundzustandes [14]. Darüber hinaus bietet Antiwasserstoff als Neutralatom gegenüber geladenen Antiteilchen deutliche Vorteile bei der Untersuchung der gravitativen Wechselwirkung von Materie mit Antimaterie [18,19].

Die kontrollierte Herstellung und Speicherung von Antiwasserstoff ist eine große experimentelle Herausforderung und seit der ersten Erzeugung von Antiwasserstoffatomen Ende 1995 am CERN [20] hat es eine immense Entwicklung gegeben: Von wenigen, nahezu lichtschnellen \bar{H} -Atomen, ungeeignet für präzise spektroskopische Studien, hin zu kaltem, bis zu 1000 Sekunden magnetisch gespeichertem Antiwasserstoff [21]. Mit ALPHA und ATRAP existieren heute zwei Kollaborationen am CERN, welche Präzisionsspektroskopie an gefangenem \bar{H} verfolgen. In den vergangenen Jahren ist es zunächst ALPHA [22] und später auch ATRAP [23] gelungen, durch Dreikörperrekombination, von in einer verschachtelten Penning-Falle gefangenen Antiprotonen und Positronen, Antiwasserstoff zu erzeugen. Der neutrale \bar{H} wird dabei von einer überlagerten Ioffe-Pritchard Falle magnetisch gespeichert. Erste Mikrowellenspektroskopie der Hyperfeinstrukturaufspaltung des Grundzustandes konnte von ALPHA demonstriert werden [24].

Besonders für die Zwei-Photonen Spektroskopie des verbotenen $1S-2S$ Übergangs stellt die Zeemanaufspaltung der \bar{H} -Atome im Fallenfeld eine Limitation der messbaren Linienbreite dar, welche durch Kühlen der Antiatome reduziert werden kann [25] (vergleiche hierzu Abbildung 1.1). Die Magnetfeldabhängigkeit des $1S_{1/2}(F=1, m_F=-1) \rightarrow 2S_{1/2}(F'=1, m_{F'}=-1)$ Übergangs beträgt dabei 186 kHz/T [26]. Zur Laserkühlung eignet sich der starke, geschlossene $1S_{1/2} - 2P_{3/2}$ Übergang bei $121,56 \text{ nm}$ (Lyman- α). Mit einer gepulsten Lyman- α Quelle konnte auf einer Zeitskala von Minuten bereits Dopplerkühlen von magnetisch gefangenem Wasserstoff bis zu einer Temperatur von 8 mK (Dopplerlimit $T_{\text{Doppler}} = 2,4 \text{ mK}$) gezeigt werden [27]. Kontinuierliche Laserstrahlung bringt hier entscheidende Vorteile: Die Lebensdauer des $2P$ Zustandes liegt mit $1,6 \text{ ns}$ in der Größenordnung typischer Pulslängen, so dass während eines Pulses nur wenige Anregungszyklen stattfinden können. Somit ist die erreichbare Kühlleistung

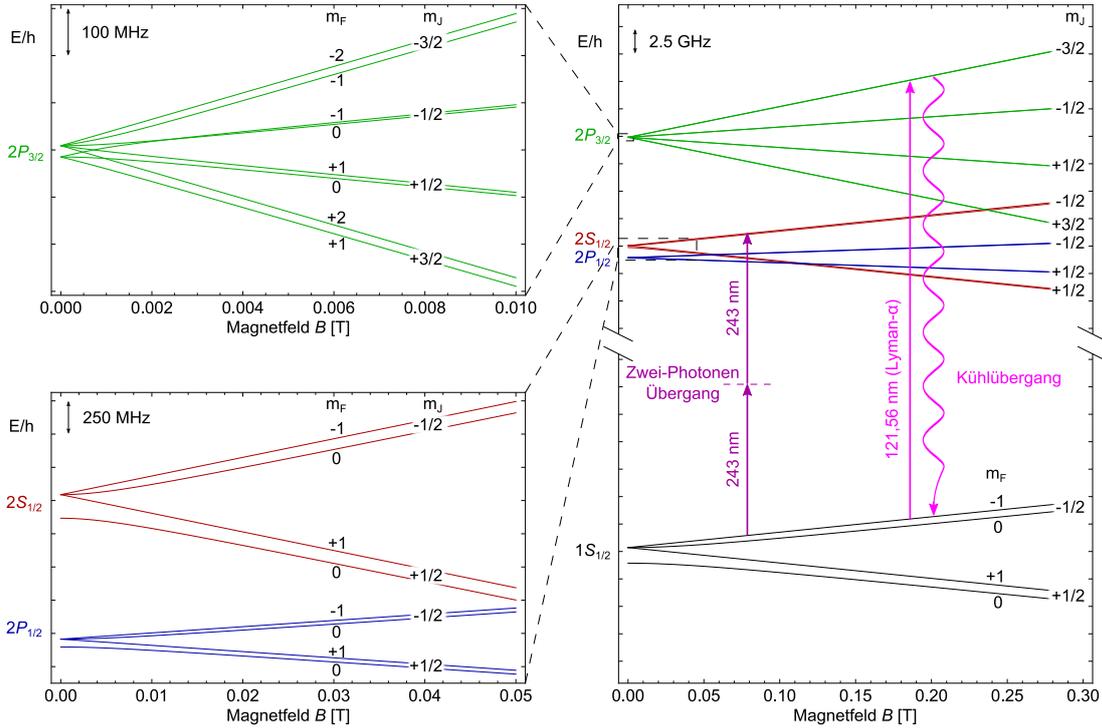


Abbildung 1.1: Antiwasserstoff Spektrum im Magnetfeld.

Zeeman Aufspaltung der relevanten Energieniveaus im Magnetfeld. Präzisionsspektroskopie soll auf dem $1S_{1/2} - 2S_{1/2}$ Übergang stattfinden. Zur Dopplerkühlung dient der geschlossene Übergang $1S_{1/2} - 2P_{3/2}$ bei 121,56 nm.

durch die Repetitionsrate der Laserquelle, und nicht durch deren Intensität limitiert. Auch sind die erreichbaren Linienbreiten kontinuierlicher Laser intrinsisch schmäler als bei gepulsten Quellen, was eine höhere Selektivität gegenüber Anregung in nicht gefangene magnetische Unterzustände erlaubt. Ferner eröffnet eine kontinuierliche Lyman- α Quelle die Möglichkeit zur präzisen Spektroskopie nur weniger Antiatome durch das *Shelving* Verfahren [25]. Bei diesem wird abwechselnd zu dem Spektroskopielaser bei 243 nm die Fluoreszenz auf dem Lyman- α Übergang beobachtet. Findet eine Zwei-Photonen Anregung auf dem $1S_{1/2} - 2S_{1/2}$ Übergang statt, ist wegen der langen Lebensdauer (122 ms) des metastabilen $2S_{1/2}$ Zustandes die Lyman- α Fluoreszenz im folgenden Zyklus unterdrückt.

Die zur Dopplerkühlung mit kontinuierlichen Strahlen erforderlichen VUV Leistungen liegen im Bereich weniger nW [28,29]. Die Leistungsanforderungen für das Shelving Verfahren sind wegen der geringen Detektionseffizienz des vakuumultravioletten Fluoreszenzlichtes vermutlich höher [28].

Quanteninformation mit Rydbergionen

Quantensimulation und Quanteninformationsverarbeitung hat sich in den vergangenen zwei Jahrzehnten zu einem weitläufigen und prosperierenden Forschungsfeld entwickelt. Es existiert eine Vielzahl unterschiedlicher Konzepte, jedes mit seinen systemspezifischen Vor- und Nachteilen.

Ein sehr erfolgreicher Ansatz beruht auf der langreichweitigen Dipol-Dipol Wechselwirkung von Rydbergatomen [30], deren Eigenschaften maßgeblich durch das hochangeregte Valenzelektron bestimmt sind [31]. Der zugrunde liegende Mechanismus zur Implementierung schneller quantenlogischer Operationen ist die sogenannte Rydberg- oder Dipolblockade. Dabei bedingt die leichte Polarisierbarkeit der Elektronenhülle, dass die Anwesenheit eines Rydberg-angeregten Atoms eine zweite Rydberganregung innerhalb eines Blockaderadius verhindert [32].

Die Kombination von Rydberganregung mit einem weiteren etablierten Quantensystem, nämlich in einer Paulifalle gefangene Ionen, wird in [33] diskutiert. Lasergekühlte Ionenkristalle bieten ein hohes Maß an Kontrolle und Adressierbarkeit der einzelnen Quantenbits (Qubits) bei langen Kohärenzzeiten [34]. Die Qubits, repräsentiert durch die internen elektronischen Zustände oder Spinfreiheitsgrade der einzelnen Ionen, lassen sich dabei über kollektive Vibrationsmoden verschränken [35]. Das Spektrum dieser Bewegungsmoden gewinnt mit zunehmender Systemgröße deutlich an Komplexität, was die Skalierbarkeit limitiert. Diese Problematik lässt sich mit Rydberg-basierten Quantengattern umgehen, deren Dynamik auf der Nanosekunden Skala zudem deutlich schneller als die der externen Bewegungsmoden ist [33]. Gleichmaßen interessant ist der Einfluss von Rydberganregungen auf den Vielteilchenzustand, welche strukturelle Phasenübergänge im Ionenkristall hervorrufen können [36].

Eine ausführliche Fallanalyse zur Realisierung eines derartigen Systems mit Calciumionen wird in [37] dargelegt und ist in Kollaboration mit unserer Arbeitsgruppe aufgebaut worden. Das Anregungsschema ist in Abbildung 1.2 dargestellt. Ausgehend vom $4^2S_{1/2}$ Grundzustand werden die Ionen auf dem Übergang bei 397 nm Doppler-gekühlt, wobei Licht von Lasern bei 866 nm und 854 nm als Rückpumper dienen. Präparation in das $3^2D_{5/2}$ Niveau, welches als Ausgangszustand für die Rydberganregung dient, kann kohärent auf dem $4^2S_{1/2} \rightarrow 3^2D_{5/2}$ Quadrupolübergang bei 729 nm oder inkohärent durch optisches Pumpen bei 393 nm erfolgen. Die Anregungswellenlänge in Rydbergniveaus liegt mit 131 nm ($n = 10$) bis 121,8 nm (Ionisationsgrenze) im vakuumultravioletten Bereich. Der Nachweis einer Rydberganregung erfolgt durch eine erhöhte Fluoreszenz auf dem Kühlübergang: Befindet sich das Ion im langlebigen metastabilen $3^2D_{5/2}$ Zustand ($\tau = 1,2$ s), findet keine Streuung auf dem $4^2S_{1/2} - 4^2P_{1/2}$ Übergang statt. Eventuelle Rydberganregungen zerfallen aber innerhalb von 10 – 100 μ s vornehmlich in den Grundzustand, und Fluoreszenz kann nachgewiesen werden [37].

Alternativ ist auch eine Mehr-Photonen Anregung in den Rydbergzustand denkbar [38]. Ein derartiger Ansatz mit Strontiumionen wird in der Gruppe von M.

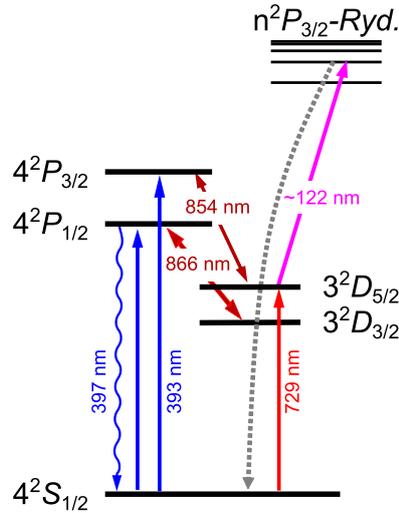


Abbildung 1.2: Reduziertes Energieniveauschema von Calciumionen zur Rydberganregung. Dopplerkühlen der $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen erfolgt bei 397 nm mit zwei Rückpumpplasern bei 866 nm und 854 nm. Die Rydberganregung mit dem VUV Licht findet vom $3^2D_{5/2}$ Zustand aus statt. Dieser wird durch optisches Pumpen bei 393 nm oder kohärente Anregung mit 729 nm populiert. Abstände sind nicht maßstabsgetreu.

Henrich verfolgt [39]. Dies benötigt allerdings deutlich höhere Lichtleistungen, was die Wahrscheinlichkeit ungewollter Mehrfachionisation erhöht. Zudem sind nicht zu vernachlässigende dynamische Stark-Verschiebungen der Niveaus zu erwarten. Wegen der geringen natürlichen Linienbreite der Rydbergniveaus, welche in der Größenordnung von wenigen 10 kHz liegt, ist die schmale Frequenzbreite einer kontinuierlichen VUV Quelle zweckmäßig. Mit Leistungen von einigen μW sind Rabi-Frequenzen im MHz-Bereich zu realisieren [37].

Erzeugung vakuumultravioletter Strahlung

Wegen des Fehlens geeigneter direkter Lasermedien im Bereich kurzer Wellenlängen [40] beruhen ein Großteil der kohärenten Lichtquellen im UV bis XUV Bereich auf Prozessen der nichtlinearen Optik, wie die Erzeugung höherer Harmonischer [41–43], Summen- oder Differenzfrequenzmischung [44]. Im vakuumultravioletten Bereich des elektromagnetischen Spektrums hat sich, wegen der unzureichenden optischen Transparenz und Phasenanpassungsmöglichkeiten in Kristallen, die nichtlineare Frequenzkonversion dritter Ordnung in Edelgasen und Metalldämpfen etabliert [45,46]. Bei der Verwendung kontinuierlicher Fundamentallaser ist die zur Verfügung stehende Intensität in den Fundamentalstrahlen deutlich geringer als bei gepulsten Quellen. Folglich ist es bei der Erzeugung kontinuierlicher VUV Strahlung, wegen der geringen Konversionseffizienz nichtlinearer Prozesse höherer Ordnung, essentiell die resonante Überhöhung der nicht-

linearen Suszeptibilität durch atomare Resonanzen auszunutzen [47]. Für den für uns interessanten Wellenlängenbereich um 122 nm bietet sich hierfür Quecksilber an [48–50].

Folglich nutzte auch die erste kontinuierliche Lyman- α Quelle nicht entartetes Vierwellen-Summenfrequenzmischen in Quecksilber unter Ausnutzung einer Zwei-Photonen Resonanz [28,51]. In der zweiten Generation dieses Experiments erlaubte der Einsatz von Festkörper-basierten Fundamentallasern die Untersuchung des Einflusses der 6^3P_1 Ein-Photon Resonanz. Dadurch konnte die bis dato effizienteste kontinuierliche Lyman- α Quelle realisiert werden [52,53]. Ferner wurde mit demselben Aufbau, bei einer geeigneten Wahl der VUV Wellenlänge, in einem dreifach resonanten Mischschema eine weitere Effizienzsteigerung um drei Größenordnungen demonstriert [54]. Damit wurden bereits erste Studien zu strukturellen Konfigurationsänderungen und Vibrationsmoden durch Photoionisation erzeugter, gemischter Ionenkristalle ($^{40}\text{Ca}^+ / ^{40}\text{Ca}^{2+}$) durchgeführt [55].

Zum Erreichen der, für den nichtlinearen Prozess notwendigen, hohen Intensitäten wird typischerweise mit stark fokussierten Strahlen gearbeitet. Die damit einhergehende Divergenz der Strahlen beschränkt die Länge der Wechselwirkungszone von Licht und Atomen etwa auf die Größe des konfokalen Parameters (~ 1 mm). Diese kann durch die Verwendung einer lichtleitenden Faser deutlich vergrößert werden. Da die Faser sowohl das nichtlineare Medium enthalten, als auch Licht aller beteiligten Wellenlängen führen muss, kommen für Anwendungen im VUV Bereich nur Hohlfasern in Betracht. Im Gegensatz zu konventionellen Glasfasern, deren Lichtleitung auf innerer Totalreflexion an der Kern-Mantel-Grenze beruht, hat bei kapillaren Hohlfasern der Kern einen geringeren Brechungsindex als der umgebende Mantel. Hier wird das Licht durch die hohe Fresnel-Reflektivität bei streifendem Einfall geführt.

Eine Effizienzsteigerung durch die Verwendung einer Hohlfaser wurde bei unterschiedlichen nichtlinearen Prozessen wie kohärenter Anti-Stokes Raman Streuung [56], stimulierter Raman Streuung [57] oder Phasenkonjugation [58] demonstriert. Auch für die Erzeugung höherer Harmonischer sind Hohlfasern interessant, da durch Selbstfokussierung und Plasmadefokussierung entstehende Phasenanpassungsproblematiken überwunden werden [59]. Zur Pulskompression durch nichtlineare Selbstphasenmodulation bei hohen Intensitäten finden Edelgas gefüllte Hohlfasern Anwendung in der Kurzpulslaserphysik [60].

Im Hinblick auf die Erzeugung von VUV Licht durch Frequenzmischung verspricht die Verwendung einer Hohlfaser, bei gleicher Fokusgröße, eine Steigerung der Effizienz gegenüber dem Fall fokussierter Gaußstrahlen um einen Faktor $(L/b)^2$. Dabei bezeichnet L die Länge der Faser und b den konfokalen Parameter [61]. Dies wurde das erste Mal experimentell bei Zwei-Photonen resonanter Differenzfrequenzmischung in Xenon umgesetzt, wobei die Überhöhung auf Grund von Verlusten und Absorption auf 2,5 beschränkt war [62]. Mittlerweile konnte in einer Reihe von Hohlfaser-basierten Systemen ein Leistungszuwachs von mehreren Größenordnungen verzeichnet werden. Hierzu zählen kaskadiertes

Vierwellenmischen [63], Phasenanpassung mit unterschiedlichen Fasermode[n] [64], Frequenzverdreifachung, Summen- und Differenzfrequenzmischen [65,66]. Diese Experimente verwenden zumeist gepulste Lichtquellen mit Luft oder Edelgas gefüllten kapillaren oder photonischen Hohlfasern. Eine Ausnahme bildet hier das in [67] präsentierte Experiment, in welchem Vierwellenmischen bei niedrigen kontinuierlichen Leistungen in einer Rubidium gefüllten photonischen Kristallfaser demonstriert wurde.

Ziel dieser Arbeit ist die Kombination der resonanzunterstützten Summenfrequenzmischung in Quecksilber mit dem erfolgreichen Konzept der nichtlinearen Hohlfaseroptik, für eine Steigerung der VUV Mischeffizienzen im Bereich um 122 nm.

Gliederung der Arbeit

Kapitel 2 bildet die theoretische Basis für resonantes Vierwellenmischen in einer Hohlfaser. Neben der Berechnung der linearen und nichtlinearen Suszeptibilität von Quecksilber, werden die Grundlagen der Propagation von Licht in dielektrischen Hohlfasern erläutert. Die Herleitung und Lösung der gekoppelten Amplitudengleichungen wird ausführlich diskutiert und dabei insbesondere auf zwangsläufige und mögliche Einflüsse der Faser eingegangen. Der experimentelle Aufbau wird in Kapitel 3 dargestellt. Neben den Lasersystemen der drei Fundamentalstrahlen umfasst dieses die Beschreibung der Vakuumapparatur zur Erzeugung und Detektion der VUV Strahlung. Die erzielten Ergebnisse sind in Kapitel 4 zusammengefasst. Die Untersuchung der Zwei-Photonen Resonanz, bei welcher Hinweise auf Licht-induzierte Kräfte in der Faser gefunden wurden, wird präsentiert. Weiterhin werden die ersten Resultate zur Summenfrequenzmischung in der Faser besprochen. Im abschließenden Kapitel 5 werden Optionen für die zukünftige Weiterentwicklung des Systems dargelegt.

THEORETISCHE GRUNDLAGEN

Das vorliegende Kapitel bildet die theoretische Basis für das Verständnis von nicht entartetem Vierwellen-Summenfrequenzmischen in einer mit Quecksilberdampf gefüllten Hohlleiter. Dabei wird zunächst auf das verwendete nichtlineare Medium eingegangen und detailliert diskutiert, wie sich die atomare Resonanzstruktur auf die Nichtlinearität auswirkt. Die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen in dielektrischen Hohlleitern wird präsentiert, wobei vornehmlich auf transversale Modenstruktur und Dispersion eingegangen wird. Es folgt die Herleitung, Lösung und Diskussion der gekoppelten Amplitudengleichungen für das Vierwellenmischen unter dem Einfluss der Fasercharakteristika. Gegenstand des letzten Abschnittes ist eine Einführung in die Thematik Licht-induzierter Kräfte, welche durch den Einschluss der Atome in die Hohlleiter auftreten können.

2.1 Quecksilber als nichtlineares Medium

Als Medium für die optische Summenfrequenzmischung wird in dieser Arbeit Quecksilberdampf verwendet. Unter den typischerweise zur Erzeugung vakuum-ultravioletter Strahlung eingesetzten Medien eignet es sich aus mehreren Gründen für den Wellenlängenbereich um 120 nm: Wegen der geringen Konversionseffizienz nichtlinearer Prozesse ist es besonders bei der Erzeugung kontinuierlicher Strahlung essenziell, atomare Resonanzen des Mediums zu nutzen. In Metaldämpfen liegen diese Resonanzen im sichtbaren bis ultravioletten Wellenlängenbereich des elektromagnetischen Spektrums, in welchem leistungsstarke Laserquellen verfügbar sind. Dies ist für Edelgase typischerweise nicht gegeben [68]. Verglichen mit anderen Metallen hat Quecksilber einen sehr hohen Dampfdruck, was hohe Teilchendichten bei moderaten Temperaturen ($< 200\text{ °C}$) erlaubt. Des Weiteren hat Quecksilber mit 84184 cm^{-1} ($\cong 118,79\text{ nm}$) eine ungewöhnlich hohe Ionisationsschwelle, was die Nutzung hoch liegender Zustände ($n > 8$) erlaubt [69]. In Abbildung 2.1 ist das in dieser Arbeit verwendete Vierwellenmisch-Schema zur Erzeugung von Lyman- α Strahlung in Quecksilber skizziert. Vom 6^1S_0 Grund-

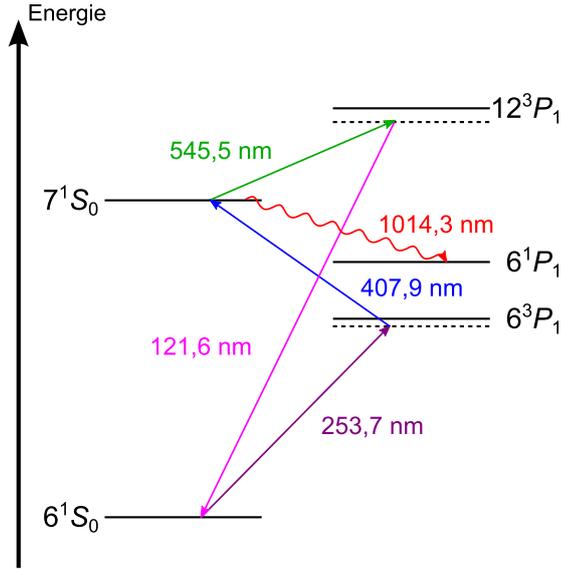


Abbildung 2.1: Reduziertes Energieniveauschema von Quecksilber.

Für den Vierwellenmischprozess relevante Niveaus in Quecksilber mit den zugehörigen nahresonanten fundamentalen und der erzeugten Wellenlänge bei der Summenfrequenz. Ebenfalls dargestellt ist der strahlende Zerfall aus dem 7^1S_0 in das 6^1P_1 Niveau. Abstände sind nicht maßstabsgetreu.

zustand aus wird mit einem nah zum 6^3P_1 -Niveau verstimmt UV-Laser bei 253,7 nm und einem blauen Laser bei 407,9 nm eine Zwei-Photonen Resonanz zum 7^1S_0 -Zustand erreicht. Population aus diesem Zustand zerfällt zu 87 % unter Emission infraroter Strahlung bei 1014,3 nm in den 6^1P_1 Zustand [70], was zur Diagnostik genutzt werden kann. Die Wellenlänge des letzten Fundamentalsstrahls ist durch die zu erzeugende Wellenlänge determiniert. Für die Erzeugung von Lyman- α Licht liegt diese mit 545,5 nm im grünen Spektralbereich und damit etwa 3,6 THz vom nächst gelegenen 12^3P_1 -Niveau entfernt.

Im Folgenden werden die lineare Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ und die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung $\chi^{(3)}$ für die nahresonante Summenfrequenzmischung in Quecksilber berechnet. $\chi^{(1)}$ ist direkt mit dem Brechungsindex des Mediums verknüpft und ihre genaue Kenntnis ist essenziell für die Phasen Anpassung des nichtlinearen Prozesses. Dessen Stärke wird maßgeblich von $\chi^{(3)}$ bestimmt und profitiert von der Resonanzstruktur des Mediums.

2.1.1 Die lineare Suszeptibilität $\chi^{(1)}$

Der komplexe Brechungsindex $\nu(\omega)$ bei der Kreisfrequenz ω ist mit der linearen Suszeptibilität $\chi^{(1)}(\omega)$ über

$$\nu(\omega) = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega)}, \quad (2.1)$$

verknüpft [71]. Real- und Imaginärteil von $\nu(\omega)$ definieren dabei den realen Brechungsindex $n(\omega)$ und den Absorptionskoeffizienten $\alpha(\omega)$ des Mediums:

$$n(\omega) = \text{Re}[\nu(\omega)], \quad (2.2a)$$

$$\alpha(\omega) = 2\frac{\omega}{c} \text{Im}[\nu(\omega)]. \quad (2.2b)$$

Mittels des Dichtematrixformalismus können die Suszeptibilitäten $\chi^{(i)}$ über einen störungstheoretischen Ansatz aus dem quantenmechanischen Erwartungswert des Dipoloperators, beziehungsweise den Oszillatorstärken berechnet werden [71,72]. Die niedrigste Ordnung liefert dabei den Ausdruck für die lineare Suszeptibilität

$$\chi^{(1)}(\omega) = N \frac{e^2}{\varepsilon_0 m_e} \sum_n \frac{f_{gn}}{\omega_{gn}^2 - (\omega - i\gamma_{gn})^2}. \quad (2.3)$$

Hierbei bezeichnet N die Teilchenzahldichte, e die Elementarladung, m_e die Masse des Elektrons und ε_0 die Permittivität des Vakuums. Der Summationsindex n durchläuft dabei alle Zustände, die vom Grundzustand g aus über einen Dipolübergang erreichbar sind. Wegen der intermediären Kopplung sind dies in Quecksilber sowohl Singulett- als auch Triplett- P Zustände. Die Übergangsfrequenz zum entsprechenden Niveau n wird mit ω_{gn} bezeichnet, γ_{gn} entspricht der Dephasierungsrate der Nebendiagonalelemente der Dichtematrix. Letztere setzt sich aus der natürlichen Linienbreite und weiteren homogenen Verbreiterungen zusammen (Details siehe Anhang B). Für das 6^3P_1 Niveau ist die natürliche Linienbreite aus Lebensdauer-Messungen bekannt [70]. Für alle weiteren Niveaus wird sie nach [72] aus der Übergangslinienstärke abgeschätzt. Die Absorptionsozillatorstärken f_{gn} der berücksichtigten Zustände sind im Anhang in Tabelle A.3 zusammengefasst. Der Einfluss des Kontinuums muss ebenfalls berücksichtigt werden, was durch die Aufnahme des dominierenden autoionisierenden Zustandes ($^2D_{3/2}$) $6p^1P$ in die Summation realisiert ist [73,74]. An homogenen Verbreiterungsmechanismen hat die Eigendruckverbreiterung die größte Relevanz. Für den im Experiment relevanten Druckbereich kann diese für Ein-Photon Übergänge durch eine semi-klassische Stoßnäherung approximiert werden, in guter Übereinstimmung mit empirischen Werten für den $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Übergang [75,76] (vergleiche dazu Anhang B.2).

Darüber hinaus verursacht die thermische Teilchenbewegung eine inhomogene Dopplerverbreiterung der Niveaus. Ein Atom mit einer Geschwindigkeitskomponente v_z in Strahlrichtung hat eine zum ruhenden Atom um $\Delta\omega_D = v_z \cdot k$ verschobene Resonanzfrequenz [77]. Mathematisch wird dies durch die Faltung von Gleichung (2.3) mit der Geschwindigkeitsverteilung in Strahlrichtung

$$p(v_z) dv_z = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_w} e^{-\left(\frac{v_z}{v_w}\right)^2} dv_z, \quad (2.4a)$$

mit

$$v_w = \sqrt{\frac{2k_B T}{m_{\text{Hg}}}}, \quad (2.4b)$$

beschrieben. Dabei bezeichnet v_w die wahrscheinlichste Geschwindigkeit, k_B die Boltzmann Konstante, T die absolute Temperatur und m_{Hg} die atomare Quecksilbermasse. Einsetzen in Gleichung (2.3) und Integration liefert

$$\chi^{(1)}(\omega) = N \frac{e^2}{\varepsilon_0 m_e} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{\pi} v_w} e^{-\left(\frac{v_z}{v_w}\right)^2} \sum_n \frac{f_{gn}}{\omega_{gn}^2 - \left(\omega \left(1 + \frac{v_z}{c}\right) - i\gamma_{gn}\right)^2} dv_z. \quad (2.5)$$

Da $\chi^{(1)}$ proportional zur Teilchenzahldichte N ist, ist es zweckmäßig die lineare Suszeptibilität pro Atom $\chi_a^{(1)} = \chi^{(1)}/N$ einzuführen. Die experimentell zugängliche Größe zur Beeinflussung der Teilchenzahldichte ist die Temperatur. Der Zusammenhang von Temperatur und Dampfdruck für Quecksilber ist im Anhang A.2.1 gegeben.

Der Einschluss von Licht und Medium in eine Hohlleiter kann zu zusätzlichen Linienverbreiterungen führen, deren Größenordnung hier diskutiert werden soll. Als homogene Verbreiterungsmechanismen sind Stöße mit der Faserwand und die sogenannte Durchflugzeitverbreiterung¹ zu nennen [78]. Ähnlich der Eigenfrequenzverbreiterung führen Stöße mit der Wand zu Dekohärenzen und damit zu einer Verbreiterung der Linie. Diese entspricht der Stoßrate γ_{Wand} der Atome mit der Faser und skaliert entsprechend invers mit dem Faserinnenradius a und ist proportional zur Wurzel der absoluten Temperatur [79]

$$\gamma_{\text{Wand}} = \frac{\pi v_w}{a}. \quad (2.6)$$

Die Durchflugzeitverbreiterung wird relevant, wenn die Wechselwirkungszeit der Atome durch das Passieren des transversalen Profils des Lichtfeldes kürzer wird als die natürliche Lebensdauer des Systems. Ähnlich der begrenzten Lebensdauer eines Zustandes, führt die zeitliche Einschränkung der Wechselwirkung wegen der Energie-Zeit-Unschärfe zu einer Verbreiterung der Linie. Dies kann bei Fasern wichtig sein, da die geführte Lichtmode nur einen Teil der Faser ausfüllt. Für eine gaußförmige transversale Intensitätsverteilung mit einem $1/e$ -Radius von $w = 0,64 a$ (vergleiche hierzu Kapitel 2.2.2) beträgt die Lorentz-Linienbreite [80]

$$\gamma_{\text{DFZ}} = \frac{\sqrt{2 \ln(2)} v_w}{0,64 a}, \quad (2.7)$$

und hat damit die gleiche funktionale Abhängigkeit wie die Wandstoßverbreiterung. Für die im Experiment verwendete Hohlleiter mit einem Kernradius von

¹ engl. transit-time broadening

$a = 25 \mu\text{m}$ ergeben sich bei einer Temperatur von 120°C volle Halbwertsbreiten von $2\gamma_{\text{Wand}} = 2\pi \times 7,2 \text{ MHz}$ beziehungsweise $2\gamma_{\text{DFZ}} = 2\pi \times 4,2 \text{ MHz}$. Verglichen mit der Dopplerbreite eines Übergangs der Kreisfrequenz ω_0

$$\Gamma_D = \frac{\omega_0}{c} \sqrt{\frac{8k_B T \ln 2}{m_{\text{Hg}}}}, \quad (2.8)$$

die selbst bei Raumtemperatur für den UV Übergang etwa $2\pi \times 1 \text{ GHz}$ beträgt, spielen die Faserverbreiterungen eine untergeordnete Rolle und werden im Weiteren vernachlässigt. Es ist allerdings zu bedenken, dass sie bei kleineren Faseradien oder leichteren Atomen durchaus relevant sein können.

Wegen der Nähe der UV Laserfrequenz zum $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Übergang müssen die Isotopieverschiebung und Hyperfeinstrukturkomponenten der ungeraden Isotope berücksichtigt werden [81]. Dafür werden die Suszeptibilitäten jedes Isotops separat berechnet und mit einem Gewichtungsfaktor, der relative Häufigkeit und Verzweigungsverhältnis berücksichtigt, aufsummiert. Die dafür notwendigen Daten sind im Anhang A.2.3 in Tabelle A.4 zusammengefasst.

Die nach Gleichung (2.5) für Raumtemperatur berechnete Dispersion in Form von $\text{Re}(\chi^{(1)})$ und der Absorptionskoeffizient α sind in Abbildung 2.2 b) als Funktion der UV Verstimmung $\Delta_{\text{UV}} = (\omega_1 - \omega_{6^3P})/2\pi$ zum häufigsten Isotop ^{202}Hg aufgetragen, wobei ω_1 die Kreisfrequenz des UV Lasers ist.

Man erkennt deutlich den Einfluss der einzelnen Isotope, deren relativen Linienstärken darüber in Abbildung 2.2 a) eingezeichnet sind. Für die anderen Strahlen ist die Dispersionkurve, wegen der großen Verstimmung zu Ein-Photon Resonanzen, im Allgemeinen flach und es gibt keine lineare Absorption.

2.1.2 Die nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$

Analog zu der Bestimmung von $\chi^{(1)}$ kann aus höheren störungstheoretischen Ordnungen die nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ aus der Polarisierung berechnet werden. Im allgemeinen Fall nicht entarteter Summenfrequenzmischung $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 = \omega_4$, enthält der Ausdruck für $\chi^{(3)}$ 48 Terme [71]. Hier können jedoch einige Vereinfachungen vorgenommen werden. Unter der Annahme eines isotropen Mediums und gleicher linearer Polarisierung aller beteiligten Strahlen kann $\chi^{(3)}$ als Skalar behandelt werden, was die Zahl der Terme reduziert. Für den Spezialfall nahresonanter Summenfrequenzmischung mit einer Zwei-Photonen Resonanz lässt sich der Ausdruck auf die nahresonanten Terme eingeschränken [73,82], und $\chi^{(3)}$ schreiben als

$$\chi^{(3)} = \frac{N}{6\varepsilon_0\hbar^3} S(\omega_1, \omega_2) \chi_{12} \chi_{34}, \quad (2.9)$$

wobei \hbar das reduzierte Planck'sche Wirkungsquantum bezeichnet. Die drei relevanten Terme sind im Einzelnen die Linienform $S(\omega_1, \omega_2)$ der Zwei-Photonen

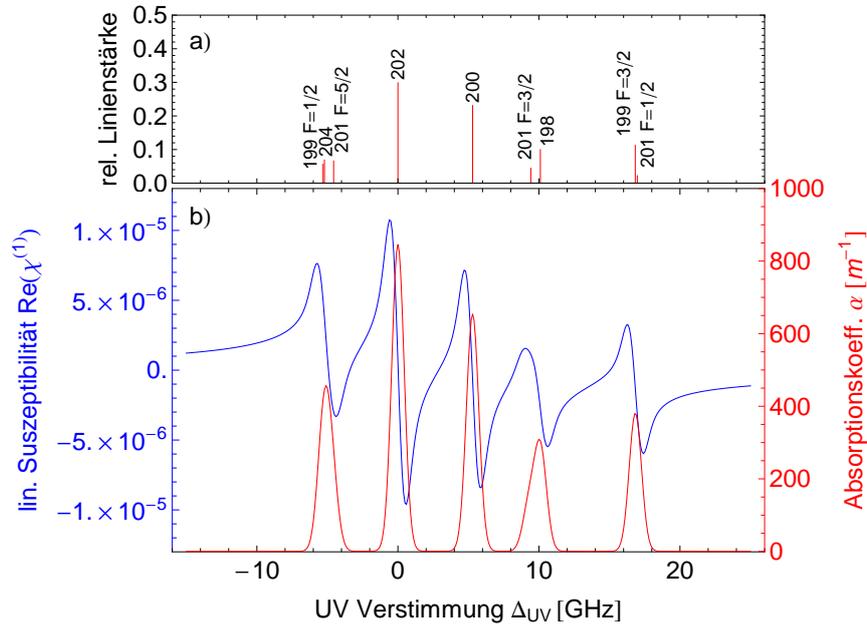


Abbildung 2.2: Lineare Suszeptibilität in der Nähe der $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Resonanz. a) Relative Linienstärken eines natürlichen Quecksilber Isotopengemisches mit Isotopieverschiebung und Hyperfeinstrukturaufspaltung. b) Berechnete Dispersion (blau) und Absorptionskoeffizient (rot) bei Raumtemperatur als Funktion der Verstimmung zum 6^3P_1 -Niveau in ^{202}Hg .

Resonanz

$$S(\omega_1, \omega_2) = \frac{1}{\omega_{gz} - (\omega_1 + \omega_2)}, \quad (2.10a)$$

welche für den Fall, dass $\omega_1 + \omega_2$ der Übergangsfrequenz ω_{gz} zum Zwei-Photonen Niveau entspricht, eine Überhöhung erfährt, und die partiellen Suszeptibilitäten

$$\chi_{12} = \sum_m \left(\frac{\mu_{zm}\mu_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_1} + \frac{\mu_{zm}\mu_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_2} \right), \quad (2.10b)$$

$$\chi_{34} = \sum_n \left(\frac{\mu_{zn}\mu_{ng}}{\omega_{gn} - \omega_4} + \frac{\mu_{zn}\mu_{ng}}{\omega_{gn} + \omega_3} \right). \quad (2.10c)$$

Letztere sind formal Suszeptibilitäten erster Ordnung. Sie enthalten die Dipolmatrixelemente μ_{ij} der in Abbildung 2.3 dargestellten Übergänge und Resonanzterme der Laserfrequenzen² ω_i mit den entsprechenden Niveaus. Die Summation

²Zuordnung der Indizes: 1: UV, 2: blau, 3: grün, 4: VUV

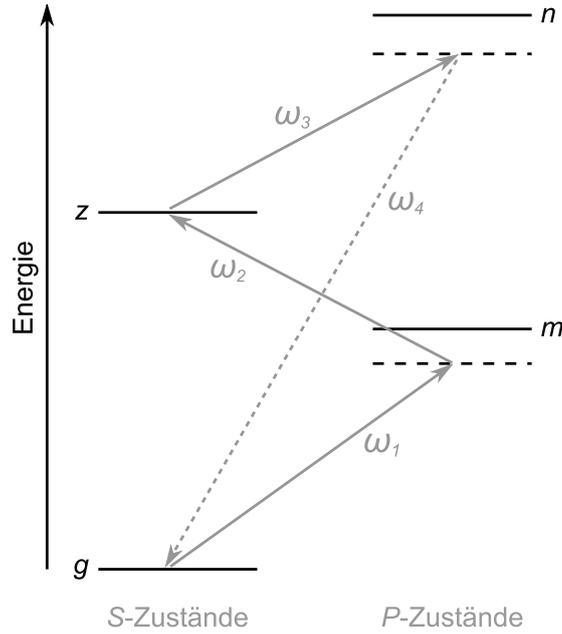


Abbildung 2.3: Vierwellenmischen mit Zwei-Photonen Resonanz. Die Summe $\omega_1 + \omega_2$ entspricht der Frequenz vom Grundzustand g zum Zwei-Photonen Übergang z . Zu $\chi^{(3)}$ tragen alle Zustände m und n bei, die über einen Dipolübergang von g beziehungsweise z aus erreichbar sind.

über die Zustände umfasst dabei alle Zustände m und n , die vom Grundzustand g beziehungsweise dem Zwei-Photonen Niveau z aus über einen Dipolübergang erreichbar sind. Verglichen mit dem Ausdruck (2.3) für $\chi^{(1)}$, enthält Gleichung (2.9) mehrere Resonanznenner. Neben dem Zwei-Photonen Resonanzterm $S(\omega_1, \omega_2)$ können auch χ_{12} und χ_{34} überhöht werden, wenn zusätzlich ω_1 beziehungsweise ω_4 nah zu einer Ein-Photon Resonanz gewählt werden. Hier ist jedoch zu beachten, dass diese im Gegensatz zu Mehr-Photonen Übergängen deutliche Absorption erfahren können.

Angewandt auf Quecksilber entspricht der Grundzustand g dem 6^1S_0 - und z dem 7^1S_0 -Niveau mit der Energie $\hbar\omega_{7^1S_0}$. Beide Zustände besitzen einen Gesamtdrehimpuls von $J = 0$ und entsprechend eine magnetische Quantenzahl $M_J = 0$. Für solche Zustände, und unter der Annahme gleicher linearer Polarisation, gilt weiterhin $\Delta J = 1$ und $\Delta M_J = 0$. In diesem Fall können die Matrixelemente μ_{ij} über die Absorptionssoszillatorstärken f_{ij} ausgedrückt werden [83]

$$\mu_{ij} = -ea_0 \sqrt{\frac{3[(J+1)^2 - M_J^2]g_i}{(J+1)(2J+2)(2J+3)} \frac{f_{ij}cR_\infty}{\frac{\omega_{ij}}{2\pi}}}. \quad (2.11)$$

In dieser Gleichung bezeichnet e die Elementarladung, a_0 den Bohr'schen Radius, R_∞ die Rydberg-Konstante und g_i die Entartung des unteren Niveaus. Da der

Dipoloperator hermitesch ist, gilt darüber hinaus $\mu_{ij} = \mu_{ji}$. Die zur Berechnung notwendigen Daten der erreichbaren n^1P und n^3P Zustände sind zusammen mit den relativen Vorzeichen der Produkte der Dipolmatrixelemente im Anhang in Tabelle A.3 bis $n = 13$ zusammengefasst. Die großen Unsicherheiten in den experimentell bestimmten Oszillatorstärken lässt eine rechnerische Genauigkeit der nichtlinearen Suszeptibilität von 20 – 30 % zu [74].

Analog zur Berechnung der linearen Suszeptibilität werden homogene Verbreiterungen der Übergänge formal durch die Ersetzung $\omega_{ij} \rightarrow \omega_{ij} + i\gamma_{ij}$ eingeführt. Für das 7^1S_0 Niveau kann die Druckverbreiterung aus der in [81] gemessenen Linienform des Zwei-Photonen Signals abgeschätzt werden (vergleiche dazu Anhang B.2). Die Dopplerverbreiterung wird über die Verschiebung $\omega_{ij} \rightarrow \omega_{ij}(1 + v_z/c)$ und die Integration über die Geschwindigkeitsverteilung (2.4) in Strahlrichtung erfasst. Die vollresonante Nutzung der Zwei-Photonen Resonanz erfordert ferner neben der Berücksichtigung der Hyperfeinstruktur des 6^3P_1 Zustandes auch die Isotopieverschiebung im 7^1S_0 Niveau. Die Beiträge der einzelnen Isotope werden separat berechnet und entsprechend ihrer Gewichtung aufsummiert. Die notwendigen Verschiebungen und Häufigkeiten finden sich im Anhang in Tabelle A.4. Der Einfluss der unterschiedlichen Resonanzen auf die Nichtlinearität des Mediums ist in den Abbildungen 2.4 bis 2.6 dargestellt. Die Graphen zeigen jeweils die auf die Dichte normierte, nichtlineare Suszeptibilität $\chi_a^{(3)} = \chi^{(3)}/N$ pro Atom in der Nähe von Ein-, Zwei- und Drei-Photonen Resonanzen, die im Quecksilber möglich sind. Wenn nicht anders angegeben, beziehen sich die Berechnungen auf die Erzeugung von Lyman- α Strahlung.

Abbildung 2.4 b) zeigt den Betrag der berechneten Suszeptibilität $\chi_a^{(3)}$ als Funktion der UV Verstimmung $\Delta_{UV} = (\omega_1 - \omega_{6^3P_1})/2\pi$ zum ^{202}Hg -Isotop im Bereich der ultravioletten Ein-Photon Resonanz. Die für die Berechnungen angenommene Temperatur beträgt $T = 80^\circ\text{C}$. Der Einfluss der Temperatur beschränkt sich wegen der Normierung auf die Dichte auf die Breite der Resonanzen. Der Beitrag der einzelnen Isotope ist gestrichelt dargestellt. Die Farben codieren die jeweiligen Isotope, deren relative Linienstärken in Abbildung 2.4 a) aufgetragen sind. Die Resonanzüberhöhung bei Erreichen der Übergangsfrequenz ist deutlich zu erkennen. Wegen der zusätzlich für das Isotop ^{202}Hg erfüllten Zwei-Photonen Resonanzbedingung ist der Beitrag (blau) entsprechend überhöht. Die durchgezogene rote Kurve zeigt die Suszeptibilität für ein natürliches Isotopengemisch, welche durch den Anteil des ^{202}Hg dominiert wird (siehe Abbildung 2.4 c) für einen Vergleich absoluter Werte). Da $\chi_a^{(3)}$ eine komplexe Größe ist, können sich die einzelnen Beiträge je nach Phasenlage konstruktiv oder destruktiv addieren, was zu der Substruktur zwischen den Resonanzen führt.

Analog ist in Abbildung 2.5 b) für eine feste UV Verstimmung von -50 GHz und $T = 80^\circ\text{C}$ der Absolutbetrag der berechneten Suszeptibilität $\chi_a^{(3)}$ als Funktion der Zwei-Photonen Verstimmung $\Delta_{2\gamma} = (\omega_1 + \omega_2 - \omega_{7^1S_0})/2\pi$ zum ^{202}Hg Isotop aufgetragen. Die rote durchgezogene Kurve zeigt wieder die kohärente Summe der

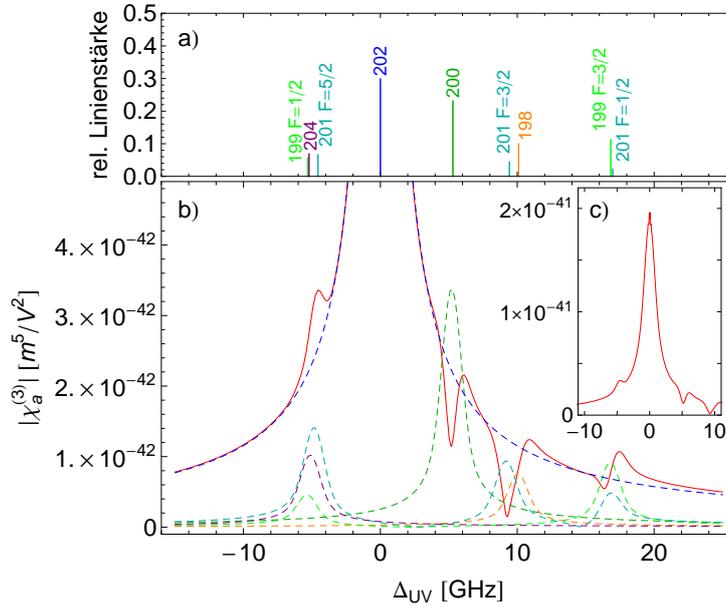


Abbildung 2.4: Nichtlineare Suszeptibilität in der Nähe der Ein-Photon Resonanz. a) Lage und relative Linienstärke der Quecksilberisotope für den $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Übergang mit Hyperfeinstruktur aufspaltung. b) Absolutbetrag von $\chi_a^{(3)}$ als Funktion der UV Verstimmung für ein Isotopengemisch (durchgezogene rote Linie), sowie der einzelnen Isotope (gestrichelte Linien). Die Zwei-Photonen Resonanzbedingung ist für ^{202}Hg erfüllt, was auf der geänderten Skala in c) deutlich wird. Temperatur: 80°C .

Einzelbeiträge der Isotope (gestrichelte Kurven). Dies führt hier zu einer leichten Verschiebung der Maxima relativ zu der in Abbildung 2.5 a) gezeigten Lage der Resonanzen. Diese wurde auch experimentell bereits beobachtet [84].

Der Einfluss einer Ein-Photon Resonanz im VUV auf $|\chi_a^{(3)}|$ ist in Abbildung 2.6 für einen weiten Wellenlängenbereich dargestellt (in normaler (a) und logarithmischer (b) Darstellung). Die obere Achse gibt dabei die notwendige Wellenlänge λ_3 der dritten Fundamentalen an. Der Einfluss der einzelnen Resonanzen ist deutlich zu erkennen. Die Übergänge zu Triplett-Zuständen sind in Quecksilber wegen der intermediären Kopplung erlaubt, haben aber entsprechend kleinere Dipolmatrixelemente, was ihren Einfluss auf $\chi^{(3)}$ beschränkt. Für Lyman- α ($\lambda_4 = 121,56 \text{ nm}$) liegt keines der Niveaus in unmittelbarer Nähe. Wegen der auch experimentell bereits nachgewiesenen Effizienzsteigerung um mehrere Größenordnungen bei dreifach resonantem Vierwellenmischen [54], werden die ersten Experimente zur VUV Erzeugung in einer Hohlfasern bei $\lambda_4 = 121,26 \text{ nm}$, in der Nähe des 12^1P Zustandes durchgeführt. Diese Wellenlänge ist auch hinsichtlich der Experimente mit Calciumionen von Bedeutung, da sie zur Erzeugung von doppelt ionisiertem Ca^{2+}

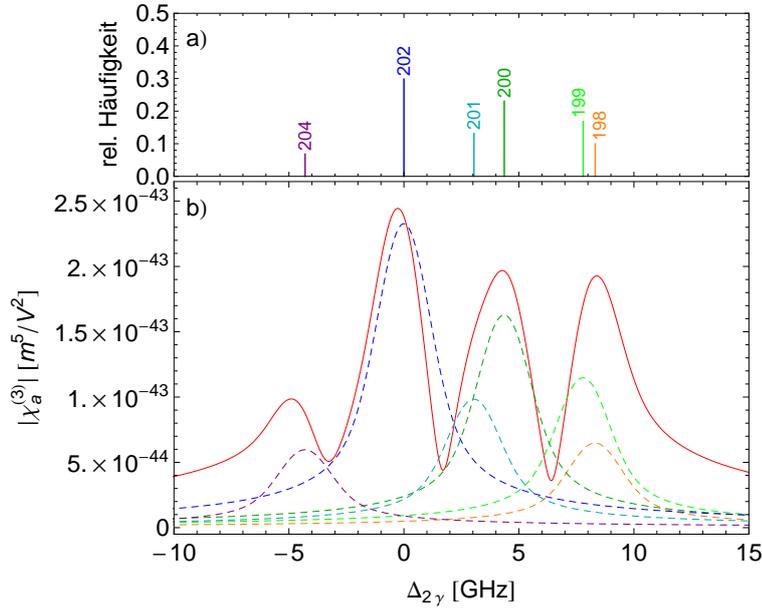


Abbildung 2.5: Nichtlineare Suszeptibilität in der Nähe der Zwei-Photonen Resonanz. a) Lage und relative Häufigkeit der Quecksilberisotope für das 7^1S_0 Niveau. b) Absolutbetrag von $\chi_a^{(3)}$ als Funktion der Zwei-Photonen Verstimmung für ein Isotopengemisch (durchgezogene rote Linie), sowie die einzelnen Isotope (gestrichelte Linien). Verstimmung zur Ein-Photon Resonanz: $\Delta_{UV} = -50$ GHz, Temperatur: $T = 80$ °C.

genutzt werden kann [55]. Für eine mögliche Rydberganregung von Ca^+ -Ionen in den $n = 69$ Zustand beträgt die Anregungswellenlänge 122,04 nm und profitiert von der Nähe zur 11^1P Resonanz [37].

Im Hinblick auf die experimentelle Nutzbarkeit der einzelnen Resonanz-Überhöhungen ist zu berücksichtigen, dass lineare Absorption auf Ein-Photon Übergängen für ω_1 und ω_4 die Nähe zu Resonanzen limitieren kann. Ferner erlaubt die Notwendigkeit den nichtlinearen Prozess phasenanzupassen keine beliebige Wahl der Verstimmungen. Dies wird in späteren Kapiteln ausführlich diskutiert. Die Reduzierung der am Mischprozess partizipierenden Atome durch Zwei-Photonen Absorption ist in der Regel klein und kann vernachlässigt werden.

Zwei-Photonen Absorption

Durch Zwei-Photonen Absorption des ultravioletten und blauen Fundamentalstrahls kann es zu einer geringen Population des 7^1S_0 -Niveaus kommen, welche über den infraroten Zerfall bei 1014 nm in den 6^1P_1 -Zustand detektiert werden kann. Ähnlich der linearen Suszeptibilität können Real- und Imaginärteil von Termen in $\chi^{(3)}$ mit einem intensitätsabhängigen Brechungsindex und der Zwei-

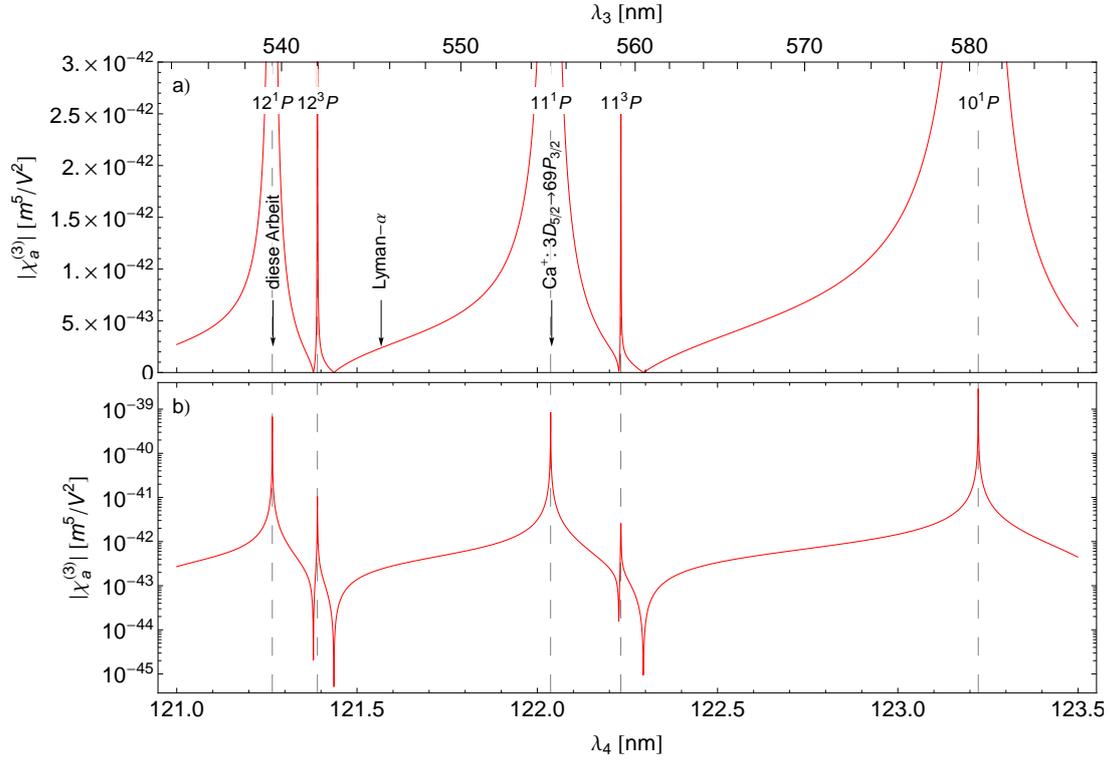


Abbildung 2.6: Nichtlineare Suszeptibilität im VUV Bereich um 122 nm. a) Betrag der berechneten Suszeptibilität pro Atom über der Wellenlänge der zu erzeugenden Summenfrequenz. Die obere Achse gibt die Wellenlänge des dritten Fundamentalstrahls bei Erfüllen der Zwei-Photonen Resonanz an. Die Lagen der Quecksilberniveaus sind mit gestrichelten Linien, relevante Wellenlängen mit Pfeilen gekennzeichnet. Die resonante Überhöhung wird auf der logarithmischen Skala der Abbildung b) deutlich. Verstimmung zur Ein-Photon Resonanz: $\Delta_{UV} = -50$ GHz, Temperatur: $T = 80$ °C.

Photonen Absorptionsrate in Zusammenhang gebracht werden. Für den Zwei-Photonen Absorptionswirkungsquerschnitt $\sigma_{2\gamma}$ der Wellen ω_1 und ω_2 gilt [85,86]

$$\sigma_{2\gamma} = \frac{1}{4\hbar^4 \varepsilon_0^2 c^2} \text{Im}[S(\omega_1, \omega_2)] |\chi_{12}|^2. \quad (2.12)$$

Dabei ist die Schwächung der Intensitäten $I_{1,2}$ der Fundamentalstrahlen entlang der Propagationsrichtung z über

$$\frac{dI_1}{dz} = -\hbar\omega_1\sigma_{2\gamma}NI_1I_2, \quad (2.13a)$$

$$\frac{dI_2}{dz} = -\hbar\omega_2\sigma_{2\gamma}NI_1I_2, \quad (2.13b)$$

2. THEORETISCHE GRUNDLAGEN

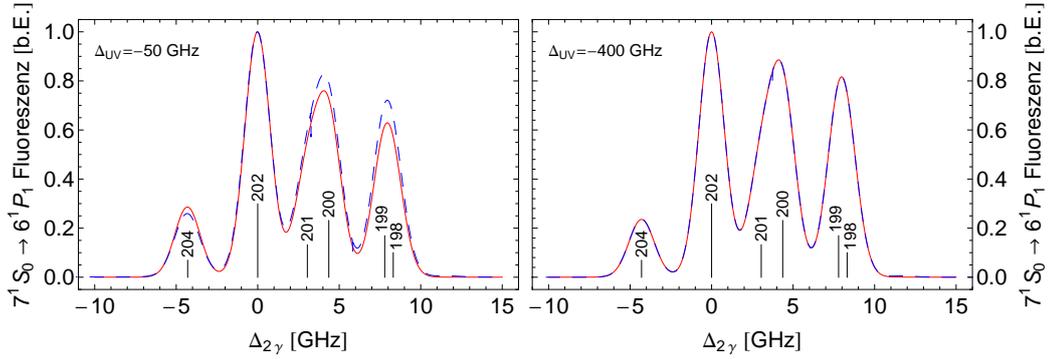


Abbildung 2.7: Zwei-Photonen Fluoreszenzsignal. Nach Gleichung (2.12) (rot) und über OBG (blau gestrichelt) berechnete Form des Fluoreszenzsignals des $7^1S_0 \rightarrow 6^1P_1$ Übergangs als Funktion der Zwei-Photonen Verstimmung $\Delta_{2\gamma}$ für unterschiedliche UV Verstimmungen. Die vertikalen Linien geben Lage und Häufigkeit der Isotope an. Temperatur: $T = 80^\circ\text{C}$.

mit dem Wirkungsquerschnitt $\sigma_{2\gamma}$ verknüpft [86,87]. Die Dichte des Mediums wird mit N bezeichnet. Die Einheit von $\sigma_{2\gamma}$ ist entsprechend $\text{s}^{-1}/(\text{W}/\text{m}^2)^2$.

Die theoretische Linienform des Fluoreszenzsignals ist in Abbildung 2.7 als Funktion der Zwei-Photonen Verstimmung für zwei unterschiedliche Verstimmungen zur Ein-Photon Resonanz im UV dargestellt. Die durchgezogene rote Kurve zeigt die Berechnung nach Gleichung (2.12). Die Lage der Maxima stimmt hier mit den erwarteten Positionen (vertikale Linien) überein, da bei der Fluoreszenz, im Gegensatz zur Berechnung von $\chi^{(3)}$, eine inkohärente Addition der Voigt-Profile der einzelnen Isotope stattfindet.

Eine weitere Möglichkeit zur Berechnung der Linienform ist die Bestimmung der Population des 7^1S_0 Zustandes aus einer Lösung der optischen Bloch Gleichungen (OBG). Dies wird für das in Quecksilber relevante Drei-Niveau-System in [88,89] ausführlich beschrieben und soll daher an dieser Stelle nicht weiter diskutiert werden. Der sich daraus ergebende Verlauf ist zum Vergleich als blau gestrichelte Kurve in Abbildung 2.7 dargestellt.

Beide Rechnungen wurden wieder für eine Dampftemperatur von $T = 80^\circ\text{C}$ durchgeführt. Die Höhen der ^{202}Hg Peaks beider Kurven wurden einander für die jeweiligen Verstimmungen angepasst. Während für $\Delta_{UV} = -400\text{ GHz}$ eine sehr gute Übereinstimmung beider Linienformen vorliegt, erkennt man für $\Delta_{UV} = -50\text{ GHz}$ Diskrepanzen. Diese liegen in der Relevanz von Ein-Photon Prozessen bei kleinen Verstimmungen begründet, die in der Berechnung nach Gleichung (2.12) nicht enthalten sind. So führt die doppelte Ein-Photon Resonanz, bei welcher eine sukzessive Anregung über das 6^3P_0 -Niveau stattfindet, zu der gezeigten relativen Änderung der Peakhöhen.

2.2 Lichtwellenleitung in Hohlfasern

In konventionellen Glasfasern, bei denen der Brechungsindex des Kerns größer als der des umgebenden Mantelmaterials ist, basieren die lichtleitenden Eigenschaften auf innerer Totalreflexion. In Hohlfasern dagegen ist der Brechungsindex des Kerns kleiner. Die hohe Fresnel-Reflektivität bei streifendem Einfall an der Kern-Mantel-Grenze erlaubt einen transversalen Einschluss elektromagnetischer Wellen. Jedoch erfährt das geführte Licht wegen der nicht perfekten Reflexion deutliche Verluste und reagiert entsprechend sensibel auf Verbiegen der Faser. Die Randbedingungen, welche das propagierende elektromagnetische Feld innerhalb der Faser erfüllen muss, führen zur Ausbildung diskreter Moden, welche erstmals 1897 von Lord Rayleigh theoretisch untersucht wurden [90]. Diese beeinflussen sowohl Verluste als auch Dispersion bei der Propagation durch die Faser. Eine detaillierte theoretische Studie von metallischen und dielektrischen Hohlfasern als Lichtwellenleiter wurde 1964 von Marcatili und Schmeltzer angestellt [91]. Zunächst soll in diesem Kapitel auf die Hohlfaser als Lichtleiter eingegangen, und deren charakteristische Eigenschaften wie Dispersion, Leitungsverluste und transversale Moden mathematisch formuliert werden.

2.2.1 Zylindrische elektromagnetische Wellen

Das durch die Symmetrie vorgegebene, natürliche Koordinatensystem für die Beschreibung elektromagnetischer Wellen in einer Hohlfaser sind Zylinderkoordinaten, mit einer Achse z in Ausbreitungsrichtung, dem Abstand r von dieser Achse, und einem Azimutalwinkel θ . In einem homogenen, isotropen Medium mit Brechungsindex ν können in diesem Koordinatensystem alle elektromagnetischen Wellen als Linearkombination der elementaren Wellenfunktionen

$$\psi_{n\gamma k} = e^{in\theta} J_n \left(\sqrt{\nu^2 k^2 - \gamma^2} r \right) e^{\pm i\gamma z - i\omega t}, \quad (2.14a)$$

$$\phi_{n\gamma k} = e^{in\theta} H_n^{(1)} \left(\sqrt{\nu^2 k^2 - \gamma^2} r \right) e^{\pm i\gamma z - i\omega t}, \quad (2.14b)$$

geschrieben werden [92]. Hierbei sind J_n und $H_n^{(1)}$ Bessel- und Hankelfunktion erster Art n ter Ordnung, k bezeichnet den Wellenvektor im Vakuum, und γ die Propagationskonstante. Letztere ist im Allgemeinen komplex, und somit die Ausbreitung in z -Richtung nicht zwangsläufig rein periodisch. Der genaue Ausdruck für γ ist neben der Kreisfrequenz ω und den Eigenschaften des Mediums auch von den Randbedingungen abhängig.

Während die Besselfunktion in Gleichung (2.14a) für $r = 0$ endlich bleibt, und für $r \rightarrow \infty$ oszillatorisches Verhalten zeigt, ist Gleichung (2.14b) für $r = 0$ unbeschränkt, strebt aber für große Abstände gegen Null. Sie eignen sich entsprechend zur Beschreibung physikalischer Felder in achsennahen beziehungsweise -fernen Regionen. Die Parameter n , γ und k klassifizieren dabei die Elementarwellen. Für

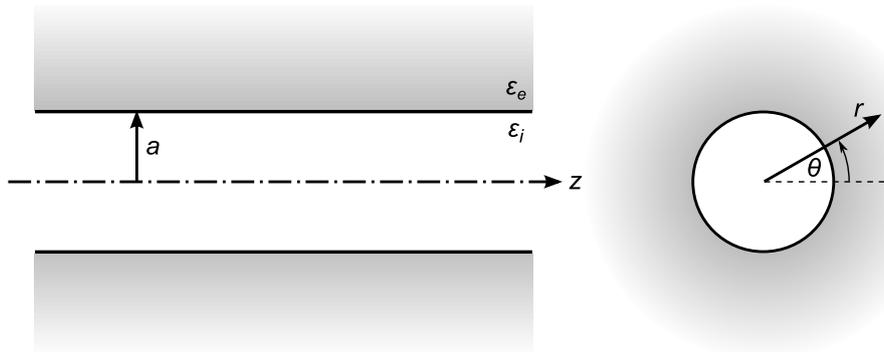


Abbildung 2.8: Definition des Zylinderkoordinatensystems zur Beschreibung einer Hohlleiter mit Kernradius a . Die dielektrischen Konstanten von Kern- (intern) und Mantelmedium (extern) werden mit $\varepsilon_{i,e}$ bezeichnet.

$n = 0$ ist das Feld symmetrisch zur z -Achse. Für $\gamma = 0$ ist die Ausbreitung rein radial, und die Beschreibung reduziert sich auf zwei Dimensionen.

Wellenfunktionen wie in den Gleichungen (2.14) kann man allgemein als inhomogene ebene Wellen bezeichnen, da sich die Ebenen konstanter Phase entlang der z -Achse mit einer Geschwindigkeit $v = \omega/\beta$ mit $\beta = \text{Re}[\gamma]$ bewegen, während die Amplitude innerhalb dieser Ebene eine Funktion von r und θ ist.

2.2.2 Hohlleitermoden

Nun wird der konkrete Fall von Wellenleitung in einer geraden, dielektrischen Hohlleiter betrachtet. Zusätzliche Effekte durch ein Verbiegen der Faser, und die damit assoziierten Verluste, werden hier nicht berücksichtigt. Ein umfangreiches Studium dieses Themas findet sich in den Quellen [91,92]. Hier sollen lediglich die wichtigsten Schritte aufgeführt und plausibel gemacht werden. Der Radius a des hohlen Kerns der Faser sei klein im Vergleich zur Wanddicke des Mantelmaterials, so dass in allen folgenden Betrachtungen die Grenzschicht zur Umgebung ignoriert wird. Die Medien von Faserkern (intern) und Mantel (extern) haben dabei die dielektrischen Konstanten ε_i und ε_e . Das zugrunde liegende Koordinatensystem sind Zylinderkoordinaten, wie in Abbildung 2.8 skizziert. Die magnetische Permeabilität beider Medien sei vernachlässigbar. Weiterhin gelte die Annahme, dass die Wellenlänge λ des zu führenden Lichtes deutlich kleiner als der Kerndurchmesser a ist. Für die Beschreibung physikalischer Felder muss das Feld im Zentrum endlich bleiben und konsequenterweise als Linearkombination von Besselfunktionen erster Art (vergleiche Gleichung (2.14a)) ausgedrückt werden. Außerhalb des Zylinders ($r > a$) gewährleistet das Verhalten der Hankelfunktion (2.14b) einen exponentiellen Abfall der Felder für große Abstände. Aus der Stetigkeitsbedingung der Tangentialkomponenten der elektromagnetischen Felder an

der Grenzfläche ($r = a$) lässt sich ein homogenes, lineares Gleichungssystem für die Entwicklungskoeffizienten aufstellen. Die Determinante dieses Systems liefert folgende transzendente Gleichung

$$\left[\frac{1}{k_i a} \frac{J'_n(k_i a)}{J_n(k_i a)} - \frac{1}{k_e a} \frac{H_n^{(1)'}(k_e a)}{H_n^{(1)}(k_e a)} \right] \left[\frac{(\nu_i k)^2 J'_n(k_i a)}{k_i a J_n(k_i a)} - \frac{(\nu_e k)^2 H_n^{(1)'}(k_e a)}{k_e a H_n^{(1)}(k_e a)} \right] = n^2 \gamma^2 \left[\frac{1}{(k_e a)^2} - \frac{1}{(k_i a)^2} \right]^2, \quad (2.15)$$

deren Nullstellen die erlaubten Werte für die Propagationskonstante γ darstellen [91,92]. Hierbei bezeichnen die gestrichelten Funktionen $J'_n(k_i a) = dJ_n(k_i a)/d(k_i a)$ und $H_n^{(1)'}(k_e a) = dH_n^{(1)}(k_e a)/d(k_e a)$ die ersten Ableitungen nach dem Argument der Funktion und $\nu_{i,e} = \sqrt{\varepsilon_{i,e}}$ die komplexen Brechungsindizes. Die Größen $k_{i,e}$ sind mit der Propagationskonstanten γ und dem Vakuumwellenvektor k über die Beziehungen

$$k_i^2 = \nu_i^2 k^2 - \gamma^2, \quad (2.16a)$$

$$k_e^2 = \nu_e^2 k^2 - \gamma^2, \quad (2.16b)$$

verknüpft. Die Nullstellen von (2.15) sind diskret, aber in zweifacher Weise unendlich, so dass zu jedem n eine durch m nummerierte, abzählbar unendliche Anzahl an Nullstellen existiert. Die zugehörigen Propagationskonstanten werden mit γ_{nm} bezeichnet.

Bevor auf die genaue Form von γ_{nm} eingegangen wird, sollen zunächst die drei Modentypen diskutiert werden, die von der oben beschriebenen Geometrie unterstützt werden. Eine detaillierte Analyse der Feldverteilung von E - und H -Feld ist in [91] aufgeführt. Dabei wird weiterhin angenommen, dass

$$\left| \left(\frac{\gamma}{k} \right) - 1 \right| \ll 1, \quad (2.17)$$

gilt. Diese Ungleichung schränkt die Betrachtung auf Moden ein, deren Propagationskonstanten γ nahezu dem Vakuumwellenvektor k entsprechen.

Für den symmetrischen Fall $n = 0$ sind die Moden entweder *zirkular elektrisch* TE_{0m} oder *zirkular magnetisch* TM_{0m} . Die elektrischen Feldlinien der TE-Moden liegen tangential an konzentrischen Kreisen um die z -Achse, die der TM-Moden verlaufen radial nach außen.

Für $n \neq 0$ ergeben sich *hybride Moden* EH_{nm} mit tangentialen und radialen elektrischen Feldkomponenten. Sie besitzen einen kleinen longitudinalen Anteil, der jedoch vernachlässigbar ist, so dass die EH-Moden in erster Näherung als transversal angesehen werden können.

Die radialen und azimutalen Feldkomponenten der elektrischen Felder der unterschiedlichen Moden innerhalb des Hohlleiters lauten näherungsweise:

Für TE_{0m} -Moden (rein tangential):

$$E_{0m,r} = 0, \quad (2.18a)$$

$$E_{0m,\theta} = J_1 \left(u_{0m} \frac{r}{a} \right). \quad (2.18b)$$

Für TM_{0m} -Moden (rein radial):

$$E_{0m,r} = J_1 \left(u_{0m} \frac{r}{a} \right), \quad (2.18c)$$

$$E_{0m,\theta} = 0. \quad (2.18d)$$

Für EH_{nm} -Moden (hybrid):

$$E_{nm,r} = J_{n-1} \left(u_{nm} \frac{r}{a} \right) \sin n\theta, \quad (2.18e)$$

$$E_{nm,\theta} = J_{n-1} \left(u_{nm} \frac{r}{a} \right) \cos n\theta. \quad (2.18f)$$

Hierbei bezeichnet u_{nm} die m -te Nullstelle der Gleichung $J_{n-1}(u_{nm}) = 0$. Die elektrischen Felder einiger Moden sind in Abbildung 2.9 dargestellt. Man erkennt gut den tangentialen beziehungsweise radialen Charakter der TE - und TM -Moden. Die Zahl n nummeriert die Zähligkeit der azimuthalen Rotationssymmetrie, m entspricht der Anzahl der Feldmaxima und Minima vom Zentrum bis zur Grenzfläche. Es ist anzumerken, dass das transversale Profil nur vom Radius a , nicht aber von der Wellenlänge λ des geführten Lichtes abhängt. In die gleiche Mode eingekoppelte Strahlen unterschiedlicher Wellenlänge haben also einen maximalen transversalen Überlapp.

Von besonderem Interesse sind die EH_{1m} -Moden. Sie besitzen lineare Polarisation (vergleiche Abbildung 2.9) und die EH_{11} Grundmode hat eine große Ähnlichkeit zur TEM_{00} Freistrahlgaußmode. Im Weiteren wird die Diskussion daher auf EH_{1m} -Moden beschränkt. Quantifizieren lässt sich die transversale Ähnlichkeit über die Einkoppeleffizienz η_{1m} einer Gaußmode in die Hohlfasermode EH_{1m} . Für eine gegebene lineare Polarisation lautet die radiale Feldstärke der Fasermode

$$E(r) = E_0 J_0 \left(u_{1m} \frac{r}{a} \right). \quad (2.19)$$

Das räumliche Profil eines TEM_{00} Gaußstrahls im Fokus, mit Strahltaile w wird beschrieben durch

$$E(r) = E_0 e^{-\frac{r^2}{w^2}}, \quad (2.20)$$

wobei E_0 in beiden Fällen die Feldamplitude bei $r = 0$ bezeichnet. Der Anteil der auf Achse in die Fasermode eingekoppelten Leistung entspricht dem

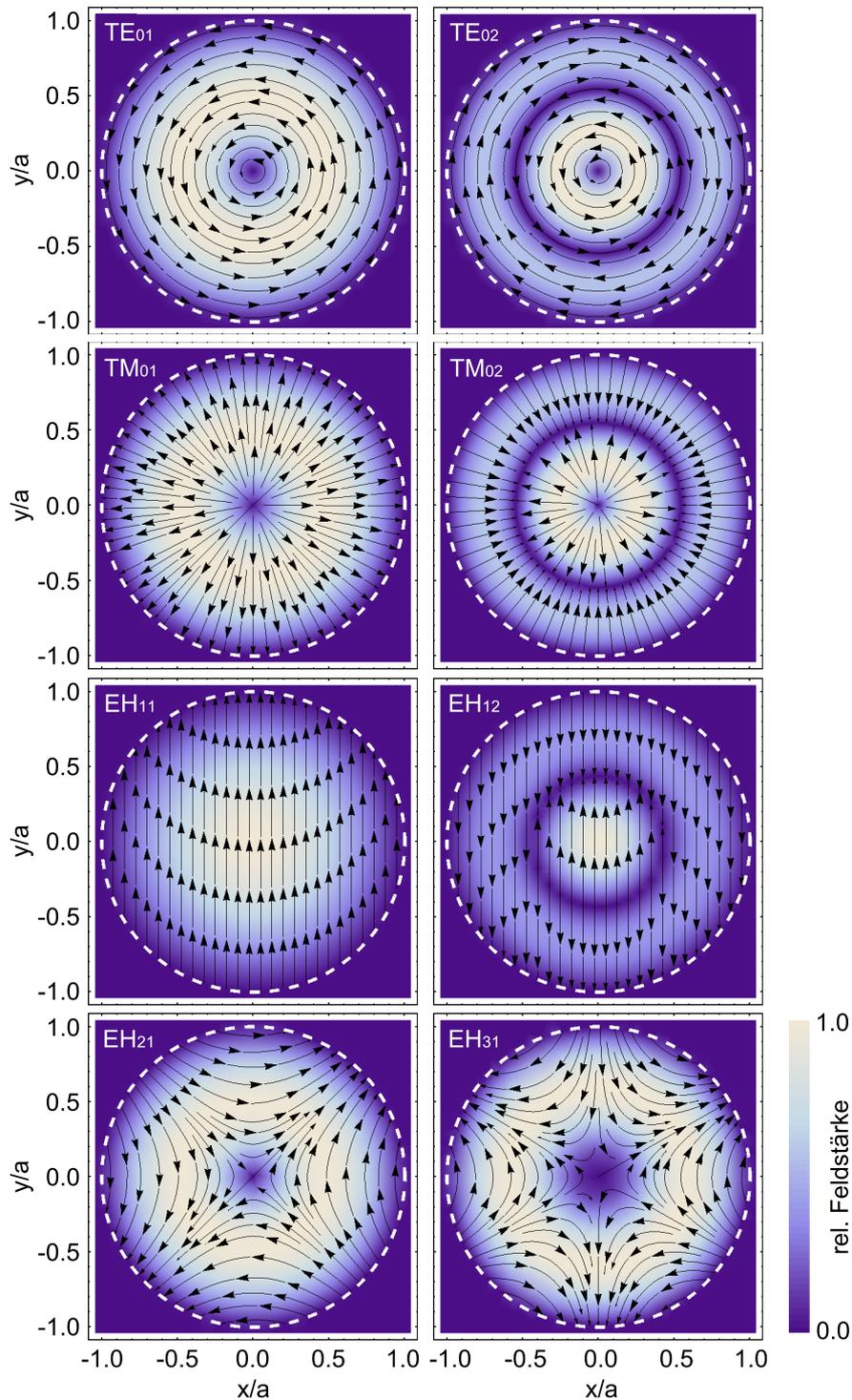


Abbildung 2.9: Elektrische Feldverteilung im Inneren einer dielektrischen Hohlfaser für unterschiedliche Moden. Die Feldlinien sind durch Pfeile dargestellt. Die Stärke des Feldes ist farblich codiert. Die gestrichelte weiße Linie deutet die Kern-Mantel Grenze an.

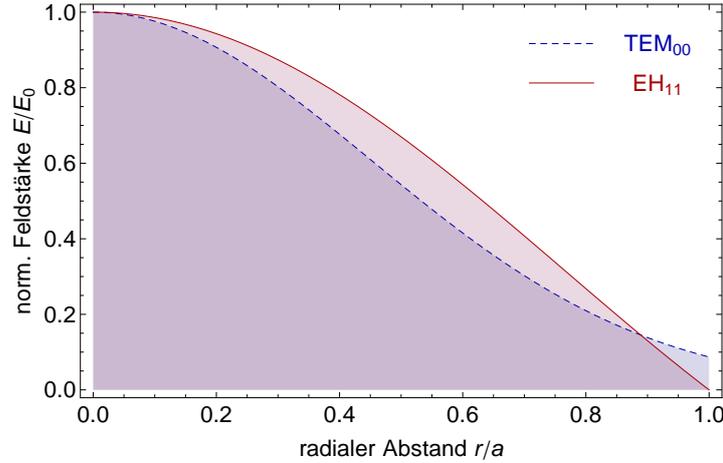


Abbildung 2.10: Radiale Feldverteilung der Freistrah- und Fasergrundmode. Das Verhältnis von Strahltaile w des TEM_{00} Profils zum Faserinnenradius a beträgt $w/a = 0,64$.

Überlappintegral [93]

$$\eta_{1m} = \frac{\left| \int_0^a e^{-\frac{r^2}{w^2}} J_0\left(u_{1m} \frac{r}{a}\right) r dr \right|^2}{\int_0^\infty e^{-\frac{2r^2}{w^2}} r dr \int_0^a J_0^2\left(u_{1m} \frac{r}{a}\right) r dr}, \quad (2.21)$$

für ein gegebenes Verhältnis w/a von Strahltaile zu Kernradius. Das Profil der Fasermode wird dabei nur bis zur Kern-Mantel Grenze integriert. Die maximal theoretische Einkoppeeffizienz einer Gaußmode in die EH_{11} -Grundmode erhält man für $w/a = 0,64$ mit $\eta_{11} = 98,1\%$. Ein Vergleich der beiden radialen Feldverläufe für diesen Fall ist in Abbildung 2.10 skizziert.

Der Fehler der oben gemachten Näherungen wirkt sich hauptsächlich im Bereich der Grenzfläche aus. Die in den Gleichungen (2.18) beschriebenen Moden haben bei $r = a$ Nullstellen, während das tatsächliche Feld zwar klein, aber nicht verschwindend ist. Der Verlauf im Mantel ist wegen seines geringen Anteils an geführter Leistung für die weitere Betrachtung irrelevant. Er hat sein Maximum an der Grenzfläche und fällt mit $r^{-1/2} \exp[ik_e(r - a)]$ in radialer Richtung ab [91].

2.2.3 Propagationskonstante von Hohlfasern

Die Propagationskonstante γ ist eine komplexe Zahl, die Phasen- und Abschwächungsverhalten einer elektromagnetischen Welle bei ihrer Ausbreitung durch die Hohlleiter beschreibt. Sie hängt neben Dispersion und Absorption des Kernmediums von den Eigenschaften der propagierenden Fasermode ab. Dazu gehören

Faserdispersion, Absorption im Mantelmaterial und Leitungsverluste auf Grund der nicht perfekten Fresnel-Reflexion an der Grenzfläche.

Die Propagationskonstanten der einzelnen Moden lassen sich über Störungsrechnung als Nullstellen der charakteristischen Gleichung (2.15) bestimmen [91]. Für die EH_{nm} -Moden in einer geraden, dielektrischen Hohlleiter, gefüllt mit einem Medium des Brechungsindex ν_i erhält man mit den erwähnten Näherungen [94]

$$\gamma_{nm} \approx \frac{2\pi}{\lambda} \nu_i \left[1 - \frac{1}{2} \left(\frac{u_{nm}\lambda}{2\pi a} \right)^2 \left(1 - i \frac{\nu_{\text{EH}}\lambda}{\pi a} \right) \right], \quad (2.22)$$

mit

$$\nu_{\text{EH}} = \frac{1}{2} \frac{\bar{\nu}^2 + 1}{\sqrt{\bar{\nu}^2 - 1}} \quad \text{und} \quad \bar{\nu} \equiv \frac{\nu_e}{\nu_i} = \sqrt{\frac{\varepsilon_e}{\varepsilon_i}}. \quad (2.23)$$

Phasenkonstante β_{nm} und Abschwächungskoeffizient α_{nm} sind mit Real- beziehungsweise Imaginärteil der Propagationskonstanten assoziiert:

$$\beta_{nm} = \text{Re}[\gamma_{nm}], \quad (2.24a)$$

$$\alpha_{nm} = 2 \text{Im}[\gamma_{nm}]. \quad (2.24b)$$

Der Kehrwert des Verlustkoeffizienten α_{nm} entspricht der Länge, nach der die Intensität des geführten Lichtes auf $1/e$ ihres ursprünglichen Wertes abgefallen ist, und skaliert mit $u_{nm}^2 \lambda^2 / a^3$. Folglich hat wegen $u_{11} \leq u_{nm}$ die EH_{11} -Mode die geringsten Verluste. Von den fundamentalen Lichtfeldern wird das grüne Licht am schlechtesten geführt. Die $1/e$ -Längen in der EH_{11} -Mode einer Faser mit $25 \mu\text{m}$ Kernradius liegen bei 12 cm (grün), 22 cm (blau), 57 cm (UV) und 249 cm (VUV). Für den UV Strahl kann diese im Fall nahresonanter Verstimmung zum $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Übergang jedoch kürzer sein, da Absorption im Quecksilber die Leitungsverluste dominieren kann.

Für TE- und TM-Moden ändert sich der Ausdruck (2.23), was hauptsächlich Einfluss auf die Propagationssverluste hat. Ab einem Wert von $\bar{\nu} \gtrsim 2,02$ erleiden die TE-Moden die geringsten Verluste bei der Propagation durch die Faser. Für Gläser mit typischerweise $\bar{\nu} \approx 1,5$ sind die EH-Moden die verlustärmsten.

Ohne weitere Herleitung sei noch angemerkt, dass die Verluste α_R bei Biegung der Faser mit einem Biegeradius R proportional zu $R^{-2} \lambda^{-2} a^3$ sind. Sie werden demnach für kurze Wellenlängen kritischer. Ferner sind höhere transversale Moden unempfindlicher gegen Verbiegen [91].

2.3 Nichtlineare Hohlleiter-Optik

Die nichtlineare Optik beschreibt Phänomene der Wechselwirkung von intensiven Lichtfeldern mit Materie. Die Systemantwort des Mediums, in Form der durch die Felder induzierten Polarisation $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$, hängt dabei nichtlinear von der Feldstärke

$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ der eingestrahlten Felder ab. Diese Polarisation fungiert als Quelle neuer elektromagnetischer Strahlung und lässt sich in einer Potenzreihe als Summe von linearer und nichtlinearer Polarisation entwickeln

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \underbrace{\varepsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}_{\equiv \mathbf{P}_{\text{lin}}(\mathbf{r}, t)} + \underbrace{\varepsilon_0 \chi^{(2)} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)^2 + \varepsilon_0 \chi^{(3)} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)^3 + \dots}_{\equiv \mathbf{P}_{\text{nl}}(\mathbf{r}, t)}. \quad (2.25)$$

Dabei bezeichnet ε_0 die elektrische Feldkonstante und $\chi^{(i)}$ die Suszeptibilität i -ter Ordnung. Diese sind Tensoren $(i - 1)$ -ter Stufe und geben die Stärke der nichtlinearen Prozesse i -ter Ordnung an. Die lineare Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ kann mit dem Brechungsindex verknüpft werden (vergleiche Kapitel 2.1.1). Suszeptibilitäten höherer Ordnung sind die Proportionalitätsfaktoren der Prozesse in den entsprechenden Potenzen von $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$. Dies sind zum Beispiel Summen- und Differenzfrequenzmischung oder die Erzeugung höherer Harmonischer [71].

Kurz nach der Entdeckung des Lasers [95] als Quelle intensiver, kohärenter Strahlung folgte die erste experimentelle Beobachtung von Frequenzverdopplung [41]. Seither dienen nichtlineare optische Prozesse der kohärenten Erzeugung kurzer Wellenlängen, für die keine geeigneten Lasermedien existieren.

Wegen der zu kurzen Wellenlängen beschränkten optischen Transparenz und Phasenanpassungsmöglichkeiten in Kristallen, selbst neuartiger Materialien [96], hat sich zur Erzeugung kohärenter, kontinuierlicher Strahlung im VUV Frequenzbereich das Vierwellenmischen in Metalldämpfen etabliert. Die Theorie dieses 1971 erstmals experimentell realisierten [97] Prozesses dritter Ordnung ist in zahlreichen Werken ausführlich dokumentiert und gut verstanden [71,83,98].

Hier wird der Formalismus für den Spezialfall nicht entarteter Summenfrequenzmischung in einer dampfgefüllten Hohlleiter hergeleitet. Der konzeptionelle Unterschied zu den gängigen Theorien ebener Wellen oder fokussierter Gaußstrahlen liegt in der durch die Randbedingungen der Faser hervorgerufenen veränderten Wellenfronten, möglicher höherer transversaler Moden und den Propagationsverlusten. Die Herleitung orientiert sich dabei an den Veröffentlichungen [61,62] zum Vierwellenmischen in gasgefüllten Hohlleitern.

2.3.1 Nichtlineare Wellengleichung

Ausgangspunkt für die Berechnung der Effizienz nichtlinearer Prozesse ist die Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik

$$\Delta \tilde{\mathbf{E}} - \frac{\varepsilon_M(\omega)}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \tilde{\mathbf{E}} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \tilde{\mathbf{P}}_{\text{nl}}. \quad (2.26)$$

Sie hat die Form einer inhomogenen Wellengleichung und beschreibt die Erzeugung elektromagnetischer Wellen auf Grund einer treibenden, nichtlinearen Polarisation $\tilde{\mathbf{P}}_{\text{nl}}$ des Mediums. Dabei bezeichnet $\varepsilon_M(\omega)$ den allgemein komple-

xen dielektrischen Tensor des Mediums und c die Vakuumlichtgeschwindigkeit. Die Tilde über den Feldern deutet an, dass es sich hierbei um zeitlich schnell veränderliche Größen handelt. Die Herleitung der Fundamentalgleichung (2.26) erfolgt aus den Maxwell-Gleichungen unter der Annahme eines quellfreien, nicht-magnetischen Mediums und räumlich langsam veränderlicher Felder³ [71]. In isotropen Medien und bei gleicher Polarisation aller beteiligten Felder können der dielektrische Tensor sowie die Felder für die weitere Rechnung als skalar angenommen werden.

Für den Vierwellenmischprozess des Summenfrequenzmischens dreier nicht entarteter Eingangsfelder $\tilde{E}_{1,2,3}$ mit Kreisfrequenzen $\omega_{1,2,3}$ lautet die nichtlineare Polarisation bei der Summenfrequenz $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$

$$\tilde{P}_{\text{nl}}^{(3)}(\omega_4) = 6\varepsilon_0 N \chi_a^{(3)} \tilde{E}_1 \tilde{E}_2 \tilde{E}_3. \quad (2.27)$$

Die nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ ist hier als Produkt der Suszeptibilität pro Atom $\chi_a^{(3)}$ und der Atomdichte N ausgedrückt. Analoge Ausdrücke existieren für die Erzeugung einer der Wellen bei $\omega_{1,2,3}$ durch Differenzfrequenzmischung von ω_4 mit den zwei anderen Fundamentalstrahlen. Wegen der geringen Konversionseffizienz nichtlinearer Prozesse höherer Ordnung kann aber die Vereinfachung angenommen werden, dass die nichtlinearen Polarisationen der Form $\tilde{P}_{\text{nl}}^{(3)}(\omega_{1,2,3})$ wegen der geringen Amplitude von \tilde{E}_4 vernachlässigbar sind. Die Fundamentale erfahren also durch den Mischprozess keine nennenswerte Abschwächung. Die Wellengleichungen (2.26) für die beteiligten Felder lauten dann im Einzelnen

$$\Delta \tilde{E}_4 - \frac{\varepsilon_M(\omega_4)}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \tilde{E}_4 = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \tilde{P}_{\text{nl}}^{(3)}(\omega_4), \quad (2.28a)$$

$$\Delta \tilde{E}_j - \frac{\varepsilon_M(\omega_j)}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \tilde{E}_j = 0 \quad \text{mit } j = 1, 2, 3. \quad (2.28b)$$

Die Gleichungen (2.28b) für die Fundamentale reduzieren sich damit auf homogene Differentialgleichungen. Lineare Verluste sind in den Gleichungen (2.28) implizit noch in den Eigenschaften des Mediums in Form von ε_M enthalten.

2.3.2 Fundamentalgleichung für Hohlfasern

Das gesamte elektrische Feld in der Hohlleiter, bestehend aus den drei fundamentalen und dem erzeugten Lichtfeld, kann als Summe quasi-ebener Wellen mit einer

³engl.: slowly varying amplitude approximation

2. THEORETISCHE GRUNDLAGEN

durch die Hohlfasermode bestimmten Phasenkonstanten β_μ geschrieben werden

$$\tilde{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mu=1}^4 \tilde{E}_\mu(\mathbf{r}, t) \quad (2.29a)$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{\mu=1}^4 (E_\mu(\mathbf{r}) e^{i\beta_\mu z} e^{-i\omega_\mu t} + c.c.) \quad (2.29b)$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{\mu=1}^4 (A_\mu(z) f_\mu(r) e^{i\beta_\mu z} e^{-i\omega_\mu t} + c.c.) . \quad (2.29c)$$

Die einzelnen Felder werden durch $\mu \in \mathbb{N}_1^4$ nummeriert. Die räumliche Änderung der Feldstärke in Propagationsrichtung z ist in der komplexen Amplitude $A_\mu(z)$ enthalten. Das transversale Modenprofil $f_\mu(r)$ lautet für EH_{nm} -Moden

$$f_\mu(r) \equiv f_\mu^{nm}(r) = J_0\left(u_\mu^{nm} \frac{r}{a}\right) . \quad (2.30)$$

Zunächst wird die Gleichung (2.28a) für den erzeugten Strahl bei der Frequenz ω_4 , mit der expliziten Form (2.29) der Felder betrachtet. Durch die Separation in longitudinale und transversale Komponente lassen sich die einzelnen Beiträge des Laplace-Operators

$$\Delta(r, \theta, z) = \frac{1}{r} \left(\frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} , \quad (2.31)$$

in Zylinderkoordinaten getrennt berechnen. Führt man die zweifache zeitliche, sowie die Ableitung nach den transversalen Koordinaten in Gleichung (2.28a) aus, erhält man

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} E_4(\mathbf{r}) - \left(\frac{u_4^{nm}}{a} \right)^2 E_4(\mathbf{r}) + \underbrace{\frac{\omega_4^2 \varepsilon_M(\omega_4)}{c^2}}_{\equiv \gamma_{nm}^2(\omega_4)} E_4(\mathbf{r}) = -\frac{\omega_4^2}{\varepsilon_0 c^2} P_{\text{nl}}^{(3)}(\mathbf{r}, \omega_4) . \quad (2.32)$$

Dabei wurde für die nichtlineare Polarisation eine äquivalente Entwicklung in Fourierkomponenten angesetzt, wie in (2.29). Der Faktor $-(u_4^{nm}/a)^2$ stammt aus der Ableitung des Modenprofils nach der Radialkomponente, die Ableitung nach der Azimutalkomponente verschwindet identisch. Die Identifikation des Vorfaktors im dritten Term mit der Propagationskonstanten γ kann man sich wie folgt plausibel machen: In der Fundamentalgleichung (2.26) der nichtlinearen Optik sind die Informationen über die linearen dispersiven und absorptiven Eigenschaften des Mediums in $\varepsilon_M(\omega)$ enthalten. In dem hier betrachteten Fall umfasst das neben den genannten Größen in Quecksilber auch den Einfluss der Hohlfasers, was in $\gamma = \beta + i\frac{\alpha}{2}$ in Form von Faserdispersion und -verlusten beinhaltet ist.

Im nächsten Schritt wird die nichtlineare Polarisation (2.27) eingesetzt und die Ableitung nach der longitudinalen Komponente ausgeführt. Dabei wird erneut die Näherung langsam veränderlicher Amplituden angenommen. Terme in höheren Ordnungen von $\mathcal{O}(u_\mu^{nm}/a)$ und $\mathcal{O}(\alpha_\mu^{nm}/2)$ sind klein gegenüber γ_{nm}^2 und werden vernachlässigt. Man erhält die gekoppelten Amplitudengleichungen

$$\frac{\partial}{\partial z} A_4(z) + \frac{\alpha_4}{2} A_4(z) = i \frac{6}{8} \frac{\omega_4^2}{\beta_4 c^2} N \chi_a^{(3)}(\omega_4) F A_1(z) A_2(z) A_3(z) e^{i\Delta\beta z}$$

$$\text{mit } F = \frac{\int_0^{2\pi} \int_0^a f_1(r) f_2(r) f_3(r) f_4(r) r \, dr d\theta}{\int_0^{2\pi} \int_0^a f_4^2(r) r \, dr d\theta}, \quad (2.33a)$$

und analog für die fundamentalen Felder

$$\frac{\partial}{\partial z} A_j(z) + \frac{\alpha_j}{2} A_j(z) = 0. \quad (2.33b)$$

Hierbei bezeichnet

$$\Delta\beta = \sum_{j=1}^3 \beta_j - \beta_4, \quad (2.34)$$

die Phasenfehlanpassung und das Modenintegral F quantifiziert den Überlapp der am Mischprozess beteiligten Strahlen. Letzteres stammt aus der Multiplikation von Gleichung (2.32) mit $f_4(r)$ und der Integration über die Querschnittsfläche des Faserkerns.

Die Amplitudengleichungen (2.33b) für die einlaufenden Strahlen sind mit den Randbedingungen $A_j(0) = A_j^0$ einfach integrierbar. Ihre Lösungen

$$A_j(z) = A_j^0 e^{-\frac{1}{2}\alpha_j z}, \quad (2.35)$$

beschreiben den exponentiellen Abfall der geführten Felder, entsprechend der zugrunde liegenden Fasermode. Mit diesen kann jetzt Gleichung (2.33a) mit der Randbedingung $A_4(0) = 0$ gelöst werden. Die analytische Lösung der Differentialgleichung wurde mit einem Computeralgebrasystem zur symbolischen Verarbeitung von Gleichungen⁴ berechnet und lautet

$$A_4(z) = \frac{3}{4} N \chi_a^{(3)}(\omega_4) F \frac{\omega_4^2}{c^2 \beta_4} A_0^1 A_0^2 A_0^3 \frac{1 - e^{\frac{1}{2}\Delta\alpha z} e^{-i\Delta\beta z}}{\Delta\beta + i\frac{\Delta\alpha}{2}} e^{-\frac{1}{2}\sum_{j=1}^3 \alpha_j z} e^{i\Delta\beta z}, \quad (2.36)$$

mit der Definition $\Delta\alpha = \sum_{j=1}^3 \alpha_j - \alpha_4$. Im nächsten Schritt soll der erarbeitete Ausdruck für die komplexen Amplituden A_μ mit den physikalischen Größen Intensität beziehungsweise Leistung in Verbindung gebracht werden. Die Intensität der nach Gleichung (2.29) definierten elektrischen Felder in einem Medium mit

⁴Wolfram *Mathematica*

Brechungsindex n lautet

$$\begin{aligned} I_\mu(z, r, \theta) &= \frac{1}{2} n(\lambda_\mu) \varepsilon_0 c |E_\mu(z, r)|^2 \\ &= \frac{1}{2} n(\lambda_\mu) \varepsilon_0 c |A_\mu(z) f_\mu(r)|^2 . \end{aligned} \quad (2.37)$$

Die Leistung als Integral über die Querschnittsfläche A des Faserkernes ergibt sich somit zu

$$\begin{aligned} P_\mu(z) &= \iint_A I_\mu(z, r, \theta) dA \\ &= \frac{1}{2} n(\lambda_\mu) \varepsilon_0 c |A_\mu(z)|^2 \int_0^{2\pi} \int_0^a f_\mu^2(r) r dr d\theta . \end{aligned} \quad (2.38)$$

Die Leistungen P_j der Fundamentalmoden, sowie die Leistung P_4 der erzeugten Strahlung bei der Summenfrequenz lassen sich damit formulieren:

$$\begin{aligned} P_j(z) &= \frac{1}{2} n(\lambda_j) \varepsilon_0 c \left| A_j^0 e^{-\frac{\alpha_j}{2} z} \right|^2 \iint_A f_j^2 dA \\ &\equiv P_j^0 e^{-\alpha_j z} , \end{aligned} \quad (2.39a)$$

und

$$\begin{aligned} P_4(z) &= \left(\frac{3}{2} \frac{\omega_4^2}{c^3 \varepsilon_0 \beta_4} N |\chi_a^{(3)}(\omega_4)| G \right)^2 z^2 \frac{n(\lambda_4) P_1^0 P_2^0 P_3^0}{n(\lambda_1) n(\lambda_2) n(\lambda_3)} \kappa \\ &\text{mit} \\ \kappa &= \frac{e^{-\sum_{j=1}^3 \alpha_j z} + e^{-\alpha_4 z} - 2 \cos(\Delta \beta z) e^{-\frac{1}{2} \sum_{\mu=1}^4 \alpha_\mu z}}{z^2 \left(\Delta \beta^2 + \frac{\Delta \alpha^2}{4} \right)} , \\ G &= \frac{\iint_A f_1 f_2 f_3 f_4 dA}{\sqrt{\iint_A f_1^2 dA \iint_A f_2^2 dA \iint_A f_3^2 dA \iint_A f_4^2 dA}} . \end{aligned} \quad (2.39b)$$

Im Folgenden werden die einzelnen Terme von Gleichung (2.39b) und ihr Einfluss auf den nichtlinearen Mischprozess diskutiert:

Die VUV Leistung ist proportional zum Betragsquadrat der nichtlinearen Suszeptibilität. Diese hängt von den Eigenschaften des nichtlinearen Mediums ab und kann durch die Ausnutzung von Resonanzen erhöht werden (vergleiche Kapitel 2.1.2). Der Modenüberlapp G quantifiziert die Überlagerung der beteiligten Hohlfasermode und beinhaltet darüber hinaus den Einfluss der Fokussierung. Die Leistung steigt quadratisch mit der Faserlänge z an und hängt linear von jeder der drei eingestrahlten Leistungen ab. In dem Phasenanpassungsfaktor κ ist neben der exponentiellen Abschwächung aller beteiligter Felder die Phasenanpassungsbedingung enthalten. Diese quantifiziert, ob sich die über die Länge der Faser erzeugten Photonen phasenkorrekt, konstruktiv addieren. Für quasi-ebene

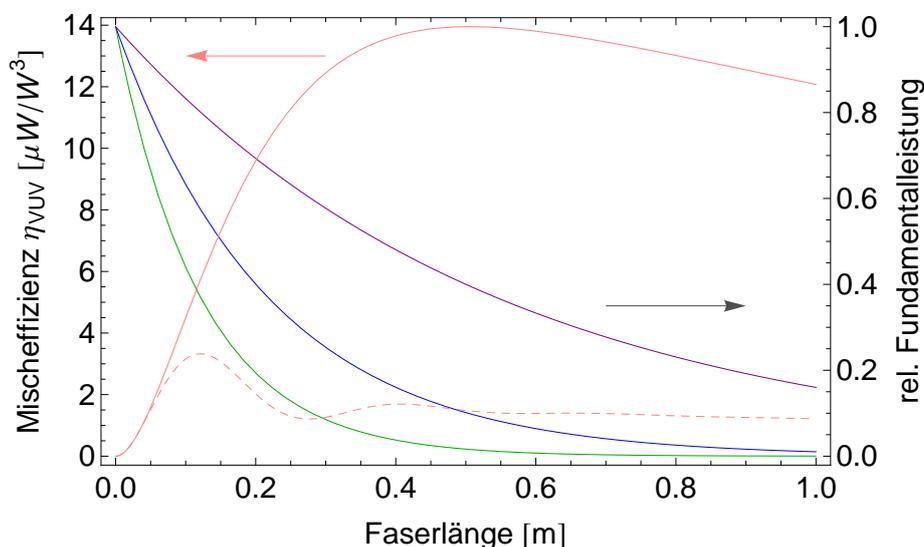


Abbildung 2.11: Mischeffizienz entlang der Faser. Leistung der Fundamentalstrahlen (grün, blau, violett) als Funktion der Propagationslänge in einer Faser mit $a = 25 \mu\text{m}$. Die Effizienz des VWM-Prozesses (pink) für perfekte Phasenanpassung (durchgezogen) und Fehlanspassung (gestrichelt), wurde für $\Delta_{UV} = -50 \text{ GHz}$ berechnet.

Wellen ist Phasenanpassung bei $\Delta\beta = 0$ gegeben. Dies wird ersichtlich, wenn man den Term κ im Grenzfall vernachlässigbarer Verluste $\alpha_\mu \rightarrow 0$ betrachtet, für welchen er in die Funktion $\text{sinc}^2((\Delta\beta z)/2)$ übergeht. Diese ist aus der Theorie des Vierwellenmischens mit ebenen Wellen bekannt [71] und hat ihr Maximum bei $\Delta\beta = 0$.

Für typische experimentelle Parameter sind die Verluste jedoch nicht vernachlässigbar und die in κ befindlichen Exponentialterme haben einen deutlichen Einfluss auf die maximal erzielbare Leistung: Die berechnete, auf die Eingangsleistungen normierte Mischeffizienz η_{VUV} für die Erzeugung von Lyman- α Strahlung in einer Hohlfaser mit Kernradius $a = 25 \mu\text{m}$ ist als Funktion der Faserlänge in Abbildung 2.11 dargestellt. Es sind Kurven für zwei unterschiedliche Phasenanpassungstemperaturen gezeigt. Ebenfalls im Bild ist der Verlauf der relativen Fundamentalleistungen aufgetragen. Die UV Verstimmung beträgt $\Delta_{UV} = -50 \text{ GHz}$, und für alle Strahlen wurde die EH_{11} -Grundmode angenommen. In grün, blau und violett dargestellt, fallen die entsprechenden Leistungen der Fundamentalen, bedingt durch die Leitungsverluste in der Faser exponentiell mit der Länge ab. Dabei erfährt der grüne Strahl wegen $\alpha \propto \lambda^2/a^3$ die stärkste Abschwächung. Die Mischeffizienz bei perfekter Phasenanpassung $\Delta\beta = 0$ (pinkfarbene durchgezogene

ne Linie) durchläuft nach einem starken Anstieg ein Maximum bei $L \approx 0,5$ m und fällt für größere Längen langsam ab. Dieser Abfall entspricht der Schwächung der erzeugten Strahlung auf Grund der Propagationsverluste, welche offensichtlich wird, sobald eine der Fundamenteleistungen soweit abgenommen hat, dass keine nichtlineare Polarisierung mehr im Medium erzeugt wird. Dies beschränkt bei gegebenem Kernradius die nutzbare Länge der Faser. Die Propagationsverluste führen darüber hinaus zu einem interessanten Verhalten bei Phasenfehlanpassung (gestrichelte Kurve in Abbildung 2.11). Das typische oszillatorische Verhalten, welches auf die destruktive Interferenz nicht phasenkorrekt erzeugter Photonen auf der Länge des nichtlinearen Mediums beruht, ist hier gedämpft. Da weiter hinten in der Faser stets weniger Photonen erzeugt werden, als im vorangegangenen Abschnitt, ist die Auslöschung unvollständig, und die Lichtausbeute im VUV geht trotz Fehlanpassung nicht auf Null zurück.

2.3.3 Effektive Länge und Kernradius

Intuitiv würde man für eine hohe nichtlineare Mischeffizienz eine starke Fokussierung (kleiner Innenradius a) und eine lange Wechselwirkungszone (große Fasernlänge L) annehmen. Üblicherweise wird in der Literatur für nichtlineare Prozesse dritter Ordnung in gasgefüllten Hohlfasern ein Verstärkungsfaktor $(L/b)^2$ gegenüber dem Regime stark fokussierter Gaußstrahlen angegeben [61,62,64], wobei $b \propto a^2$ den konfokalen Parameter bezeichnet.

Dies berücksichtigt jedoch zumeist nicht, dass die effektiv nutzbare Länge der Faser, neben technischen Aspekten, fundamental durch die Propagationsverluste der Strahlen im Wellenleiter limitiert ist. Dies ist bereits in Abbildung 2.11 qualitativ zu erkennen. Das Maximum der erzeugten Leistung erhält man für perfekte Phasenanpassung $\Delta\beta = 0$ als Nullstelle der Ableitung von Gleichung (2.39b) nach der Länge. Die optimale Länge lautet

$$L_{\text{opt}} = \frac{2 \ln \left(\frac{\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3}{\alpha_4} \right)}{\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3 - \alpha_4}, \quad (2.40)$$

und ist ausschließlich eine Funktion der Verlustkoeffizienten. Infolgedessen reduziert sich $L_{\text{opt}} \propto a^3$ signifikant mit dem Faserradius.

Neben der effektiven Länge hat der Faserinnenradius a auch Einfluss auf andere Aspekte der Konversionseffizienz des nichtlinearen Prozesses. Es werden daher im Folgenden jene Terme in (2.39b) erörtert, die eine direkte oder indirekte Abhängigkeit vom Faserkernradius a besitzen, wieder für den Fall $\Delta\beta = 0$. Die Herleitung der a -Abhängigkeit der einzelnen Terme findet sich in Anhang C.1.

$$P_4(L_{\text{opt}}) \propto \underbrace{\beta_4^{-2}}_{\approx \text{konst.}} \times \underbrace{N^2}_{\propto a^{-4}} \times \underbrace{G^2}_{\propto a^{-4}} \times \underbrace{L_{\text{opt}}^2}_{\propto a^6}. \quad (2.41)$$

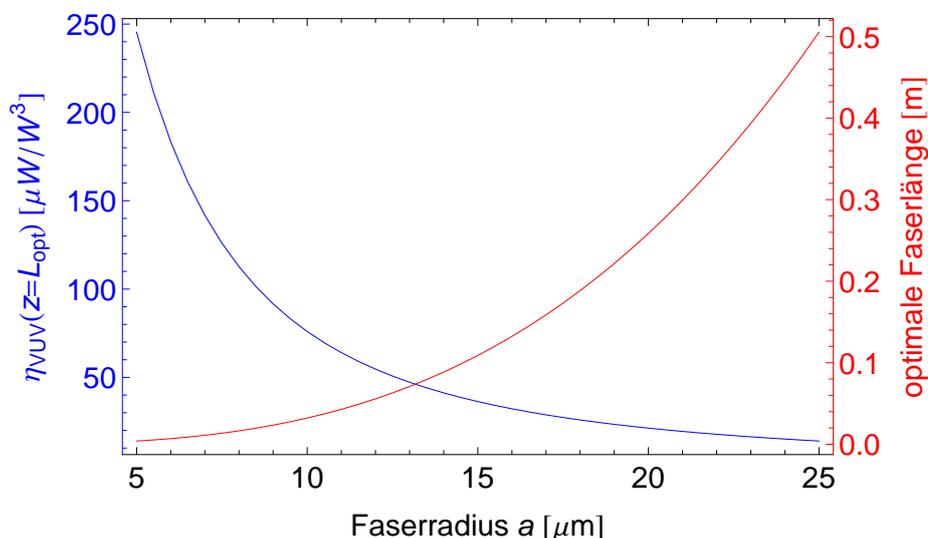


Abbildung 2.12: Einfluss des Faserradius auf die Mischeffizienz. Die maximale berechnete Mischeffizienz (blau) bei $\Delta_{\text{UV}} = -50$ GHz und die zugehörige optimale Länge (rot) als Funktion des Faserinnenradius.

Der Term N^2 stammt dabei aus der nichtlinearen Suszeptibilität und wird nur indirekt durch den Faserradius beeinflusst: Während die Teilchenzahldichte selbst unabhängig von a ist, muss zur Phasenanpassung die Dichte der durch a veränderlichen Faserdispersion angepasst werden. Insgesamt skaliert P_4 mit a^{-2} . Obwohl die Länge der Faser sinkt, versprechen Wellenleiter mit kleinen Querschnitten eine höhere Vierwellenmischeffizienz. Abbildung 2.12 zeigt für verschiedene Faserradien die, nach Gleichung (2.39b) berechneten, Mischeffizienzen (blaue Kurve) bei der optimalen Faserlänge (rote Kurve). Die Verstimmung zum 6^3P_1 Niveau wurde dabei groß genug gewählt, so dass UV Absorption vernachlässigbar ist. Unberücksichtigt in dieser Rechnung ist der mit kleinerem Faserradius zunehmende Einfluss von Wandstoß- und Durchflugzeitverbreiterung, welcher die Konversion gegebenenfalls limitieren kann. Obwohl kleinere Radien zudem höhere Phasenanpassungstemperaturen bedingen, liegen die Faserverbreiterungen für $a = 5 \mu\text{m}$ mit $\Delta_{\text{Wand}} = 38$ MHz und $\Delta_{\text{DFZ}} = 22$ MHz noch eine Größenordnung unter der berücksichtigten Druckverbreiterung des Zwei-Photonen Niveaus. Es ist also davon auszugehen, dass in dem in Abbildung 2.12 dargestellten Bereich noch keine wesentliche Limitierung zu erwarten ist.

Aus technischen, wie experimentellen Gründen werden in dieser Arbeit Hohlfasern mit einem Innenradius von $a = 25 \mu\text{m}$ und typischerweise $L = 20$ cm Länge verwendet. Neben der eingeschränkten kommerziellen Verfügbarkeit von Hohlfa-

sern mit kleineren Kerndurchmessern, vereinfacht ein größerer Radius das Einbringen von Quecksilber in den Kern, und die Längenskala auf der die Prozesse stattfinden wird unkritischer. Die Wahl einer kürzeren Faser (verglichen mit der optimalen Länge) vereinfacht das krümmungsfreie Haltern innerhalb der Apparatur zur Vermeidung von Biegungsverlusten. Gleiches gilt für die Ausbildung einer homogenen Dichte über die Länge der Faser. Da die Transmission des Strahls mit den höchsten Verlusten (grün) für L_{opt} nur $\sim 1,6\%$ beträgt, ist auch im Hinblick auf die Justage der Fundamentalstrahlen eine kürzere Faser praktikabel.

2.3.4 Phasenanpassung und Mischeffizienz

Eine detaillierte theoretische Studie verschiedener Szenarien bezüglich Faserradius, -länge und den zugehörigen Phasenanpassungsbedingungen in Abhängigkeit der Verstimmung zum $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Übergang findet sich in [99]. Hier wird die Diskussion auf die im Experiment verwendete Hohlleiter mit $25\ \mu\text{m}$ Kernradius und $20\ \text{cm}$ Länge beschränkt. Für alle beteiligten Fasermode wird die Grundmode angenommen, sofern nicht explizit anders vermerkt.

Der UV Verstimmung kommt bei der Phasenanpassung eine besondere Rolle zu. Der Fundamentalstrahl bei $254\ \text{nm}$ kann über den kompletten Bereich der Ein-Photon Resonanz im Quecksilber verstimmt werden und erfährt deren dispersiven Einfluss deutlich. Alle anderen Strahlen sind mehrere THz von Ein-Photon Resonanzen entfernt. Ihre Dispersionskurven verlaufen flach und verändern sich kaum mit der Verstimmung oder Dichte. Folglich dominiert die UV Verstimmung die Phasenanpassung. Abbildung 2.13 veranschaulicht diesen Sachverhalt. Für eine Hg-Dampftemperatur von $50\ ^\circ\text{C}$ (blau) und $75\ ^\circ\text{C}$ (rot) sind die Phasenkonstante β_{UV} des UV Strahls (durchgezogene Linie), sowie die Differenz $\beta_{\text{VUV}} - \beta_{\text{grün}} - \beta_{\text{blau}}$ (gestrichelte Linie) als Funktion der UV Verstimmung zur $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Resonanz des ^{202}Hg Isotops aufgetragen. Die Frequenz des blauen Strahls wird entsprechend der UV Verstimmung angepasst, um die Zwei-Photonen Resonanz zu gewährleisten. Man erkennt deutlich den Einfluss der einzelnen Quecksilberisotope auf den Brechungsindex des UV Strahls. Mit erhöhter Temperatur werden die Strukturen wegen der steigenden Dichte ausgeprägter und die, durch die Dopplerverschiebung dominierte Breite nimmt zu. Dem gegenüber verläuft die Differenz der anderen Phasenkonstanten flach und verändert sich kaum mit der Verstimmung. Das Verstimmen der blauen Wellenlänge hat hier den größten Einfluss und bedingt die leichte Steigung der Geraden. Auch die Änderung mit der Temperatur ist vernachlässigbar und mit $4,8\ \text{m}^{-1}$ auf der Skala von Abbildung 2.13 nicht zu erkennen. Die Phasenanpassungsbedingung $\Delta\beta = 0$ ist an den Schnittpunkten beider Kurven zu einer gegebenen Temperatur erfüllt. Folglich ist Phasenanpassung nicht für jede Verstimmung möglich, da zum Beispiel im Bereich der nach unten verlaufenden Spitzen für keine Temperatur ein Kreuzungspunkt erreicht wird.

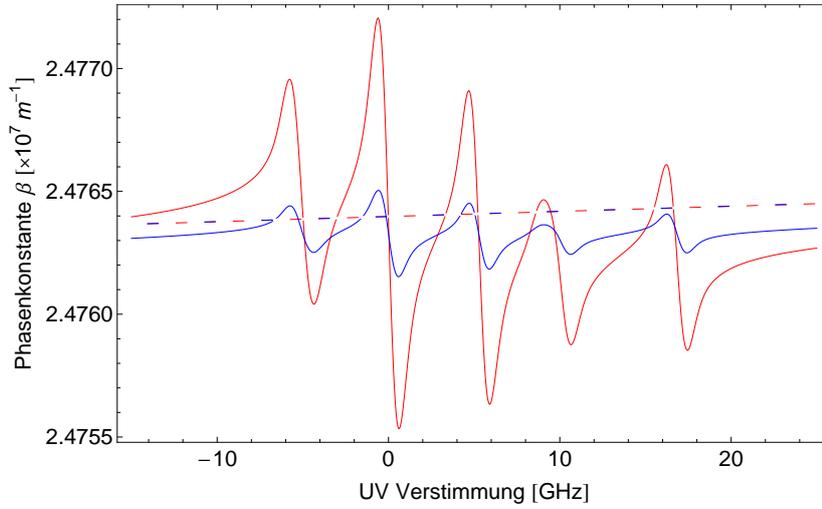


Abbildung 2.13: Einfluss der $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Resonanz auf die Phasenanpassung. Die Phasenkonstante β_{UV} (durchgezogene Linien) und $\beta_{VUV} - \beta_{grün} - \beta_{blau}$ (gestrichelte Linien) sind für zwei Temperaturen (blau: $T = 50^\circ C$, rot: $T = 75^\circ C$) über der UV Verstimmung zur ^{202}Hg Ein-Photon Resonanz aufgetragen.

Die Bereiche möglicher Phasenanpassung in Abhängigkeit von der Verstimmung zum 6^3P_1 Niveau sind in Abbildung 2.14 aufgetragen. Die Phasenanpassungstemperaturen, welche $\Delta\beta = 0$ für eine gegebene UV Verstimmung erfüllen sind in a) gezeigt. Man erkennt fünf Bereiche in denen Phasenanpassung prinzipiell möglich ist. Einen breiten, rotverstimmten Bereich, jenseits der Resonanzen aller Isotope, und vier schmale Bereiche zwischen den Resonanzen. Blauverstimmt ist keine Anpassung möglich. Die generelle Form dieser Kurve lässt sich mit dem Verhalten von β_{UV} erklären (vergleiche Abbildung 2.13). Vernachlässigt man die Abhängigkeit der Resonanzbreiten von der Temperatur, skaliert die Dispersionskurve in erster Näherung mit der Atomdichte und somit annähernd exponentiell mit der Temperatur. In Bereichen geringer Dispersion muss die Temperatur entsprechend hoch sein, um die Phase der anderen Wellen auszugleichen. Dies führt zu den markanten Spitzen am Rande der Anpassungsbereiche.

Die auf die Eingangsleistungen normierte Mischeffizienz η_{VUV} des Vierwellenmischprozesses bei den entsprechenden Phasenanpassungstemperaturen ist in Abbildung 2.14 b) über der UV Verstimmung aufgetragen. Die in den Berechnungen berücksichtigte UV Absorption bedingt, dass die Effizienz in den Randbereichen möglicher Phasenanpassung stark unterdrückt wird. Im rotverstimmten Bereich erkennt man ein Plateau mit einem nur schwach ausgeprägten Maximum hin zu kleinen Verstimmungen. Obwohl die nichtlineare Suszeptibilität in der Nähe von Resonanzen stark ansteigt, wird dieser Zuwachs durch die niedrigeren Phasenanpassungstemperaturen und der damit verbundenen geringeren Dichte

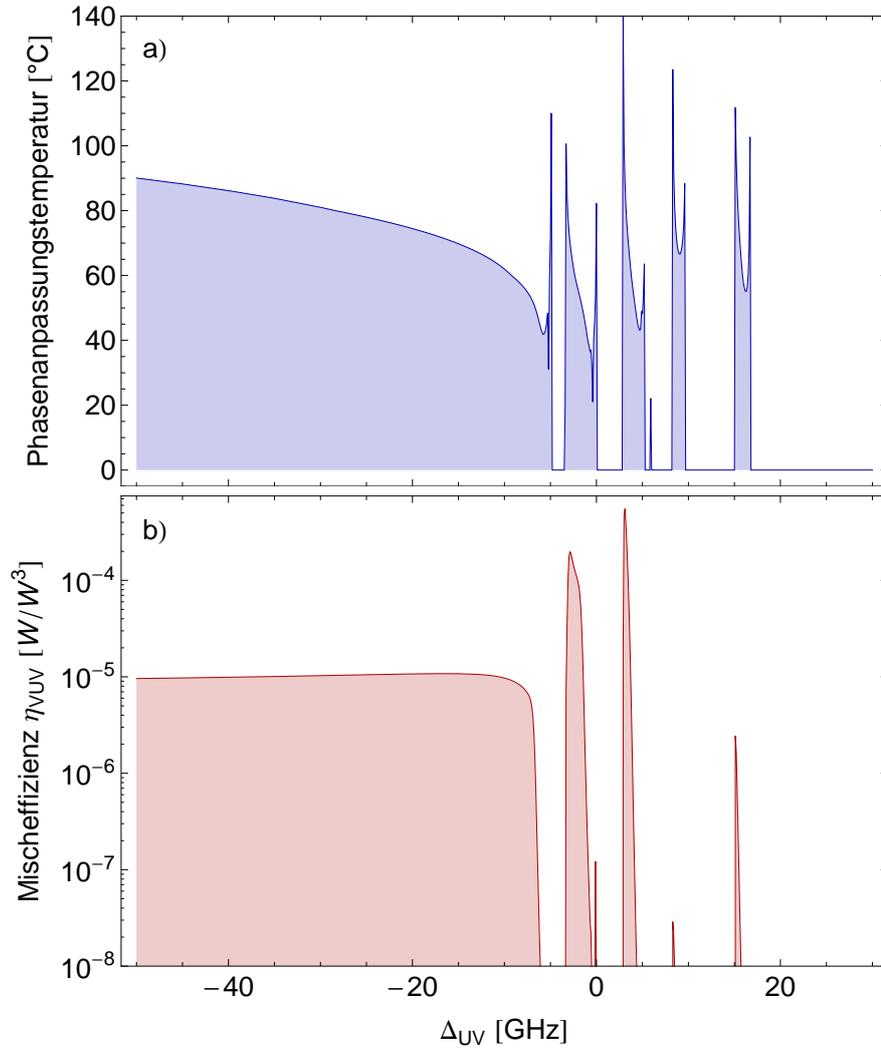


Abbildung 2.14: Phasenanpassung im Bereich der $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Resonanz. a) Temperaturen optimaler Phasenanpassung aufgetragen über der Verstimmung zur Ein-Photon Resonanz des ^{202}Hg -Isotops. b) Zugehörige nichtlineare Mischeffizienzen bei den entsprechenden optimalen Temperaturen.

kompensiert. Experimentell wurde dieses Verhalten bei der VUV Erzeugung mit fokussierten Gaußstrahlen bestätigt [53,81].

Zwischen den Resonanzen erhält man ein durch mehrere Faktoren beeinflusstes Bild. Zum einen hat $\chi^{(3)}$ in diesem Bereich einen stark strukturierten Verlauf (vergleiche Abschnitt 2.1.2). Zum anderen ist die UV Absorption hier sehr ausgeprägt. Bei Resonanzen zwischen denen die Dispersionskurve steil genug ist um Phasenanpassung bei niedrigen Temperaturen zu erlauben, erhält man sehr hohe Mischeffizienzen. Dies ist für die Bereiche um $-1,8$ GHz und $+3,5$ GHz gegeben. Bei höheren Temperaturen unterdrückt die Absorption in den dopplerverbreiterten Resonanzflügeln den nichtlinearen Prozess. Selbst in den Bereichen, in denen effizientes Mischen möglich ist, ist die effektive Länge durch die Absorptionsverluste im UV und nicht mehr durch die Propagationsverluste dominiert [99]. Der Einfluss der Population des 7^1S_0 -Niveaus durch Zwei-Photonen Absorption bei derart geringen Verstimmungen ist in den Rechnungen nicht berücksichtigt. Es gibt aber bereits experimentelle Hinweise darauf, dass dies zu einer Sättigung der VUV Leistung beim Mischen zwischen den Resonanzen führen kann [100].

Die maximale, experimentell gemessene Mischeffizienz für die Erzeugung von kohärenter, kontinuierlicher Lyman- α Strahlung mit fokussierten Strahlen beträgt $\sim 7 \times 10^{-8} \text{ W/W}^3$ [52]. Die UV Verstimmung betrug hierbei -50 GHz bei einer Phasenanpassungstemperatur von 110°C und einem mittleren konfokalen Parameter $b = 1,6$ mm. Vergleicht man dies mit Abbildung 2.14, ist, abhängig von der UV Verstimmung, eine theoretische Steigerung um $10^2 - 10^3$ bei deutlich niedrigeren Phasenanpassungstemperaturen und größerem Fokus möglich. Die Temperaturakzeptanz des Mischprozesses in der Faser ist in Abbildung 2.15 wiedergegeben. Das zentrale Maximum hat eine volle Halbwertsbreite von etwa $0,7^\circ\text{C}$. Grund für dieses schmale Temperaturintervall gegenüber der Verwendung fokussierter Strahlen (etwa 25°C [52]) ist die größere Wechselwirkungslänge, über die die Phasenkohärenz erhalten bleiben muss. Ein Maß für die Längenskala, auf welcher die Dephasierung stattfindet ist die Kohärenzlänge $L_{\text{koh}} = \pi/|\Delta\beta|$. Für eine Temperaturdifferenz von 1°C zur optimalen Phasenanpassungstemperatur beläuft sie sich im in Abbildung 2.15 gezeigten Fall auf etwa $7,5$ cm.

2.3.5 Erweiterungen

Im vorliegenden Abschnitt sollen einige noch nicht angesprochene Aspekte der Summenfrequenzmischung in Hohlfasern und mögliche Erweiterungen der Theorie diskutiert werden. Diese finden im Rahmen dieser Arbeit noch keine Anwendung, können aber für künftige Experimente von Bedeutung sein.

Einfluss höherer Moden

Der in Kapitel 2.2 hergeleitete Ausdruck (2.39) für die Leistung der fundamentalen und erzeugten Wellen unterstützt auch die Mischung von Strahlen mit un-

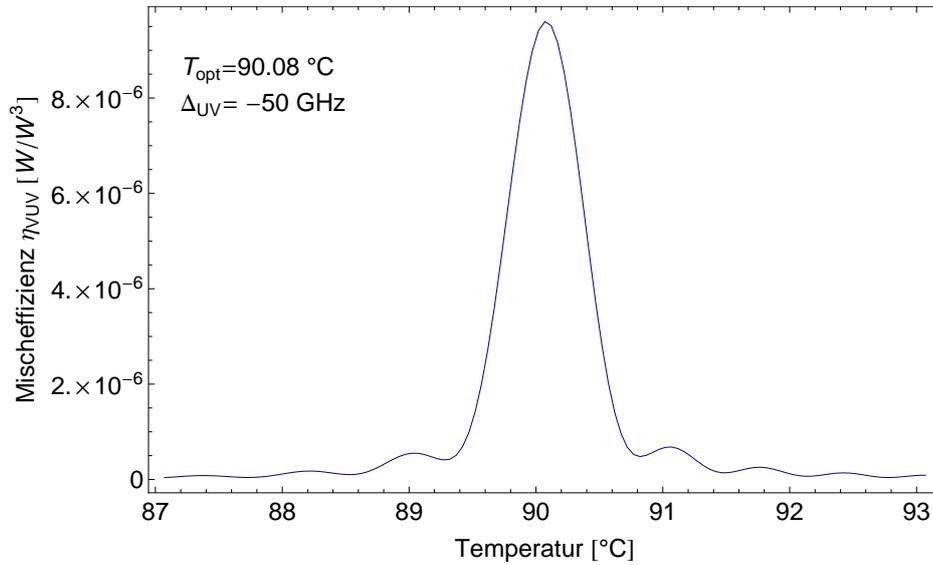


Abbildung 2.15: Temperaturphasenanpassung. Mischeffizienz in einer 20 cm langen Faser bei einer UV Verstimmung von -50 GHz als Funktion der Phasenanstimmungstemperatur.

terschiedlichen transversalen Modenprofilen. Auch ohne eine vollständige Analyse verschiedener Szenarien können einige allgemeine Aussagen getroffen werden, wenn man für einen der beteiligten Strahlen eine höhere EH_{1m} Mode annimmt. Konzeptionell reduzieren sich dabei der Modenüberlapp G und wegen $\alpha_{1m} \propto u_{1m}^2$ und $u_{1m} < u_{1(m+1)}$, die optimale Faserlänge. Darüberhinaus führt die geänderte Faserdispersion zu anderen Phasenanstimmungstemperaturen, was in Abbildung 2.16 dargestellt ist. Der schwarz gestrichelte Graph zeigt noch einmal die Phasenanstimmungskurve, für den Fall, dass alle Strahlen in der Grundmode geführt werden. Für einen Strahl in der EH_{12} Mode (entsprechend durch die Farbe angedeutet) ändert sich die optimale Phasenanstimmungstemperatur deutlich. Für die Fundamentalen wird sie zu höheren Temperaturen verschoben. Da der Anteil der Faserdispersion in erster Ordnung linear in der Wellenlänge ist (vergleiche Gleichung (C.1)), ist der Einfluss des grünen Strahls am stärksten. Für den VUV Strahl führt die Verschiebung wegen des anderen Vorzeichens in der Phasenfehlanstimmung zu kleineren Temperaturen. Bei geeigneter Kombination aus Modenüberlapp und erhöhter Quecksilberdichte kann dies sogar zu höheren Mischeffizienzen führen, wie das Beispiel mit $m_{\text{UV}} = m_{\text{blau}} = 2$ und $m_{\text{grün}} = m_{\text{VUV}} = 1$ zeigt (rot gestrichelte Kurve).

Inhomogene Dichteverteilung

Bisher wurde angenommen, dass die Dichte innerhalb der Faser einer homogenen Verteilung entspricht, so dass an jedem Ort in der Faser die gleiche Pha-

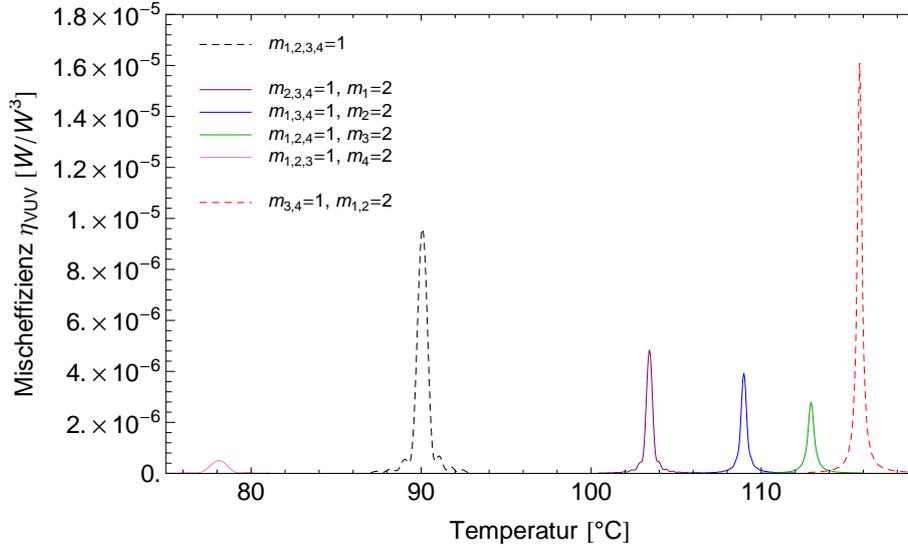


Abbildung 2.16: Temperaturphasenanpassung bei höheren transversalen Moden. Mischeffizienz mit unterschiedlichen EH_{1m} Moden in einer 20 cm langen Faser bei einer UV Verstimmung von -50 GHz als Funktion der Phasenanstimmungstemperatur. Die Modenzahl m_i der Strahlen ist in der Legende wiedergegeben.

sen(Fehl)anpassung herrscht. Da dies experimentell nie perfekt zu realisieren ist, soll abgeschätzt werden, wie sich eine inhomogene Dichteverteilung auf das Summenfrequenzmischen auswirkt. Erlaubt man, dass die Dichte eine Funktion des Ortes wird $N \rightarrow N(z)$, werden auch die Suszeptibilitäten $\chi^{(1,3)} \rightarrow \chi^{(1,3)}(z)$ und die Propagationskonstanten $\gamma \rightarrow \gamma(z)$ ortsabhängig. Dies führt, ausgehend von der Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik, zu zusätzlichen Termen bei der Ableitung nach der z -Komponente. Unter Vernachlässigung von Termen der Form $(\frac{\partial^2}{\partial z^2} \beta_\mu(z))$ und $(\frac{\partial}{\partial z} \beta_\mu(z))^2$ erhält man die gekoppelten Amplitudengleichungen

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial z} A_4(z) + \frac{\alpha_4(z) \beta_4(z) + 2 \frac{\partial}{\partial z} \beta_4(z) (1 + iz \beta_4(z))}{2(\beta_4(z) + z \frac{\partial}{\partial z} \beta_4(z))} A_4(z) \\ = \frac{6}{8} \frac{i \omega_4^2}{c^2 (\beta_4(z) + z \frac{\partial}{\partial z} \beta_4(z))} \chi_{\omega_4}^{(3)}(z) F A_1(z) A_2(z) A_3(z) e^{i \Delta \beta(z) z}, \end{aligned} \quad (2.42a)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} A_j(z) + \frac{\alpha_j(z) \beta_j(z) + 2 \frac{\partial}{\partial z} \beta_j(z) (1 + iz \beta_j(z))}{2(\beta_j(z) + z \frac{\partial}{\partial z} \beta_j(z))} A_j(z) = 0, \quad (2.42b)$$

mit dem Modenintegral F wie in Gleichung (2.33a). Für den Fall konstanter Dichte $N(z) = N$ reduzieren sich die Gleichungen auf die analytisch lösbaren Ausdrücke (2.33). Die vorliegenden Differentialgleichungen lassen sich nur noch

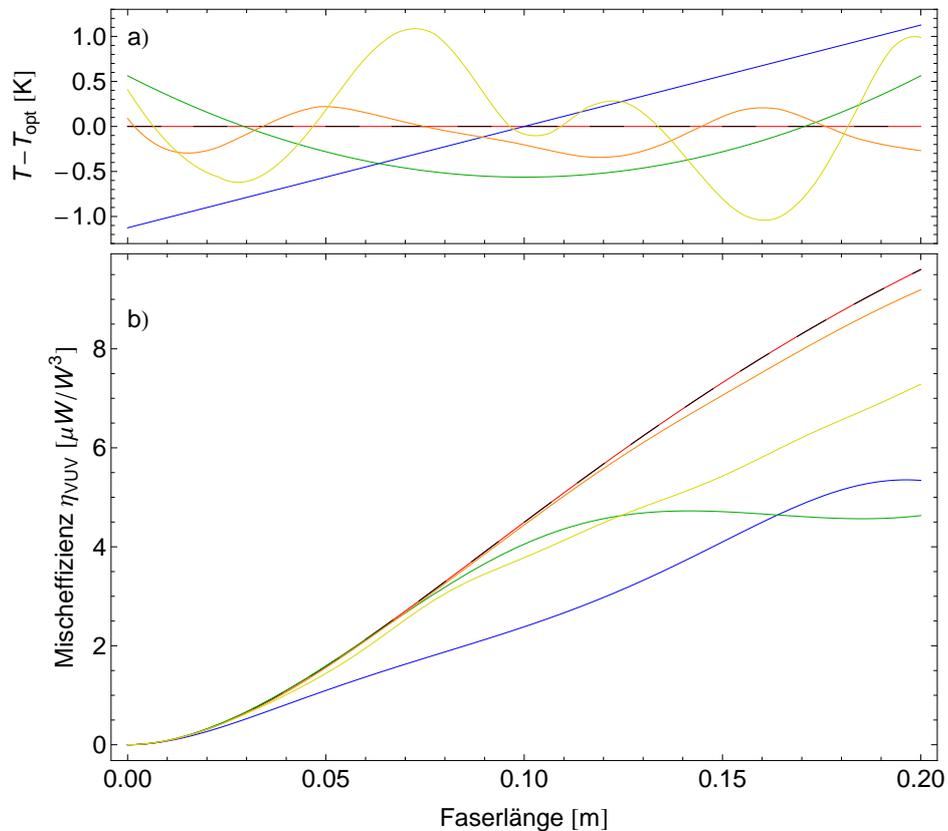


Abbildung 2.17: Vierwellenmischen mit inhomogener Dichteverteilung. a) Für die Berechnung angenommene Temperaturprofile, relativ zur optimalen Phasenanstimmungstemperatur T_{opt} . b) Mischeffizienz entlang der Faser bei einer UV Verstimmung von -50 GHz für die unterschiedlichen Temperaturprofile. Die gestrichelte schwarze Linie zeigt die analytische Lösung für konstante Dichte bei T_{opt} .

numerisch lösen. Abbildung 2.17 zeigt einige Beispiele, bei denen unterschiedliche Temperaturverteilungen entlang einer 20 cm langen Faser modelliert wurden. Die in Abbildung 2.17 a) dargestellten Temperaturverteilungen sind im Einzelnen: Konstante Dichte bei optimaler Phasenanstimmungstemperatur T_{opt} (rot/schwarz gestrichelt), linearer Anstieg (blau), parabelförmiger Verlauf (grün) und zufällige Schwankungen um T_{opt} mit einer Standardabweichung von 0,5 K (orange) beziehungsweise 1 K (gelb). Für letztere wurden entlang der Faser alle 2 cm, um T_{opt} normalverteilte, Zufallszahlen generiert. Für einen glatten Kurvenverlauf sind diese durch einen B-Spline dritten Grades parametrisiert. In Abbildung 2.17 b) sind die, mit den Temperaturprofilen assoziierten, berechneten Mischeffizienzen dargestellt. Der Verlauf der analytischen (schwarz gestrichelt) und numerischen

Lösung (rot) für homogene Dichte bei optimaler Phasenanpassung zeigen eine sehr gute Übereinstimmung. Die anderen Kurven lassen eine positive Prognose für die Mischeffizienz im Hinblick auf die experimentelle Realisierbarkeit einer homogenen Dichteverteilung zu: Für alle angenommenen Fällen liegen die Verluste gegenüber perfekter Phasenanpassung bei $\sim 50\%$ oder weniger.

Darüber hinaus bilden die Gleichungen (2.42) wegen der Ortsabhängigkeit von Propagationskonstante und nichtlinearer Suszeptibilität das mathematische Konstrukt für Quasi-Phasenanpassung in der Faser.

2.4 Licht-induzierte Drift

Neben der Anregung von elektronischen Übergängen, kann die Licht-Atom Wechselwirkung auch auf unterschiedliche Weise Einfluss auf den Bewegungszustand von Atomen haben. Während die Atome in einer ausgedehnten Dampfzelle nur für die Durchflugzeit mit dem Lichtfeld wechselwirken, bedingt der transversale Einschluss der Atome innerhalb der Faser, dass diese fortwährend der Strahlung ausgesetzt sind. Dies kann zu einer makroskopischen, Licht-induzierten Änderung des Bewegungszustandes des Atomensembles führen.

Als erstes ist hier der AC-Stark Effekt zu nennen, welcher die Grundlage für das Fangen von Neutralatomen in optischen Dipolfallen bildet [101]. Das Lichtfeld induziert in den Atomen ein Dipolmoment, welches mit dem elektrischen Feld, von welchem es erzeugt wurde, wechselwirkt. Dies führt zu einer Energieverschiebung des Grundzustandes, was als Dipolpotential V_{dip} ausgedrückt werden kann. Dieses hängt von der Polarisierbarkeit der Atome und dem Quadrat des treibenden elektrischen Feldes bei der Frequenz ω ab:

$$V_{\text{dip}}(\mathbf{r}) = - \sum_i \frac{|\mu_{gi}|^2}{2\varepsilon_0\hbar c} \left(\frac{1}{\omega_{gi} - \omega} + \frac{1}{\omega_{gi} + \omega} \right) I(\mathbf{r}). \quad (2.43)$$

Dabei wird über alle, über Dipolübergänge erreichbaren Ein-Photon Zustände i summiert. μ_{gi} bezeichnet das Übergangsmatrixelement vom Grundzustand, ω_{gi} die Frequenz des entsprechenden Niveaus. Abhängig von der Verstimmung zum betrachteten Niveau ist das Potential entweder attraktiv (rotverstimmt) oder repulsiv (blauverstimmt). Die Ortsabhängigkeit der Intensität führt zu einem Gradienten des Wechselwirkungspotentials, welcher der negativen Kraft auf das Atom entspricht. Der Effekt ist beim UV Laser wegen der Nähe zum 6^3P_1 Niveau zwei bis drei Größenordnungen ausgeprägter als bei den anderen Fundamentallasern. Für im Experiment realistische Parameter ($P_{\text{UV}} = 100 \text{ mW}$, $\Delta_{\text{UV}} = -50 \text{ GHz}$) beträgt die Energieverschiebung im Intensitätsmaximum für das ^{202}Hg Isotop etwa -21 MHz , beziehungsweise 1 mK , ausgedrückt als Falltiefe. Auch für kleinere Verstimmungen bleibt die Potentialtiefe im 10 mK -Bereich. Für thermische Ensembles wie sie im Experiment vorliegen, kann der Einfluss auf den Bewe-

gungszustand der Atome also vernachlässigt werden. Die Frequenzverschiebung dagegen kann in der Nähe des 6^3P_1 Zustandes durchaus im Bereich von mehreren 100 MHz liegen, was einen signifikanten Einfluss auf die Phasenanpassung zwischen den Resonanzen haben kann.

Eine ausführliche theoretische Studie, welche die auf der resonanten Absorption und Streuung von Licht basierenden Bewegungsänderung von Atomen behandelt, findet sich in [102]. Dabei wird zwischen zwei konzeptionell unterschiedlichen Phänomenen unterschieden, die mechanischen Einfluss auf die Atome nehmen können:

Bei der resonanten Lichtkraft (auch Strahlungsdruck genannt) wird bei Absorption und Reemission eines Photons mit dem Wellenvektor \mathbf{k} jeweils ein Impuls vom Betrag $\hbar|\mathbf{k}|$ übertragen. Während der mittlere Impulsübertrag bei der spontanen Emission auf Grund der isotropen Abstrahlcharakteristik Null ist, führt der durch die Absorption aufgenommene, gerichtete Impuls zu einem nichtverschwindenden atomaren Rückstoß. Da der Photonenimpuls nur einem Bruchteil atomarer Impulse entspricht, manifestiert sich der Einfluss der resonanten Lichtkraft nur in dünnen Gasen, in welchen Wand- und interatomare Stöße vernachlässigbar sind [102]. Dies ist in dem hier beschriebenen Experiment nicht gegeben.

Der zweite Mechanismus ist die sogenannte Licht-induzierte Drift (LID), welche auf einer asymmetrischen Anregung eines dopplerverbreiterten Mediums beruht. LID wurde 1979 theoretisch vorhergesagt [103] und liefert zum Beispiel eine mögliche Erklärung für die veränderte Isotopenhäufigkeiten von unter anderem Quecksilber in CP-Sternen⁵ [104,105].

Der Funktionsmechanismus wird anhand von Abbildung 2.18 verdeutlicht: Ein dopplerverbreitertes Medium wechselwirkt mit einem nah-resonanten Laserstrahl, dessen Frequenz ω_L gegenüber der Resonanzfrequenz ω_0 verstimmt ist (im gezeigten Beispiel rotverstimmt). Dies führt zu einer geschwindigkeitsselektiven Anregung von Atomen der Geschwindigkeitsklasse $v_L = (\omega_0 - \omega_L)/k$, wobei k den Betrag des Wellenvektors des eingestrahlten Lichtes bezeichnet. Die angeregten Atome bewegen sich mit der Geschwindigkeit v_L auf den Laserstrahl zu. Die Geschwindigkeitsverteilung des gesamten Ensembles ist sowohl vor, als auch nach der Anregung Maxwell-verteilt (bei Vernachlässigung von Strahlungsdruck), der Gesamtimpuls aller Atome ist demnach Null. Folglich besitzen die verbleibenden Grundzustandsatome wegen der Impulserhaltung einen Impuls, welcher den der angeregten Atome kompensiert. Die Ausbildung einer Drift wird typischerweise durch die Anwesenheit eines Puffergases hervorgerufen: geschwindigkeitsverändernde Stöße führen zu einer Thermalisierung der Geschwindigkeitsverteilungen von Grund- und angeregtem Zustand. Sind die entsprechenden Stoßwirkungsquerschnitte zustandsabhängig, erfahren die Atome eine unterschiedliche diffusive Reibung, und die Geschwindigkeitsverteilungen von Grundzustands- und angeregten Atomen thermalisieren unterschiedlich schnell. Dies resultiert in einer

⁵chemisch pekulär

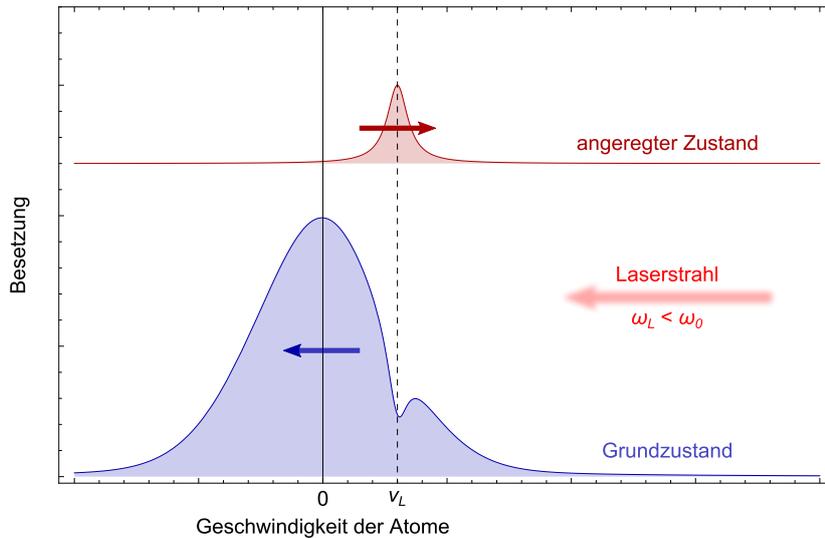


Abbildung 2.18: Funktionsprinzip von LID. Die geschwindigkeitsselektive Anregung von Atomen führt zu einer asymmetrischen Geschwindigkeitsverteilung für die Atome im Grund- und angeregten Zustand bezüglich $v = 0$. Wegen der zustandsabhängigen Stoßwirkungsquerschnitte geschwindigkeitsverändernder Stöße, sind die Thermalisierungsraten der Geschwindigkeitsverteilungen unterschiedlich. Dies führt zur Ausbildung einer Nettodrift.

Nettodrift der Atome. Der resultierende Impuls wird vom Puffergas aufgenommen, so dass Impulserhaltung für das Gesamtsystem, bestehend aus resonantem Gas und Puffergas, erfüllt ist.

In der Regel ist der für LID verantwortliche elastische Stoßwirkungsquerschnitt bei Atomen für angeregte Zustände größer. Entsprechend ist die mittlere freie Weglänge für die angeregten Atome kürzer und die Richtung der Licht-induzierten Drift ist entgegen der angeregten Geschwindigkeitsklasse. Im Beispiel der rotverstimten Anregung also in Strahlrichtung. Bei einer Anregung im blauverstimten Flügel wird die Driftrichtung entsprechend umgekehrt.

Bei optisch dichten Medien und einer vollständigen Illumination des Zellenquerschnitts mit rotverstimtem Licht, führt LID wegen der geringen Eindringtiefe zu einer semipermeablen Barriere und, bei einer geschlossenen Zelle, zu einer Konzentration der Atome am rückwärtigen Ende. Dieser auch theoretisch schon in [103] vorhergesagte Effekt wird als optischer Kolben bezeichnet, und wurde 1984 experimentell mit Natrium Atomen demonstriert [106]. Wegen der Unterschiede in den Resonanzfrequenzen kann dieser Effekt zur Isotopentrennung genutzt werden [107].

Im Gegensatz zum Strahlungsdruck werden bei LID keine Photon- sondern atomare Impulse übertragen. Entsprechend sind die Driftgeschwindigkeiten um mehrere Größenordnung höher und können im Bereich der thermischen Geschwindigkeit liegen [108].

Im vorliegenden Experiment wird kein Puffergas verwendet, womit eine der essenziellen Voraussetzungen für LID fehlt. Für den Fall dass die mittlere freie Weglänge λ größer als die radiale Abmessung der umgebenden Zelle ist (molekulare Strömung), kann LID auch in einkomponentigen Gasen auftreten [109]. Hier übernehmen geschwindigkeitsverändernde Wandstöße die Rolle des Puffergases. Dieses Phänomen wird in der Literatur mit *surface light-induced drift* (SLID) bezeichnet. Messbare Druckunterschiede in einer geschlossenen Zelle wurden in Experimenten mit Fluormethan (CH_3F) nachgewiesen. Diese skalieren mit dem Verhältnis L/a von Zellenlänge L und Radius a und stellt sich auf der Zeitskala von wenigen Sekunden ein [110].

Die mittlere freie Weglänge λ_{Hg} von Quecksilber bei $T = 100^\circ\text{C}$ beträgt $\lambda_{\text{Hg}} = 360\ \mu\text{m}$ [111] und ist damit deutlich größer als der Faserkernradius. Wegen der hohen Intensitäten auf Grund der starken Fokussierung, und einem darüber hinaus ungewöhnlich hohen Verhältnis von $L/a = 8 \times 10^3$, erfüllt die Hohlzelle die Kriterien für SLID.

Im Experiment stellt die Hohlzelle eine offene Zelle dar, welche zu beiden Seiten an ein atomares Reservoir angeschlossen ist. Der Fall von LID in offenen Zellen wurde theoretisch und experimentell in [112,113] behandelt. Die Beschreibung von Dichte- und Intensitätsverteilung entlang der Zelle erfolgt durch ein Paar nicht-linear gekoppelter partieller Differentialgleichungen. Diese sollen im Folgenden diskutiert, und auf den Fall zusätzlicher Verluste in der Faser erweitert werden.

2.4.1 LID in einer offenen Zelle

Man betrachte eine Faser der Länge L , welche zu beiden Seiten an ein Reservoir angeschlossen ist, so dass die Dichte an den Enden konstant gehalten wird. Die transversale Ausdehnung der Faser ist vernachlässigbar gegenüber ihrer Länge, so dass das Problem als eindimensional behandelt werden kann. Die zeitliche Änderung der Dichteverteilung N innerhalb der Faser entspricht nach der Kontinuitätsgleichung

$$\frac{\partial}{\partial t} N = -\frac{\partial}{\partial z} J, \quad (2.44)$$

dem negativen Gradienten des Gesamtflusses J der Atome, wobei z die Koordinate entlang der Faserachse bezeichnet. Dieser Fluss setzt sich aus zwei Beiträgen zusammen:

$$J = -D \frac{\partial}{\partial z} N + v_d N. \quad (2.45)$$

Ein diffusiver Term, hervorgerufen durch einen Dichtegradienten entlang der Zelle, sowie ein Driftterm. Dabei bezeichnet D die Diffusionskonstante der Grundzustandsatome und v_d die Driftgeschwindigkeit, welche die Atome auf Grund ihrer Wechselwirkung mit dem Lichtfeld der Intensität I erhalten. Der Driftterm kann aus der Lösung der optischen Bloch Gleichungen für ein zwei Niveausystem, unter Berücksichtigung geschwindigkeitsverändernder Stöße bestimmt werden [108]:

$$v_d N = -Dq \frac{\partial}{\partial z} I, \quad (2.46a)$$

$$\text{mit } q = -\frac{1}{D} \frac{\Gamma_a - \Gamma_g}{\Gamma_g} \frac{v_L}{\hbar \omega_L (A + \Gamma_g)}. \quad (2.46b)$$

Der Parameter q ist ein Maß für die Stärke der Licht-induzierten Bewegungsänderung. Hier bezeichnet v_L die vom Laserstrahl der Frequenz ω_L angeregte Geschwindigkeitsklasse, A ist der Einstein Koeffizient der spontanen Emission des Übergangs und $\Gamma_{g,a}$ die Rate geschwindigkeitsändernder Stöße für Grundzustands- und angeregte Atome. Der Unterschied in den Stoßraten lässt sich, für den Fall von SLID, über eine Zustandsabhängigkeit des sogenannten Akkomodationskoeffizienten α des parallelen Impulsübertrags ausdrücken. Dieser ist eine von Maxwell eingeführte empirische Größe zur Beschreibung von Stößen eines Gases mit der Zellenwand [114]. In diesem Modell können Stöße entweder spiegelnd oder diffusiv sein, wobei bei letzteren der komplette parallele Impuls an die Wand übertragen wird. Der Koeffizient α entspricht der Wahrscheinlichkeit für diffuse Stöße, womit sich $\Gamma_{g,a}$ als

$$\Gamma_i = \alpha_i \Gamma_{\text{Wand}}, \quad (2.47)$$

ausdrücken lassen, wobei Γ_{Wand} der Wandstoßrate aus Gleichung (2.6) entspricht. Der Akkomodationskoeffizient für die Wechselwirkung von Quecksilber auf Quarzoberflächen ist weder für Grund- noch angeregte Zustände bekannt. Tatsächlich stellt SLID eine experimentelle Möglichkeit zur Bestimmung von α dar [115, 116]. Es können jedoch einige Abschätzungen getroffen werden: Während $\alpha_{g,a}$ als annähernd 1 angenommen werden kann, ist die Differenz $\Delta\alpha = \alpha_a - \alpha_g$ klein. In Experimenten, in denen SLID untersucht wurde, liegt $\Delta\alpha$ im Bereich von $10^{-3} - 10^{-2}$ [117]. Unter diesen Annahmen kann Gleichung (2.46b) zu

$$q \approx -\frac{\Delta\alpha}{D} \frac{v_L}{\hbar \omega_L (A + \Gamma_{\text{Wand}})}, \quad (2.48)$$

umgeschrieben werden.

Die Änderung der Intensität als Funktion des Ortes in der Zelle wird durch eine Absorptionsgleichung der Form

$$\frac{\partial}{\partial z} I = -\sigma N I, \quad (2.49)$$

mit dem Absorptionswirkungsquerschnitt σ , beschrieben. Der Fluss in der Kapillare lautet damit

$$J = -D \frac{\partial}{\partial z} N + Dq\sigma I N, \quad (2.50)$$

wobei der erste Term den Diffusions- und der zweite den Driftanteil am Gesamtfluss darstellt. Für das konzeptionelle Verständnis ist es instruktiv, Sättigungseffekte zu vernachlässigen. Diese können jedoch einfach durch die Ersetzung von Gleichung (2.49) durch

$$\frac{\partial}{\partial z} I = \frac{-\sigma N I}{\sqrt{1 + I/I_{\text{sat}}}}, \quad (2.51)$$

eingeführt werden, wobei I_{sat} der Sättigungsintensität entspricht [108]. Durch Einsetzen der Gleichung (2.50) in die Kontinuitätsgleichung (2.44) erhält man ein System nichtlinear gekoppelter partieller Differentialgleichungen, welche die gegenseitige Wechselwirkung von Dichte N und Intensität I in der Zelle beschreiben:

$$\frac{\partial}{\partial t} N = D \frac{\partial^2}{\partial z^2} (N + qI), \quad (2.52a)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} I = -\sigma N I. \quad (2.52b)$$

Mit den Randbedingung $N(t, 0) = N(t, L) = N_0$ und $I(t, 0) = I_0$, sowie der Anfangsbedingung einer homogenen Dichteverteilung $N(0, z) = N_0$ zum Zeitpunkt $t = 0$ ist das Gleichungssystem (2.52) vollständig bestimmt, jedoch nur numerisch lösbar.

Bevor auf die Lösung der Differentialgleichungen eingegangen wird, sollen noch einige allgemeine Aussagen getroffen werden: Für den stationären Fall gilt für den Fluss $J = J_0 = \text{konstant}$. Eine Integration der Gleichung (2.50) unter Berücksichtigung von (2.49) und den Randbedingungen liefert:

$$N(z) + qI(z) = \frac{J_0}{D} z + (N_0 + qI_0). \quad (2.53)$$

Damit ist der stationäre Gesamtfluss

$$J_0 = \frac{Dq}{L} [I_0 - I(L)], \quad (2.54)$$

proportional zur integrierten Absorption über die Zelle. Er kann folglich nie größer werden als $J_{\text{max}} = DqI_0/L$, was für optisch dichte Medien mit $I(L) = 0$ zutrifft. Da die Intensität eine monoton fallende Funktion ist, entspricht das Vorzeichen des Flusses dem des Parameters q . Aus der Monotonie der Intensität lässt sich weiterhin ableiten, dass die stationäre Dichteverteilung $N(z)$ wegen

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} N = q\sigma \frac{\partial}{\partial z} (IN), \quad (2.55)$$

einen Extrempunkt hat, der für $q > 0$ ein Maximum beziehungsweise Minimum für $q < 0$ ist.

Zur Lösung der Differentialgleichungen wurde das gleichungsbasierte Modul der Finiten-Elemente-Methode Software *COMSOL Multiphysics*⁶ verwendet. Exemplarisch wird dies hier für das Isotop ^{204}Hg bei 70°C und einer Verstimmung von $\pm 2\text{GHz}$ zur 6^3P_1 Resonanz berechnet. Für die Berechnung des Parameters q wird in Ermangelung der Kenntnis der Akkomodationskoeffizienten, mit $\Delta\alpha = 1 \times 10^{-3}$ eine Abschätzung getroffen. Der Absorptionswirkungsquerschnitt σ entspricht dem auf die Dichte normierten Absorptionskoeffizienten (2.2b). Die Diffusionskonstante D lässt sich für den Fall, dass die mittlere freie Weglänge λ_{Hg} größer als der Faserradius a ist, wie folgt berechnen [111,118]:

$$D = \frac{2}{3}\bar{v}a \left[1 - \left(1,2264 + \frac{3}{4} \ln \left(\frac{\lambda_{\text{Hg}}}{2\gamma a} \right) \right) \frac{a}{\lambda_{\text{Hg}}} \right], \quad (2.56a)$$

$$\text{mit } \bar{v} = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m_{\text{Hg}}}}, \quad (2.56b)$$

$$\text{und } \lambda_{\text{Hg}} = \frac{1}{\sqrt{2\pi} d_{\text{Hg}}^2 N}. \quad (2.56c)$$

Hierbei bezeichnet \bar{v} die mittlere thermische Geschwindigkeit, γ die Euler Konstante und $d_{\text{Hg}} = 2 \times 149\text{pm}$ den doppelten kovalenten Radius von Quecksilber. Die Dichteabhängigkeit von Diffusionskonstante sowie Absorptionswirkungsquerschnitt auf Grund der sich verändernden Eigendruckverbreiterung wurden, wegen der ungleich höheren Komplexität, bei den Berechnungen vernachlässigt.

Die optische Dichte $\sigma N_0 L$ des Mediums ist ein kritischer Parameter des Systems und entscheidet maßgeblich über die Dichteverteilung in der Zelle und auf welchem Weg diese erreicht wird [112]. Dies wird anhand von Abbildung 2.19 verdeutlicht. Es zeigt die numerische Lösung des Gleichungssystems (2.52) für die Dichteverteilung $N(t, z)$ innerhalb der Faser bei rot- (a-d) und blauverstimmter (e-h) Anregung, für verschiedene Werte von $\sigma N_0 L$. Hierfür wird bei konstant gehaltenem Wirkungsquerschnitt σ und Zellenlänge L künstlich die Anfangsdichte N_0 unabhängig von der Temperatur variiert. Die Angabe einer Temperatur bestimmt lediglich die von der Teilchenbewegung abhängigen Parameter, insbesondere die relevanten Verbreiterungen für den Wirkungsquerschnitt.

Die farbigen Kurvenverläufe entsprechen den transienten Lösungen mit zeitlich äquidistanten Abständen. Der Zeitschritt Δt zwischen zwei Kurven ist im jeweiligen Graphen notiert. Die schwarze Kurve ist die stationäre Lösung, bei der ein konstanter Teilchenfluss an jedem Ort der Faser herrscht. Der Pfeil gibt die Propagationsrichtung des Lasers an.

Für rotverstimmte Anregung ist die Licht-induzierte Drift derart gerichtet, dass sie die Atome in Richtung des Laserstrahls beschleunigt. Im Bild 2.19 a) ist das System mit $\sigma N_0 L = 10$ optisch dicht und liegt deutlich über dem kritischen Wert

⁶Version 4.3b - <http://www.comsol.com/>

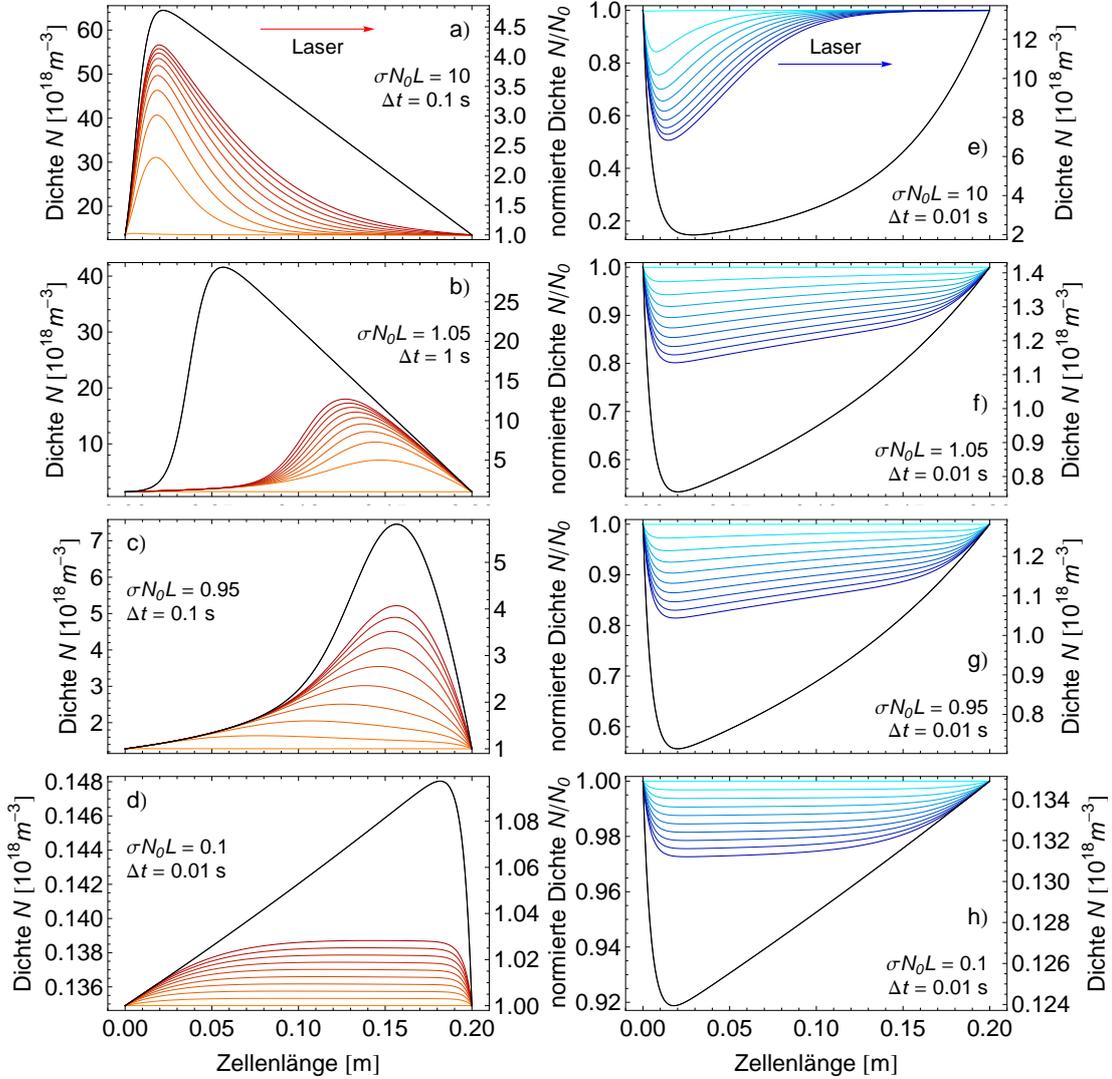


Abbildung 2.19: Zeitentwicklung der Dichte unter Einfluss Licht-induzierter Drift. Numerische Lösung der Transportgleichungen (2.52) am Beispiel des ^{204}Hg Isotops für unterschiedliche optische Dichten $\sigma N_0 L$. Ausgangspunkt ist jeweils eine homogene Dichteverteilung N_0 zum Zeitpunkt $t = 0$. a)-d) zeigt den Fall rotverstimmter, e)-h) den blauverstimmter Einstrahlung, in äquidistanter zeitlicher Entwicklung (farbige Kurven), sowie die Gleichgewichtslösung (schwarz). Verwendete Parameter: $\Delta_{\text{UV}} = \pm 2 \text{ GHz}$, $T = 70 \text{ }^\circ\text{C}$, $q = \mp 2,35 \times 10^{12} \text{ W}^{-1}\text{m}^{-1}$, $\sigma = 3,71 \times 10^{-18} \text{ m}^2$, $L = 0,2 \text{ m}$, $D = 2,99 \times 10^{-3} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, $I_0 = 2,5 \times 10^7 \text{ W m}^{-2}$.

von 1. Die Intensität wird im vorderen Bereich der Zelle bereits komplett absorbiert. Dies erhöht lokal die Dichte und der Fluss in die Faser erreicht schnell den stationären Wert. Im rechten Bereich der Kapillare gleicht sich der entstehende Dichtegradient diffusiv aus, bis der Gleichgewichtszustand erreicht ist. Verringert man die Dichte und nähert sich damit dem Wert $\sigma N_0 L = 1$, ändert sich der Gleichgewichtszustand nur unwesentlich (Abbildung 2.19 b)). Allerdings ist der relative Dichtezuwachs größer und die Annäherung an den stationären Zustand verläuft deutlich anders. Auf Grund der geringeren Abschwächung des Lichtes, erfahren die Atome auf der kompletten Länge der Kapillare eine Drift und akkumulieren sich am hinteren Ende. Von dort erhöht sich die Dichte in Richtung Zellenanfang, da der induzierte Fluss bei $z = 0$ ($J_{\text{LID}} = Dq\sigma I_0 N_0$) geringfügig größer als der maximale Fluss DqI_0/L bei $z = L$ ist. Für eine optische Dichte von 0,95 (Abbildung 2.19 c)) ist das anfängliche Verhalten ähnlich dem in b) diskutierten Fall. Allerdings reicht hier der diffusive Fluss am Ende der Kapillare aus, um den einlaufenden Fluss auszugleichen, und das Maximum der Verteilung liegt in der Nähe des hinteren Endes. Für optische Dichten deutlich kleiner 1 (Abbildung 2.19 d)) findet nur eine geringe Schwächung des Laserstrahls statt und entsprechend klein ist die Erhöhung der Dichte. Die generelle Form bleibt aber erhalten, mit einem Maximum nah des hinteren Endes der Kapillare. Zu beachten ist darüber hinaus, dass sich die Zeitskalen, auf der sich das Gleichgewicht in den unterschiedlichen Regimen einstellt, um mehrere Größenordnungen unterscheiden. Allgemein ist noch zu erwähnen, dass mit größerer effektiver Dichte qI_0 des Systems, die Verschiebung des Maximums vom Anfang der Zelle zum Ende, beim Übergang vom optisch dichten zum dünnen Regime abrupter wird.

Anregung im blauverstimmten Flügel der Resonanz führt zu einem negativen Parameter q und damit einem negativen Fluss. Die Atome werden durch LID entgegen des Laserstrahls bewegt. Die numerischen Lösungen bei den unterschiedlichen optischen Dichten sind in Abbildung 2.19 e)-h) gezeigt. Die sich einstellende Dichteverteilung weist eine weniger dramatische Abhängigkeit von der optischen Dichte des Mediums auf: Die Lage des Minimums liegt bei allen gezeigten Fällen nah am linken Rand. Auch die Zeitskala auf der sich das Gleichgewicht einstellt ist vergleichbar und im Allgemeinen schneller als bei rotverstimmter Anregung. Der konzeptionelle Unterschied liegt in der Tatsache, dass die Dichte in der Kapillare durch LID verringert wird und somit der Strahl auch bei hoher optischer Dichte bis zum hinteren Zellenende vordringen kann. Mit steigender optischer Dichte wird die Zelle effektiver entleert.

Es existiert also ein deutlicher Unterschied, sowohl in der Dynamik, als auch im angestrebten Gleichgewichtszustand, zwischen rot- und blauverstimmter Anregung. Die Anfangsdichte N_0 hat dabei einen entscheidenden Einfluss auf das sich einstellende Gleichgewicht.

2.4.2 LID mit zusätzlichen Verlusten

Die Leitungsverluste, welche das Licht auf Grund der Propagation in der Faser erfährt, bedingen einige Modifikationen an den Transportgleichungen (2.52): Mit der Näherung, dass sich die Verluste in der Faser als Summe von Absorptions- und reinen Propagationsverlusten schreiben lassen ($\alpha \approx \alpha_{\text{abs}} + \alpha_{\text{prop}}$), erhält man für die räumliche Änderung der Intensität

$$\frac{\partial}{\partial z} I = -\sigma N I - \alpha_{\text{prop}} I. \quad (2.57a)$$

Für den durch LID hervorgerufenen Driftterm ist aber nur die Schwächung des Strahls durch Absorption verantwortlich. Folglich gilt

$$\frac{\partial}{\partial t} N = D \frac{\partial^2}{\partial z^2} N - Dq\sigma \frac{\partial}{\partial z} (NI), \quad (2.57b)$$

denn die Ersetzung, welche die zweite räumliche Ableitung der Intensität in Gleichung (2.52) liefert ist nicht mehr legitim.

Die Änderungen, die dies in der Dichteverteilung bewirkt, sind im optisch dünnen Regime am deutlichsten, weshalb im Folgenden die Diskussion auf die zwei bereits betrachteten Fälle mit einem kritischen Parameter kleiner 1 beschränkt wird. In Abbildung 2.20 ist die Gleichgewichtslösung mit (durchgezogene Kurve) und ohne Propagationsverluste (gestrichelte Kurve) dargestellt. Der zur Berechnung verwendete Verlustkoeffizient beträgt $\alpha_{\text{prop}} = 1,755 \text{ m}^{-1}$, was dem des UV Strahls in einer Faser mit $25 \mu\text{m}$ Kernradius entspricht. Den signifikantesten Unterschied erkennt man in Abbildung 2.20 a), was die Situation bei rotverstimmter Anregung und einem N_0 knapp unter der kritischen Dichte $N_{\text{kr}} = (\sigma L)^{-1}$ zeigt. Die zusätzlichen Verluste führen zu einer Verschiebung des Maximums an den Anfang der Zelle, ähnlich den Lösungen zu $N_0 > N_{\text{kr}}$. Tatsächlich kann man die Propagationsverluste als eine Reduzierung der effektiven Zellenlänge interpretieren, was eine niedrigere kritische Dichte N_α gegenüber dem verlustfreien Fall N_{kr} zur Folge hat:

$$N_\alpha = N_{\text{kr}} \frac{1}{L} \int_0^L e^{-\alpha_{\text{prop}} z} dz. \quad (2.58)$$

Im gezeigten Beispiel liegt diese bei $N_\alpha = 0,84 \cdot N_{\text{kr}}$. Die dadurch beschriebene Verschiebung des Systems zu scheinbar höheren optischen Dichten, ist auch am Verhalten in den Graphen 2.20 b)-d) zu beobachten: Die Verluste verstärken die Ansammlung, beziehungsweise Entleerung der Kapillare. Der Effekt ist ausgeprägter, je deutlicher die absorptive von der dissipativen Schwächung dominiert wird. Eine anschauliche Interpretation kann am Beispiel geringer Absorption klar gemacht werden: Ist die Schwächung des Strahls entlang der Zelle vernachlässigbar, herrscht ein nahezu konstanter Fluss J_{LID} über die komplette Zelle, der die Atome von einem Ende zum anderen transportiert. Erst durch die Verluste

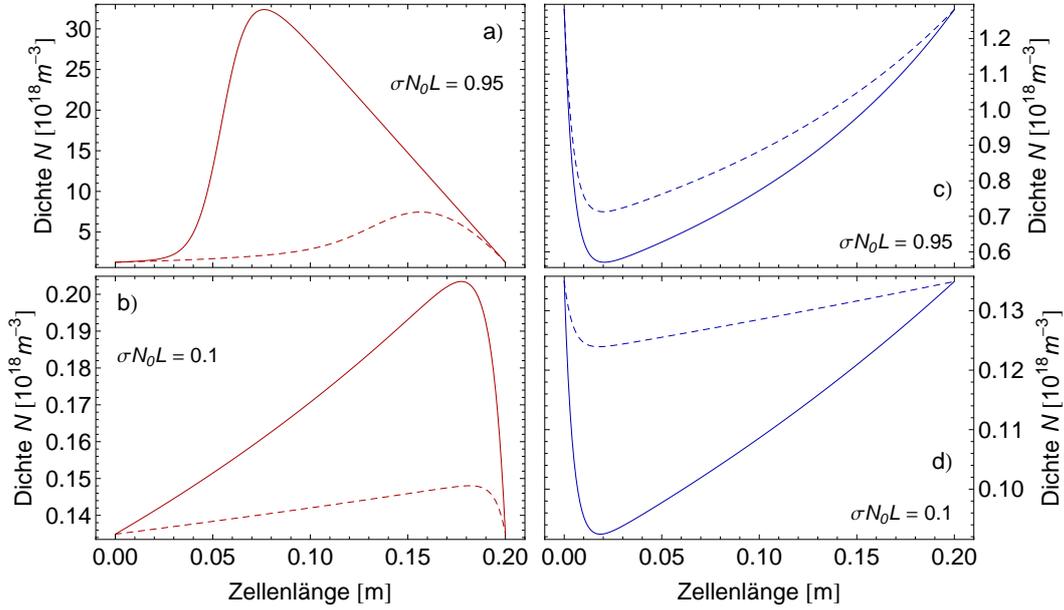


Abbildung 2.20: Einfluss der Faserverluste auf die stationäre Dichteverteilung. Gleichgewichtslösung der Dichteverteilung bei rotverstimmer (a, b) und blauverstimmer (c, d) Anregung, mit (durchgezogene Kurve) und ohne (gestrichelte Kurve) Berücksichtigung von Propagationsverlusten. Die verwendeten Parameter entsprechen denen in Abbildung 2.19, mit $\alpha_{\text{prop}} = 1,755 \text{ m}^{-1}$.

bekommt der Fluss, welcher die Atome in, beziehungsweise aus der Faser bewegt, einen starken räumlichen Gradienten. Wegen der monoton fallenden Intensität ist J_{LID} weiter vorne in der Zelle immer stärker als in darauf folgenden Regionen, was je nach Verstimmung, zu einer Verdichtung beziehungsweise Verminderung der atomaren Dichte führt.

Hiermit kann nun die Relevanz Licht-induzierter Kräfte für den Vierwellenmischprozess in einer Hohlleiter abgeschätzt werden. Für den Bereich rotverstimmerter Phasen Anpassung beträgt der kritische Parameter für das häufigste Isotop ^{202}Hg $\sigma N_0 L = 0,005$, bei einer Verstimmung von $\Delta_{\text{UV}} = -50 \text{ GHz}$ (Phasen Anpassungstemperatur $T_{\text{opt}} \approx 90 \text{ }^\circ\text{C}$). Für einen UV Strahl mit einer Leistung von 100 mW errechnet sich ein maximaler Dichtezuwachs von weniger als $0,5 \%$. Folglich spielen Licht-induzierte Drifts bei Verstimmungen von einigen 10 GHz eine vernachlässigbare Rolle. Betrachtet man Phasen Anpassungsszenarien zwischen den Resonanzen (zum Beispiel $\Delta_{\text{UV}} = -2 \text{ GHz}$, $T_{\text{opt}} \approx 56 \text{ }^\circ\text{C}$, $\sigma N_0 L = 0,32$) sind Dichtänderungen von bis zu 15% denkbar. Zum Vergleich: Diese Änderung kann mit einer Temperaturänderung von etwa $1,8 \text{ }^\circ\text{C}$ gleichgesetzt werden, was deutliche Auswirkungen auf die Phasen Anpassung hat. Im Fall kleiner Verstimmungen

2. THEORETISCHE GRUNDLAGEN

zum 6^3P_1 Niveau können sich Lichtkräfte demnach negativ auf die erreichbaren Mischeffizienzen auswirken, obwohl die mit dem transversalen Intensitätsprofil verbundene geringere Intensität in Wandnähe den Effekt von SLID womöglich vermindert [119].

EXPERIMENTELLE REALISIERUNG

Der experimentelle Aufbau für das Vierwellenmischen in einer Hohlaser stellt einen signifikanten Teil dieser Arbeit dar und soll in diesem Kapitel präsentiert werden. Die drei Lasersysteme bei den fundamentalen Wellenlängen wurden zu großen Teilen in dem hier präsentierten Umfang bereits für Experimente zur Erzeugung von VUV Strahlung mit fokussierten Lasern verwendet. Es wird eine Gesamtübersicht über die Systeme gegeben, sowie die Überlagerung der Laserstrahlen zur Einkopplung in die Hohlaser erörtert. Zur Verbesserung des Einkopplensignals wurden Experimente zur Metall-Beschichtung von Faserfacetten durchgeführt. Auf das hierfür aufgebaute Verdampfersystem wird kurz eingegangen.

Die Vakuumkammer für die Erzeugung von kontinuierlicher VUV Strahlung in einer Hohlaser lässt sich in zwei Bereiche unterteilen. Eine mit Quecksilber befüllte Vierwellenmischkammer, welche die Hohlaser enthält, und eine Detektionskammer. In dieser erfolgt die Separation des erzeugten VUV Strahls von den Fundamentalen und dessen Nachweis. Im Vorfeld wurde das Einbringen von Quecksilber in die Faser in einer speziellen Spektroskopiekammer mit gutem optischen Zugang getrennt davon quantitativ untersucht.

3.1 Lasersystem

Die experimentellen Voraussetzungen und Ziele stellen gewisse Bedingungen an das Lasersystem, bezüglich Wellenlänge, Leistung und Linienbreite. Wie im vorangegangenen Kapitel ausführlich diskutiert wurde, ist bei nichtlinearen Prozessen mit kontinuierlichem Laserlicht die Nähe zu atomaren Resonanzen essenziell. Entsprechend ist die Wahl der Wellenlängen der Fundamentalstrahlen an der atomaren Niveaustuktur von Quecksilber orientiert. Abbildung 3.1 gibt eine Übersicht über das gesamte Lasersystem mit den dazugehörigen Übergängen in Quecksilber bei 254 nm (UV), 408 nm (blau) und 540 nm (grün). Die Leistung der erzeugten VUV Strahlung ist proportional zur Leistung jeder der Fundamental-

3. EXPERIMENTELLE REALISIERUNG

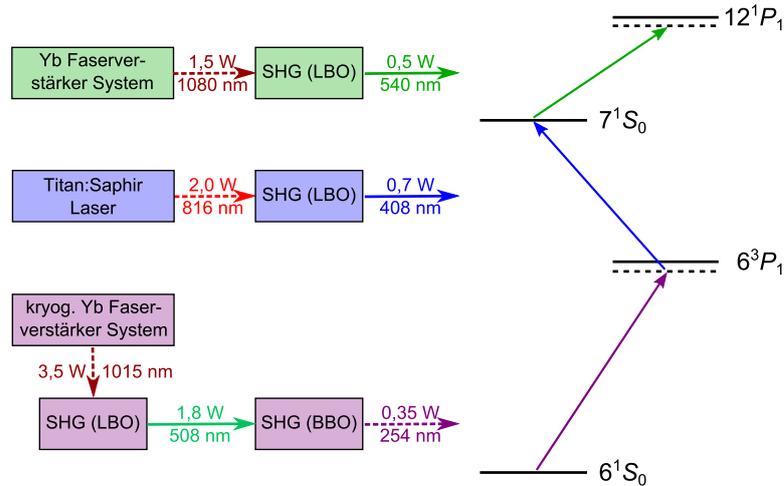


Abbildung 3.1: Übersicht des Gesamtlasersystems. Die Fundamentallaser, mit Wellenlängen in der Nähe der Quecksilberübergänge, werden durch Frequenzverdopplung (SHG: second harmonic generation) aus leistungsstarken, infraroten Lasersystemen erzeugt. LBO: Lithiumtriborat, BBO: Beta-Bariumborat

laser. Folglich wird eine hohe Ausgangsleistung bei allen drei Lasern angestrebt. Hierfür werden Festkörper- und Halbleiter-basierte infrarote Lasersysteme mit hoher Ausgangsleistung in Überhöhungsresonatoren frequenzverdoppelt, beziehungsweise vervierfacht. Der ultraviolette und blaue Laser sind dabei kontinuierlich über die Ein- und Zwei-Photonen Resonanz abstimmbare. Zum Ausnutzen eines dreifach resonanten Vierwellenmischschemas wird für den grünen Laser eine Wellenlänge nahe der 12^1P_1 Resonanz gewählt.

Für die künftige Anregung von langlebigen Rydbergzuständen in Calciumionen ist ferner eine schmale Linienbreite (wenige 10 kHz) des VUV Lasers elementar, so dass alle Laser auf externe Referenz-Resonatoren stabilisiert werden können [120]. Die einzelnen Systeme werden in den folgenden Abschnitten im Detail vorgestellt. Auf Grund der eingeschränkten kommerziellen Verfügbarkeit von Hochleistungssystemen bei den benötigten Wellenlängen wird in der Gruppe viel Forschung auf dem Gebiet der Laserentwicklung betrieben [121–127]. Diese fortlaufende Entwicklung hat im zeitlichen Rahmen dieser Arbeit mehrere Umbauten an den einzelnen Systemen bedingt. Daher wird der aktuelle Stand des Gesamtlasersystems präsentiert und in relevanten Fällen auf eventuelle Abweichungen davon hingewiesen.

3.1.1 UV Lasersystem bei 254 nm

Das UV Lasersystem basiert auf einem Ytterbium (Yb) Faserverstärkersystem bei 1014,8 nm. Ein äquivalentes System mit einer Ausgangsleistung von bis zu

10 W wird ausführlich in [127] beschrieben. Die Frequenz des infraroten Fundamentallasers wird in zwei sukzessiven Frequenzverdopplungen zu 253,7 nm vervierfacht. Der Faserverstärker ersetzt dabei einen bisher verwendeten, für 1015 nm umgebauten, Ytterbium:Yttrium-Aluminium-Granat (Yb:YAG) Scheibenlaser [121,128]. Die Lebensdauer der Laserscheiben beträgt bei dieser für Yb:YAG unüblichen Wellenlänge etwa zwei Jahre, und der Hersteller bietet seit 2012 keine Ersatzscheiben mehr an.

Ytterbium-dotierte Faserlaser und -verstärker sind heute etablierte Quellen nahinfraroter Strahlung im Bereich von 1000-1200 nm [129], die mehrere 100 W Ausgangsleistung bei guter Strahlqualität liefern können [130]. Als Verstärkerfaser kommen typischerweise *large-mode-area double-clad*-Fasern zum Einsatz. Diese bestehen aus einem Kern mit Brechungsindex n_K , in den das laseraktive Yb^{3+} dotiert ist, umgeben von einem Mantel¹ mit Brechungsindex $n_M < n_K$. Das zu verstärkende Signal-Licht wird auf diese Weise durch interne Totalreflexion im Kern geführt. Zur Reduktion der Leistungsdichte haben *large-mode-area* (LMA) Fasern einen großen Kerndurchmesser von bis zu 30 μm , verglichen mit herkömmlichen *single-mode* Fasern (SMF) für infrarotes Licht mit typischerweise 6 μm . Das multi-modige Pumplicht wird in den mehrere 100 μm durchmessenden Mantel eingekoppelt. Dieser ist von einer Polyamid-Hülle mit $n_H < n_M$ umgeben, welche den zweiten Mantel darstellt. Bei der Propagation des Pumplichtes durch die Faser durchdringt es ebenfalls den dotierten Kern und erzeugt die zur Verstärkung nötige Besetzungsinversion.

Durch die Dotierung in das Wirtsmaterial ist das untere Laserniveau von Yb Stark-aufgespalten [129]. Thermische Besetzung dieser Unterzustände limitiert unterhalb von 1030 nm durch Reabsorption des Signal-Lichtes die Verstärkung drastisch. Diese thermische Besetzung kann durch Kühlen der Faser auf Flüssigstickstoff-Temperatur (-196°C) deutlich reduziert werden [131,132]. Für $T = 23^\circ\text{C}$ und $T = -196^\circ\text{C}$ zeigt Abbildung 3.2 die, mit einem optischen Spektralanalysator aufgenommene, spektrale Mantelabsorption einer Ytterbium-dotierten Verstärkerfaser² bei Illumination mit einer Weißlichtquelle. Dabei bezeichnet Mantelabsorption die Absorption des im Mantel geführten Lichtes durch den dotierten Kern. Das Spektrum bei Raumtemperatur ist in rot dargestellt. Der hohe schmale Absorptionspeak bei 976 nm entspricht der Null-Phononen Linie, welche zum optischen Pumpen verwendet wird. Die zu höheren Wellenlängen auslaufende Absorption bis etwa 1050 nm stammt von thermisch besetzten Grundzustandsniveaus. Ein Vergleich mit dem Spektrum bei Flüssigstickstoff-Temperatur (blau) zeigt neben einer erhöhten Absorption bei der Pumpwellenlänge eine signifikante Reduktion der Absorption jenseits von 985 nm.

Der schematische Aufbau des UV Lasersystems ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Das zu verstärkende Signal-Licht bei 1015 nm stammt von einem gitterrückgekopp-

¹ *engl.*: Cladding

² Nufern LMA-YDF-10/400

3. EXPERIMENTELLE REALISIERUNG

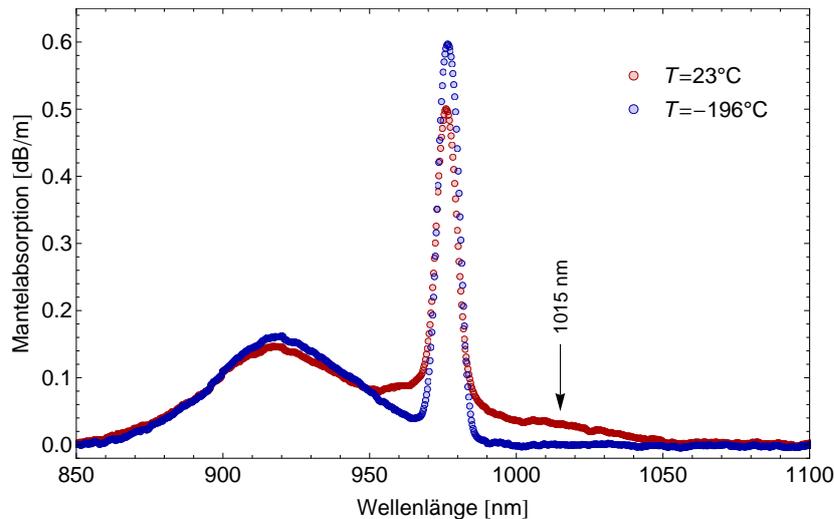


Abbildung 3.2: Absorptionsspektrum einer Ytterbium-dotierten Faser. Gemessene Mantelabsorption bei Raumtemperatur (rot) und Flüssigstickstoff-Temperatur (blau) als Funktion der Wellenlänge.

pelten Eigenbau-Diodenlaser (ECDL³), in Littrow-Konfiguration [133], welcher im Folgenden als Seed-Laser bezeichnet wird. Als Laserdiode wird eine antireflexbeschichtete Fabry-Perot-Diode⁴ mit einem Durchstimmbereich von 960 nm bis 1080 nm verwendet. Die Wellenlänge des Lasers lässt sich über eine Änderung des piezogesteuerten Gitterwinkels und des Injektionsstromes variieren. Die Elliptizität des Strahls wird durch ein anamorphes Prismenpaar kompensiert. Ein Faraday-Isolator (FI) schützt die Laserdiode vor Rückreflexen des sich anschließenden optischen Aufbaus. Ein Teil des Strahls wird zur Wellenlängenmessung und Stabilisierung auf eine Referenzkavität an einem Strahlteiler abgenommen. Die Frequenzstabilisierung ist ausführlich in [120] beschrieben und gewährleistet eine Linienbreite von < 100 kHz.

Über eine single-mode Faser werden nach Polarisationsanpassung über Verzögerungsplatten 17 mW Signal-Leistung zur Vorverstärkung in einen Trapezverstärker⁵ (TA⁶) eingekoppelt. Der auf etwa 1 W verstärkte Strahl wird durch eine sphärische und eine Zylinderlinse kollimiert. Ein Faraday-Isolator gewährleistet, dass der Trapezverstärker nicht durch etwaige Reflexe aus dem weiteren Strahlengang in Rückrichtung injiziert wird. Wegen des schlechten Strahlprofils lassen sich nur etwa 50 % der Leistung in eine polarisationserhaltende SMF einkoppeln, welche das Licht zum Ytterbium Faserverstärker leitet.

Ein weiterer Faraday-Isolator schirmt das Vorverstärker-System gegen eventuell

³ *engl.*: External cavity diode laser

⁴ Eagleyard Photonics: EYP-AWE-1060

⁵ m2k laser: TA-1010-2000

⁶ *engl.*: Tapered amplifier

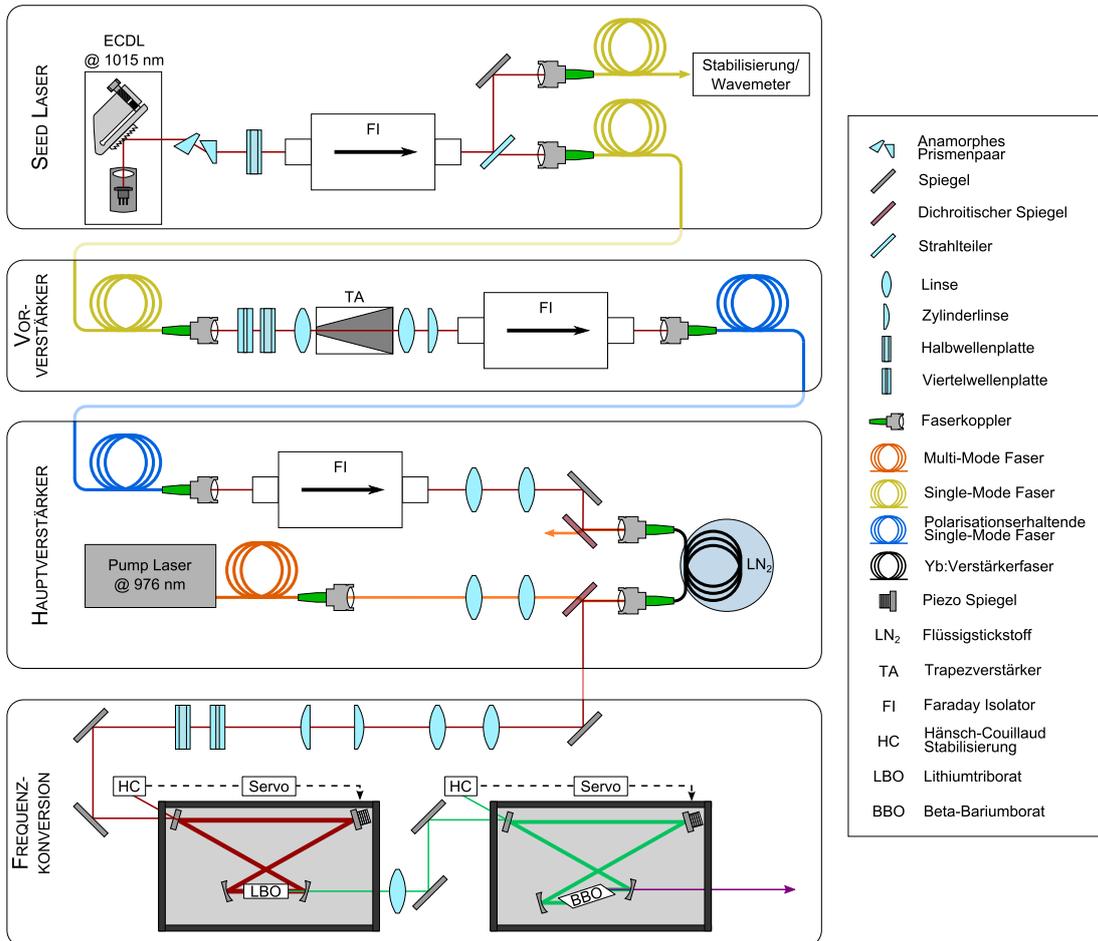


Abbildung 3.3: Schematischer Aufbau des UV Lasersystems. Das Signal-Licht eines gitterstabilisierten Diodenlasers (ECDL) wird in einem Trapezverstärker (TA) vorverstärkt. Als Hauptverstärker fungiert ein Diodenlaser gepumpter kryogener Yb:Faserverstärker. Die Frequenzvervierfachung findet in zwei stufenweisen Frequenzverdopplungen in Überhöhungsresonatoren statt.

3. EXPERIMENTELLE REALISIERUNG

in Rückrichtung verstärktes, spontan emittiertes Licht (ASE⁷) und nicht absorbiertes Pumplicht aus der Verstärkerfaser ab. Bis zu 400 mW Leistung stehen nach dem Isolator zur Verfügung. Die Strahlgröße wird in einem sphärischen Teleskop angepasst und das Licht über einen dichroitischen Spiegel in den Kern der Verstärkerfaser gekoppelt. Bei dieser handelt es sich um eine 20 m lange Ytterbium-dotierte Faser⁸ mit einem Kerndurchmesser von 11 μm . Diese liegt aufgewickelt in einem mit flüssigem Stickstoff gefüllten Dewar. Die für den notwendigen optischen Zugang an Raumtemperatur befindliche Faserlänge wird möglichst kurz gehalten. Die Faser wird von der Rückseite durch einen fasergekoppelten Diodenlaserbarren⁹ bei 976 nm mit einer Leistung von maximal 10 W gepumpt. Die Verwendung von eingeschriebenen holographischen Bragg-Gittern gewährleistet eine spektrale Breite der Dioden von < 1 nm [134]. Mit diesem Aufbau werden Ausgangsleistungen von etwa 3,5 W bei 1015 nm erreicht. Die dotierte Faser ist nicht explizit polarisationserhaltend. Die Polarisation des verstärkten Lichtes bleibt aber konstant, wenn mechanischer Stress auf die Faser vermieden wird.

Die Frequenzvervierfachung zu 254 nm erfolgt in zwei aufeinander folgenden Frequenzverdopplungen. Zur effizienten Konversion finden beide Verdopplungen in Überhöhungsresonatoren in Doppel-Z-Geometrie statt. Die transversale Modenanpassung an den ersten Resonator wird über ein sphärisches und ein Zylinderlinsen-Teleskop vorgenommen, und die Polarisation über Halb- und Viertelwellenplatten eingestellt. Einkoppeleffizienzen von 75 % werden erreicht. Zur Stabilisierung der Resonatorlänge auf ein Vielfaches der umlaufenden Wellenlänge ist der plane Umlenkspiegel auf eine Piezokeramik aufgeklebt, deren Ausdehnung aktiv über eine Regelschleife kontrolliert wird. Die Fehlersignalerzeugung wird aus dem am Einkoppelspiegel reflektierten Strahl über das Hänsch-Couillaud-Verfahren realisiert [135].

Der mitlaufende ASE-Anteil des Lichtes und rückgestreutes Pumplicht erfüllen die Resonanzbedingung nicht und werden entsprechend am Einkoppelspiegel reflektiert. Für die Erzeugung von 508 nm wird ein rechtwinkelig geschnittener, antireflex-beschichteter, (Typ I)-temperaturphasenangepasster Lithiumtriborat (LBO) Kristall verwendet. Typische Leistungen von 1,8 W im grünen werden erreicht. Dies ist vergleichbar mit den Konversionseffizienzen im ursprünglichen, Scheibenlaser-basierten System [121,128]. Die zweite Verdopplung verwendet einen brewstergeschnittenen (Typ I)-kritisch-winkelphasenangepassten Beta-Bariumborat (BBO) Kristall. Die Modenanpassung in den zweiten Resonator wird über eine sphärische Linse nach der ersten Verdopplung vorgenommen. Der Resonator wird ebenfalls über das Hänsch-Couillaud-Verfahren stabilisiert. Ohne besonderen Justageaufwand werden typischerweise 350 mW Ausgangsleistung im UV erreicht. Dies entspricht in etwa der täglichen Leistung des alten Systems.

⁷ *engl.*: Amplified spontaneous emission

⁸ Nufern: LMA-YDF-10/400

⁹ LIMO40-F200-DL976(VHG)-LM

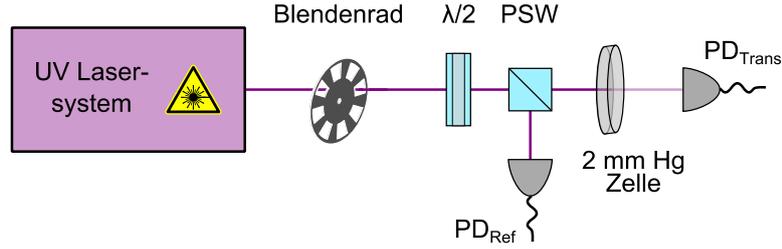


Abbildung 3.4: Aufbau der Absorptionsspektroskopie an Quecksilber. Transmission durch eine Spektroskopiezelle bei Raumtemperatur und Leistungsreferenz des zur Lock-in Detektion modulierten UV Strahls werden an identischen Photodioden detektiert. $\lambda/2$: Halbwellenplatte, PSW: Polarisierender Strahlteilerwürfel, PD: Photodiode.

Die Durchstimmbarkeit des Systems wird an einer Absorptionsspektroskopie des relevanten ultravioletten $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Übergangs in Quecksilber getestet. Die Sättigungsintensität I_{sat} für den Übergang berechnet sich nach [136]

$$I_{\text{sat}} = \frac{\pi \hbar c \Gamma}{3 \lambda^3} \quad \text{mit} \quad \Gamma = \frac{\mu_{eg}^2 \omega^3}{3 \pi \hbar \epsilon_0 c^3}, \quad (3.1)$$

zu $105,6 \text{ W/m}^2$. Um Sättigungsverbreiterung auszuschließen wurde deshalb die UV Leistung auf unter 1 mW reduziert und der Strahl für die Spektroskopie auf 3 mm aufgeweitet. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 3.4 skizziert. Die Wellenlänge des unstabilisierten Seed-Lasers wird mittels einer Spannungsrampe auf den Piezoaktuator des Reflexionsgitters über die Resonanz gescannt. Zur Unterdrückung von durch Hintergrundlicht verursachtem Rauschen wird der UV Strahl mit einem Blendenrad für eine Lock-in Detektion moduliert. Über eine Halbwellenplatte und einen polarisierenden Strahlteilerwürfel kann der Strahl in beliebigem Leistungsverhältnis aufgeteilt werden. Das Transmissionssignal hinter einer Quecksilberzelle und der Referenzstrahl zur Leistungsnormierung werden von zwei identischen Photodioden aufgenommen. Bei der Spektroskopiezelle handelt es sich um eine 2 mm dicke, mit einem natürlichen Quecksilberisotopenmisch befüllte Quarzglaszelle bei Raumtemperatur.

Die gemessene Transmission ist in Abbildung 3.5 b) als Funktion der UV Verstimmung zum ^{202}Hg Isotop aufgetragen (schwarze Kreise). Die fünf Dopplerverbreiterten Absorptionsmulden können den in a) aufgeführten Isotopen und Hyperfeinkomponenten zugeordnet werden. Die rote Kurve zeigt die nach Kapitel 2.1.1 berechnete Transmission für die gegebenen experimentellen Parameter. Messdaten und Theorie zeigen eine sehr gute Übereinstimmung in Lage, Absorptionstiefe und Resonanzbreite.

Durch die Trennung in Seed-Laser und Leistungsverstärker profitiert das System von der einfachen Durchstimmbarkeit von Diodenlasern. Während das alte System nur sehr aufwendig mit einer maximalen Rate von 15 MHz/s im UV kon-

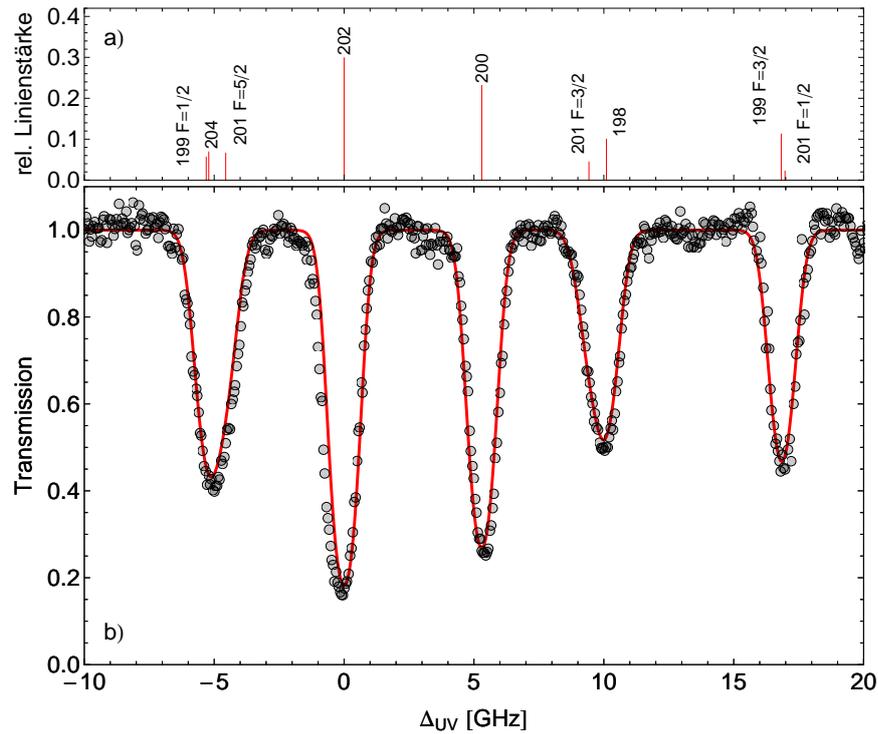


Abbildung 3.5: Absorptionsspektroskopie des $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Übergangs. a) Relative Linienstärken der Quecksilberisotope und ihrer Hyperfeinkomponenten. b) Gemessenes, normiertes (schwarze Kreise) und theoretisches (rote Kurve) Transmissionsspektrum des Ein-Photon Übergangs in Quecksilber für eine 2 mm Zelle bei Raumtemperatur.

tinuierlich durchgestimmt werden konnte, wurde das Spektrum in Abbildung 3.5 mit einer Scanrate von 200 MHz/s aufgenommen.

Mittlerweile ist das System soweit umgebaut, dass Frequenzscans nicht mehr über eine direkte Rampe auf das Littrow-Gitter gefahren werden. Vielmehr wird die Länge der Referenzkavität, auf die der Laser stabilisiert ist, verändert, wodurch der Seed-Laser auch im stabilisierten Betrieb verstimmt werden kann.

3.1.2 Blaues Lasersystem bei 408 nm

Die zur Erfüllung der Zwei-Photonen Resonanz notwendige Übergangswellenlänge vom 6^3P_1 zum 7^1S_0 Niveau beträgt 407,9 nm. Obwohl es seit der ersten Realisierung von InGaN Laserdioden 1996 [137] eine immense Entwicklung auf dem Gebiet blau-violetter Halbleiterlaser gegeben hat, sind die Leistungen kommerziell verfügbarer Systeme auf typischerweise < 100 mW in Littrow-Konfiguration beschränkt¹⁰. Für höhere Leistungen muss nichtlineare Frequenzkonversion lang-

¹⁰z. B. Toptica: DL pro HP 405 mit #LD-0405-0250-1

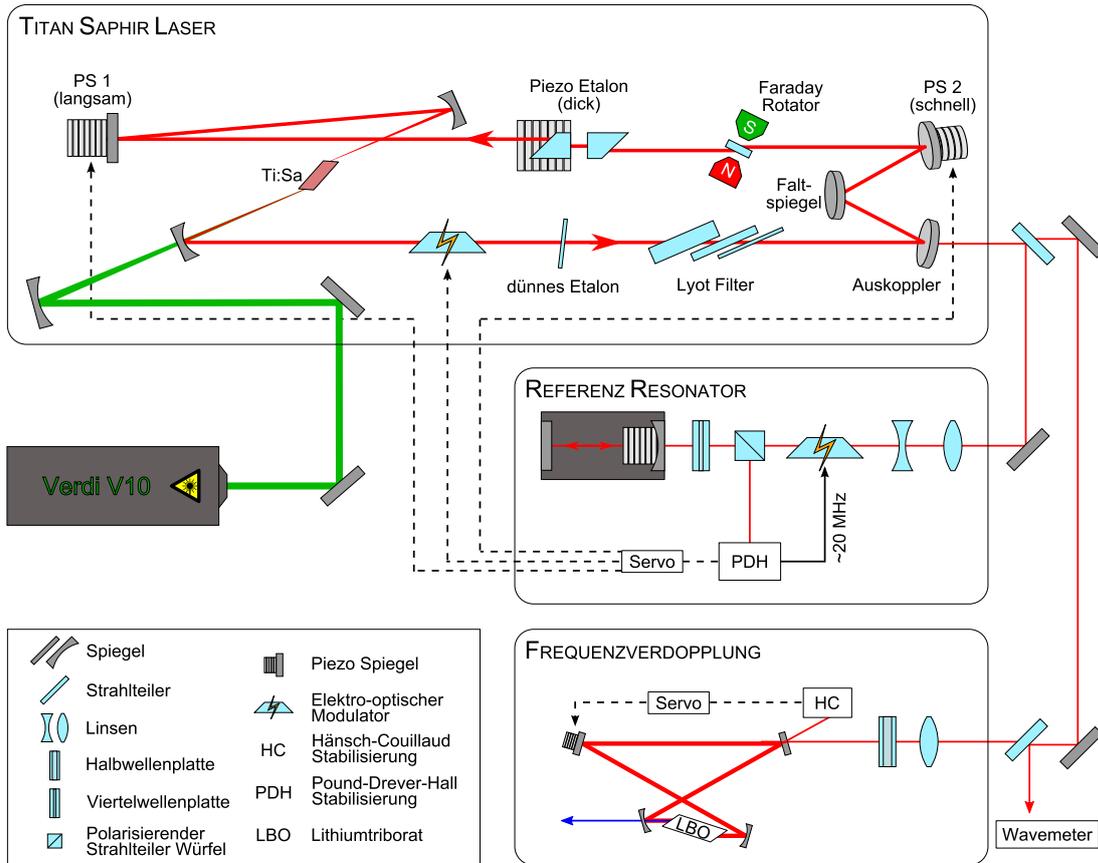


Abbildung 3.6: Schematischer Aufbau des blauen Lasersystems. Der von einem Verdi V10 gepumpte Titan:Saphir Ringlaser wird mittels der Pound-Drever-Hall Methode (PDH) auf einen externen Referenzresonator stabilisiert. Der Überhöhungsresonator der Frequenzverdopplung ist Hänsch-Couillaud stabilisiert.

welligerer Laserquellen angewandt werden. In unserem Fall wird der blaue Fundamentalstrahl über Frequenzverdopplung des Lichtes eines Titan:Saphir Lasers (Ti:Sa) bei 815,8 nm generiert.

Bei dem Ti:Sa Laser handelt es sich um einen Sirah Matisse TX Ringlaser, welcher von einem intern frequenzverdoppeltem Neodym:Yttrium-Vanadat (Nd:YVO₄) Laser¹¹ bei 532 nm mit einer maximalen Leistung von 10,5 W gepumpt wird. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 3.6 skizziert. Longitudinaler Ein-Moden-Betrieb wird durch ein dreistufiges Lyot-Filter und zwei Etalons unterschiedlicher Dicke erreicht, welche frequenzselektive Verluste für nicht erwünschte Moden einführen. Die Feinabstimmung der Wellenlänge wird durch Variation der Resonatorlänge über den Piezospiegel PS1 vorgenommen. Brewsterflächen im Resonator bestimmen die umlaufende lineare Polarisation. Um ein bidirektio-

¹¹Coherent: Verdi V10

nales Anschwingen zu verhindern, bilden ein Faraday-Rotator und ein außerhalb der Resonatorebene befindlicher Faltspiegel eine optische Diode: Im Feld eines starken Permanentmagneten ruft der Faraday-Effekt [138] in einem Terbium-Gallium-Granat (TGG) Plättchen eine Rotation der linearen Polarisation hervor, die unabhängig von der Umlaufrichtung ist. Die geometrische Drehung der Polarisation bei der Reflexion am Faltspiegel dagegen hängt von der Propagationsrichtung ab [139]. Während sich die Drehungen in einer Orientierung kompensieren, führt die Netto-Drehung der Polarisation bei falscher Umlaufrichtung zu Verlusten an den Brewsterflächen. Die Ausgangsleistung des Ti:Sa Lasers bei 816 nm beträgt 2 W. Die Frequenz des Lasers wird über das Pound-Drever-Hall Verfahren [140,141] auf eine nicht konfokale externe Referenzkavität stabilisiert. Hierfür wird ein Teil des Strahls durch ein Teleskop an die Resonatormode angepasst. In einem elektro-optischen Modulator (EOM) werden die für das Lock-Verfahren notwendigen Seitenbänder über Phasenmodulation auf die Trägerfrequenz aufgeprägt. Das aus dem am Referenzresonator reflektierten Licht gewonnene Fehlersignal wird über eine Regelschleife an drei Elemente im Laser-Resonator zurückgekoppelt, welche die Länge auf unterschiedlichen Zeit- und Größenskalen anpassen können. Der Piezospiegel PS1 hat wegen seiner langen Piezokeramik einen großen Hub, bei langsamer Regelzeit. Der schnelle Piezo von PS2 ist zum Ausgleich von Fluktuationen im mittleren Frequenzbereich gedacht. Die höchste Regelbandbreite wird durch einen resonatorinternen EOM erreicht. Damit ist eine Stabilisierung des Lasers auf eine Linienbreite von < 30 kHz relativ zum Referenzresonator möglich. Durch einen Scan der Referenzkavität mittels eines Piezoaktuators ist eine kontinuierliche, modensprungfreie Durchstimbarkeit des Lasers von mehreren 10 GHz möglich.

Frequenzverdopplung findet in einem Hänsch-Couillaud stabilisierten Überhöhungsresonator in Doppel-Z-Geometrie statt. Dieser kann einem Frequenzscan des infraroten Lasers von 3,5 GHz folgen, bevor ein neuer Lockpunkt gefunden werden muss. Eine geeignete Linse und eine Halbwellenplatte vor dem Resonator dienen der Moden- und Polarisationsanpassung. Als nichtlineares Medium kommt ein brewstergeschnittener (Typ I)-kritisch-winkelphasenangepasster Lithiumtriborat Kristall zum Einsatz. Die mit diesem System maximal erreichte Ausgangsleistung bei 407,9 nm beträgt 700 mW.

3.1.3 Grünes Lasersystem bei 540 nm

Die Wellenlänge des dritten Fundamentallasers bestimmt, bei erfüllter Zwei-Photonen Resonanzbedingung, die Wellenlänge des VUV Strahls. Je nach Anwendung [37,55,84] kommen hier Wellenlängen zwischen 540 nm und 555 nm zum Einsatz, wobei die für Lyman- α benötigte Wellenlänge bei 545,5 nm liegt. Dieser Wellenlängenbereich kann durch die Frequenzverdopplung von Ytterbium-dotierten Faserverstärkersystemen abgedeckt werden.

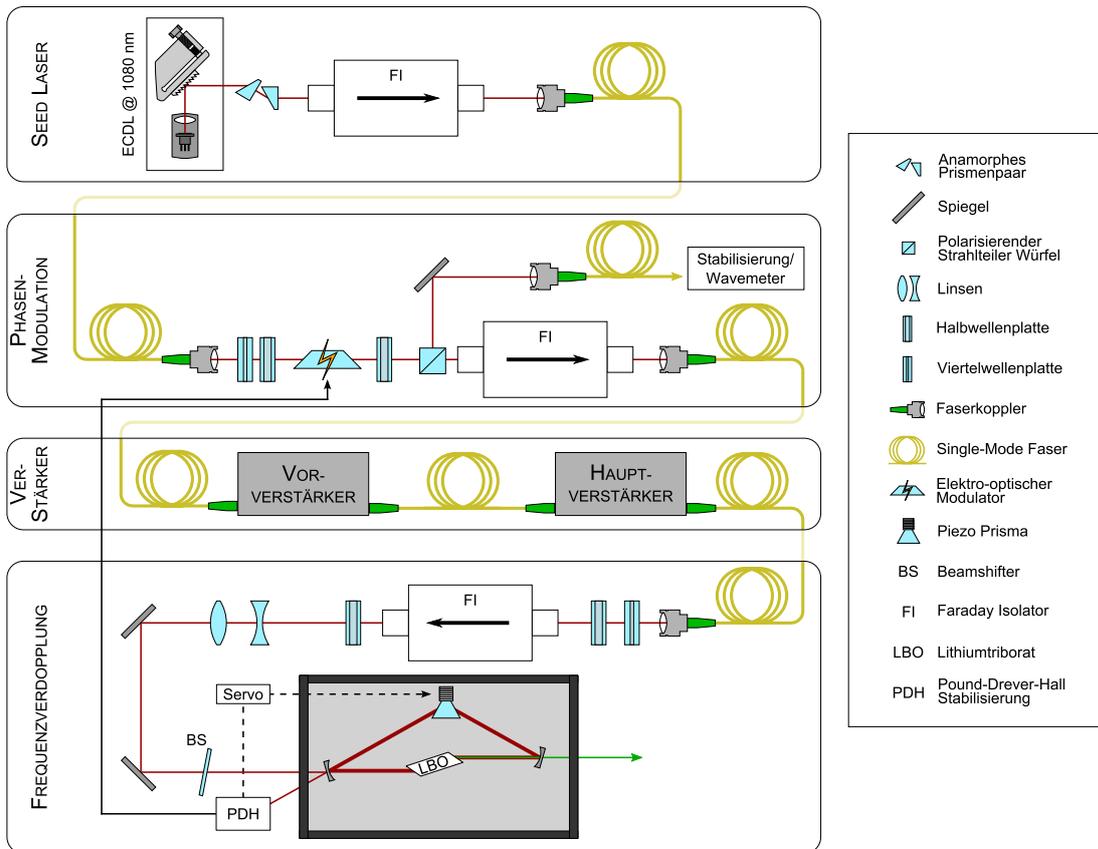


Abbildung 3.7: Schematischer Aufbau des grünen Lasersystems.

Dem Signal-Licht eines ECDLs bei 1080 nm werden in einem EOM Seitenbänder für eine PDH Stabilisierung aufmoduliert. Nach Erhöhung der Leistung in zwei Faserverstärkern schließt sich die Frequenzverdopplung in einem externen Delta-Resonator an.

Das in dieser Arbeit verwendete System bei 540 nm ist ähnlich dem UV System als ein modulares, mehrstufiges Verstärkersystem aufgebaut. Es basiert auf einem schmalbandigen Seed-Laser mit zwei angeschlossenen Faserverstärkerstufen und entspricht bis auf die Seed-Quelle dem in [122] vorgestellten Aufbau für 545,5 nm. Hier wird statt eines Faseroszillators bei 1091 nm, ein gitterrückgekoppelter Diodenlaser in Littrow-Konfiguration (ECDL) verwendet. Die vorselektierte Laserdiode¹² mit einer frei laufenden Zentralwellenlänge von 1084,5 nm kann über den externen Resonator sowohl bei 1080 nm, als auch bei 1091 nm betrieben werden. Der Gesamtaufbau des grünen Lasers ist in Abbildung 3.7 dargestellt. Der Strahl der Diode wird durch ein anamorphes Prismenpaar geformt und in eine single-mode Faser eingekoppelt. Ein Faraday-Isolator schützt die Diode vor Rückreflexen. Durch den fasergekoppelten Ausbau wird bei Bedarf ein einfa-

¹²Eagleyard: EYP-RWL-1080-00080-0750-SOT01

3. EXPERIMENTELLE REALISIERUNG

ches Tauschen des Seed-Lasersystems gewährleistet. Für die Pound-Drever-Hall Stabilisierung des Verdopplungsresonators werden dem Strahl in einem EOM Seitenbänder aufmoduliert. Die Polarisationsanpassung wird durch eine Kombination aus Halb- und Viertelwellenplatte erreicht. Bei Laserdioden können Seitenbänder auch über eine Strommodulation generiert werden. Diese Möglichkeit gibt es allerdings bei dem ursprünglich in diesem Aufbau verwendeten Faseroszillator¹³, für die Erzeugung von 545,5 nm nicht. Eine weitere Halbwellenplatte und ein polarisierender Strahlteilerwürfel zweigen einen variablen Anteil des Strahls zur Wellenlängenbestimmung und derzeit noch nicht implementierten aktiven Frequenzstabilisierung ab. Ein Faraday-Isolator im Hauptstrahlengang schützt das Seed-System vor den sich anschließenden faserverintegrierten Verstärkerstufen. Die typischerweise 5 mW Signal-Leistung werden in zwei kommerziellen Ytterbium Faserverstärkern¹⁴ sukzessiv verstärkt. Diese können eine Ausgangsleistung von bis zu 9 W liefern. Ein weiterer Faraday-Isolator soll verhindern, dass Reflexe aus dem nachfolgenden Aufbau die Verstärker in Rückrichtung injizieren und beschädigen.

Die Frequenzverdopplung findet in einem kommerziellen¹⁵ Delta-Resonator [142] statt, der für die hohen infraroten Leistungen modifiziert wurde (Details siehe [122]). Die präzise Anpassung der Resonatorlänge wird hier mittels eines, auf eine Piezokeramik aufgebracht Umlenkprisma realisiert. Die Delta-Konfiguration hat wegen des kompakten Aufbaus eine hohe mechanische Stabilität. Der geringe Umlaufweg und die damit verbundene große Linienbreite bei gegebener Finnesse machen den Resonator intrinsisch unanfälliger für Frequenzschwankungen. Zur Modenanpassung dient ein sphärisches Teleskop und ein Strahlschieber (Beamshifter), der einen variablen Strahlversatz erzeugt. Die Frequenzverdopplung findet in einem Brewstergeschnittenen (Typ I)-kritisch-winkelphasenangepasstem Lithiumtriborat (LBO) Kristall statt. Mit dem Faseroszillator als Seed-Quelle wurde aus 8,3 W, die nach dem letzten Isolator zur Verfügung stehen, eine grüne Leistung von 4,1 W generiert.

Für das System bei 540 nm wurde das volle Leistungspotential des Aufbaus noch nicht ausgeschöpft. Wegen der mit einer Zerstörung der Faserfacetten einhergehenden Fehleranfälligkeit des Verstärkersystems bei hohen Intensitäten, wird dieses typischerweise bei moderaten Leistungen von $< 1,5$ W betrieben, was grüne Leistungen von bis etwa 500 mW liefert. Um unabhängig von den langen Reparaturzeiten des Herstellers zu sein, wurde in der Gruppe zusätzlich ein eigenes Faserverstärkersystem aufgebaut [123]. Dieses erreicht in zwei Verstärkerstufen bis zu 30 W infrarote Ausgangsleistung bei 1091 nm, die zu 20 W im grünen verdoppelt werden können [124,126].

¹³Koheras: Adjustic - 120 mW @ 1091 nm

¹⁴Koheras: Boostik

¹⁵Spectra Physics: Wavetrain

3.2 Einkopplung in die Hohlleiter

Hohlleitern haben wegen der Notwendigkeit hoher Fresnel-Reflektivität an der Kern-Mantel-Grenze eine geringe Winkelakzeptanz bei der Einkopplung. Während die numerische Apertur NA von konventionellen single-mode Fasern im Bereich von $0,05 < NA < 0,4$ liegt, gelten für Hohlleitern Werte zwischen $0,01 < NA < 0,05$ [143]. Entsprechende Sorgfalt muss bei der Überlagerung der drei Fundamentalstrahlen erfolgen.

Der schematische Aufbau der Strahlüberlagerung ist in Abbildung 3.8 skizziert. Die Größe aller drei Strahlen in tangentialer und sagittaler Orientierung wird

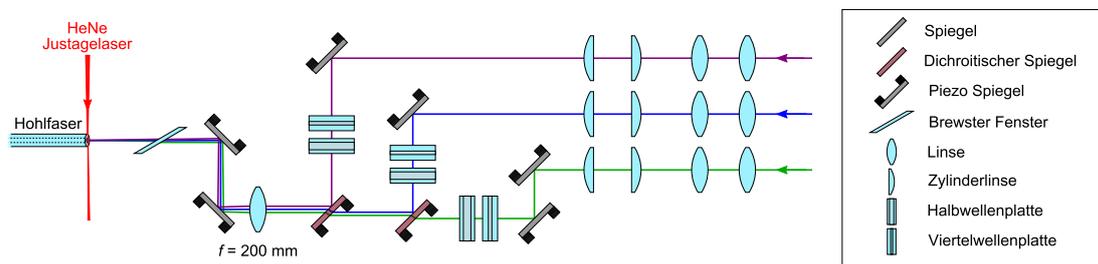


Abbildung 3.8: Strahlüberlagerung zur Einkopplung in die Hohlleiter. Nach Strahlformung und Polarisationsanpassung werden die Fundamentalen an dichroitischen Spiegeln überlagert. Piezo-betriebene Spiegelhalter dienen der Feinjustage. Die Fokussierung erfolgt über eine 200 mm brennweitige Linse. Das Brewsterfenster repräsentiert das Einkoppelfenster der Vakuumkammer. Als Justagehilfe bei der Einkopplung wird der Ort der Foki mit einem HeNe Laser markiert.

über sphärische und Zylinderlinsenteleskope angepasst. Durch eine Kombination aus Viertel- und Halbwellenplatten werden die Laserstrahlen p-polarisiert, und an dichroitischen Spiegel überlagert. Über jeweils zwei Piezo-betriebene Spiegelhalter kann jeder Fundamentalstrahl unabhängig von den anderen sehr fein justiert, und so jede Einkopplung separat optimiert werden. Die Strahlen werden durch eine, für alle drei Wellenlängen antireflex-beschichtete, Linse mit einer nominalen Brennweite von 200 mm fokussiert. Hinter der Linse ermöglichen zwei weitere Piezospiegel, die Einkopplung aller drei Strahlen gemeinsam zu verändern. Da eine Vermessung der Strahlen innerhalb der Vakuumkammer nicht möglich ist, werden die Foki außerhalb der Apparatur charakterisiert. Ein Brewsterfenster welches identisch mit dem Einkoppelfenster der Vakuumapparatur ist, befindet sich ebenfalls im Strahlengang. Dies ist wichtig, da es im konvergenten Strahlabschnitt neben einem Strahlversatz auch einen Astigmatismus hervorruft, welcher kompensiert werden muss. Der Fokus wird mit Hilfe eines Helium-Neon Lasers (HeNe) senkrecht zum Strahlengang der Fundamentallaser markiert. In der Vakuumkammer kann dann die Faser an die durch den Hilfs laser markierte Position

verschoben werden, was einen guten Ausgangspunkt für die Einkopplung darstellt.

3.2.1 Strahlqualität und Überlagerung

Die optimale Strahlgröße für die Einkopplung eines Gaußstrahls in die EH_{11} Mode einer Hohlleiter mit $a = 25 \mu\text{m}$ Kernradius beträgt $w = 0,64a = 16 \mu\text{m}$ (vergleiche Kapitel 2.2.2). Für eine optimale Anpassung der Strahlradien und longitudinale Überlagerung der Foki müssen das Divergenzverhalten und die unterschiedliche Brennweite der Fokussierungslinse bei den drei Wellenlängen, der im Einkopplungsfenster hervorgerufene Astigmatismus sowie die Strahlqualität berücksichtigt werden.

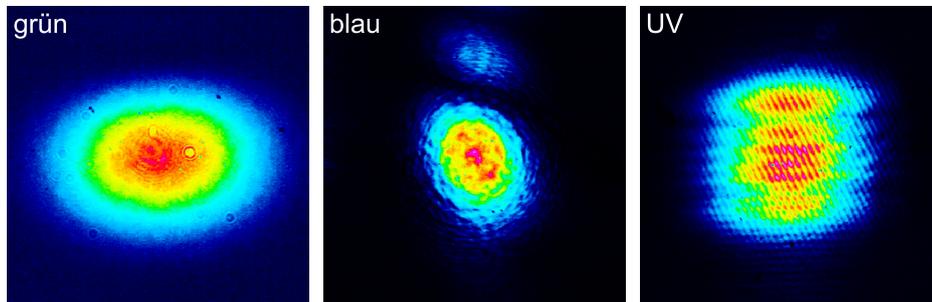


Abbildung 3.9: Strahlprofile der drei Fundamentallaserstrahlen. Transversale Intensitätsprofile der drei Fundamentalstrahlen, aufgenommen mit einer Strahlprofilkamera, hinter den Verdopplungsresonatoren.

Abbildung 3.9 zeigt die Strahlprofile der Fundamentalstrahlen kurz hinter den Verdopplungsresonatoren. Die Profile sind durch den *walk-off* Effekt bei der Winkelphasenanpassung unterschiedlich stark beeinflusst. Während der grüne Strahl nur eine leichte Elliptizität, mit annähernd gaußförmigem Profil aufweist, ist der UV Strahl durch Interferenzeffekte deutlich verformt. Der *walk-off* ist ein Effekt, der bei kritischer Phasen Anpassung in doppelbrechenden Kristallen auftritt. Er wird anhand von Abbildung 3.10 illustriert. Der unter dem Brewsterwinkel α_B auf den nichtlinearen Kristall treffende, p-polarisierte Fundamentalstrahl (rot) propagiert als ordentlicher Strahl durch das doppelbrechende Medium. Seine Polarisation steht senkrecht auf der durch die optische Achse \mathbf{c} und den Wellenvektor \mathbf{k}_o aufgespannten Ebene (hier: x - y -Ebene). Brechungsindex n_o und Poyntingvektor \mathbf{S}_o sind unabhängig vom Winkel ξ zwischen optischer Achse und Wellenvektor \mathbf{k}_o . Bei Typ I Frequenzverdopplung wird die harmonische Welle (grün) als Strahl außerordentlicher Polarisation erzeugt, weshalb \mathbf{k}_{ao} (Normale auf den Phasenfronten) und \mathbf{S}_{ao} (Richtung des Energieflusses) im *walk-off* Winkel ρ auseinanderlaufen. Dies führt neben der Limitierung der Wechselwirkungszone zu der beobachteten Verformung der transversalen Profile in Richtung des *walk-off* Winkels.

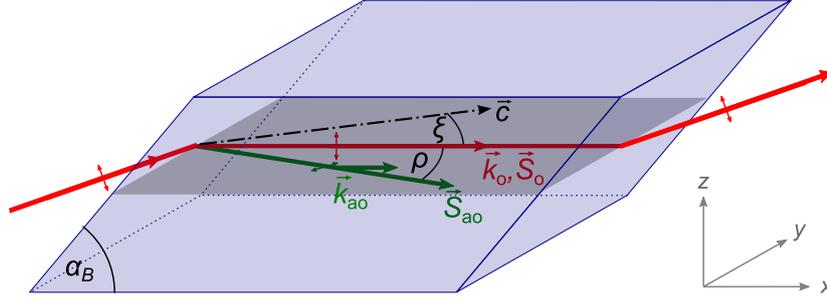


Abbildung 3.10: Walk-off Effekt bei Frequenzverdopplung. Propagation von ordentlich (o) polarisiertem Fundamentalstrahl (rot) und außerordentlich (ao) polarisierter harmonischer Welle (grün) durch einen winkelphasenangepassten nichtlinearen Kristall. ξ bezeichnet den Winkel zur optischen Achse c und α_B den Brewster Winkel. Die Poyntingvektoren \mathbf{S} beider Strahlen laufen unter dem walk-off Winkel ρ auseinander. Die Wellenvektoren sind mit \mathbf{k} bezeichnet, die Polarisation der Strahlen ist mit Doppelpfeilen angedeutet.

Für die hier betrachteten Strahlen betragen die Winkel $\rho_{\text{LBO}}(540 \text{ nm}) = 5,6 \text{ mrad}$, $\rho_{\text{LBO}}(408 \text{ nm}) = 15,7 \text{ mrad}$ und $\rho_{\text{BBO}}(254 \text{ nm}) = 84,7 \text{ mrad}$, was die unterschiedliche Ausprägung des Effektes in Abbildung 3.9 widerspiegelt.

Ein weit verbreitetes Konzept zur Beschreibung der Strahlqualität von Laserstrahlen ist das der Beugungsmaßzahl M^2 und des *eingebetteten Gaußstrahls* [144]. Die Beugungsmaßzahl ist definiert als das Produkt des halben Strahldivergenzwinkels θ mit der Strahltaile w_0 im Fokus (Strahlparameterprodukt), normiert auf das Strahlparameterprodukt λ/π eines beugungslimitierten Gaußstrahls:

$$M^2 = \theta w_0 \frac{\pi}{\lambda}. \quad (3.2)$$

Hierbei bezeichnet λ die Wellenlänge des Lasers. Folglich gilt für einen idealen Gaußstrahl der minimale Wert $M^2 = 1$. Das Bild des eingebetteten Gaußstrahls ist eine Möglichkeit optische Systeme für Strahlen mit $M^2 > 1$ zu planen und wird an Abbildung 3.11 veranschaulicht. Innerhalb des realen Strahls, mit einem Fokus bei $z = 0$, kann man sich einen beugungsbegrenzten Gaußstrahl mit einem Strahlradius

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad \text{mit} \quad z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}, \quad (3.3a)$$

und Divergenzhalbwinkel

$$\theta = \frac{\lambda}{\pi w_0}, \quad (3.3b)$$

vorstellen. Strahlradius und Divergenzwinkel des realen Strahls sind an jedem Ort jeweils M -mal größer. Es ist anzumerken, dass der eingebettete Strahl kei-

3. EXPERIMENTELLE REALISIERUNG

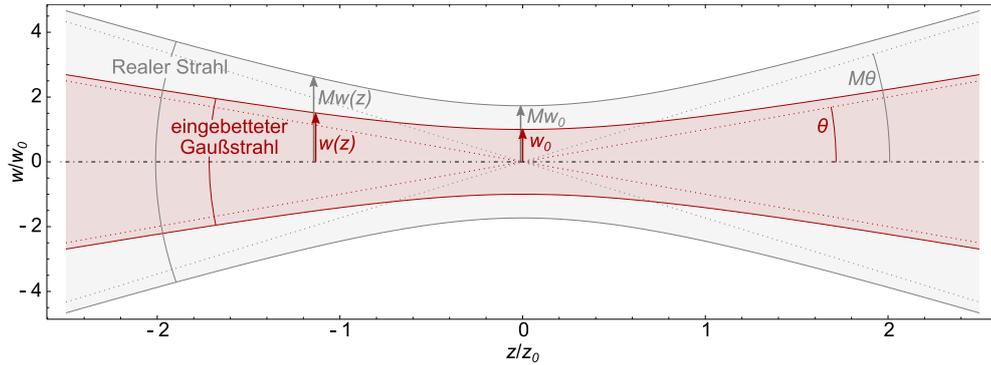


Abbildung 3.11: Eingebetteter Gaußstrahl. Der in einem realen Strahl (grau) verlaufende eingebettete Gaußstrahl (rot) hat an jedem Ort z einen M -mal kleineren Divergenzhalfwinkel θ und Strahlradius $w(z)$.

ne zwangsläufige physikalische Bedeutung hat, sondern ein hypothetisches Konstrukt zur Berechnung der Strahlpropagation durch ein optisches System darstellt.

Die angestrebte Strahlgröße von $w_0 = 16 \mu\text{m}$ im Fokus liegt unterhalb der Auflösung üblicher Strahlprofilkameras, weshalb zur Vermessung die *knife-edge* Methode [145] verwendet wird. In der Nähe des Fokus wird für verschiedene Positionen entlang der Propagationsrichtung der Leistungsinhalt beim Durchgang einer Klinge, transversal zum Strahl, gemessen. Den Strahlradius erhält man aus der Anpassung einer Gaußschen Fehlerfunktion an die integrale Intensitätsverteilung.

Tabelle 3.1: Ergebnisse der knife-edge Messung. Δz_0 : Abstand zum mittleren Fokus, w_{exp} : experimentell gemessene Strahltaile, w_0 : eingebettete Strahltaile, M^2 : Beugungsmaßzahl.

Laser	Achse	Δz_0 [μm]	w_{exp} [μm]	w_0 [μm]	M^2
grün	tang.	-43	16,4	16,4	1,00
	sag.	-42	16,1	16,1	1,01
blau	tang.	-70	18,4	17,1	1,17
	sag.	-55	17,7	16,2	1,21
UV	tang.	66	20,1	17,6	1,30
	sag.	144	18,6	13,6	1,88

Der gemessene Strahlradius in tangentialer und sagittaler Richtung ist in Abbildung 3.12 für die drei Fundamentallaser über der Position in Strahlrichtung aufgetragen. Den Daten wurden Strahlverläufe mit M^2 als freiem Parameter angepasst

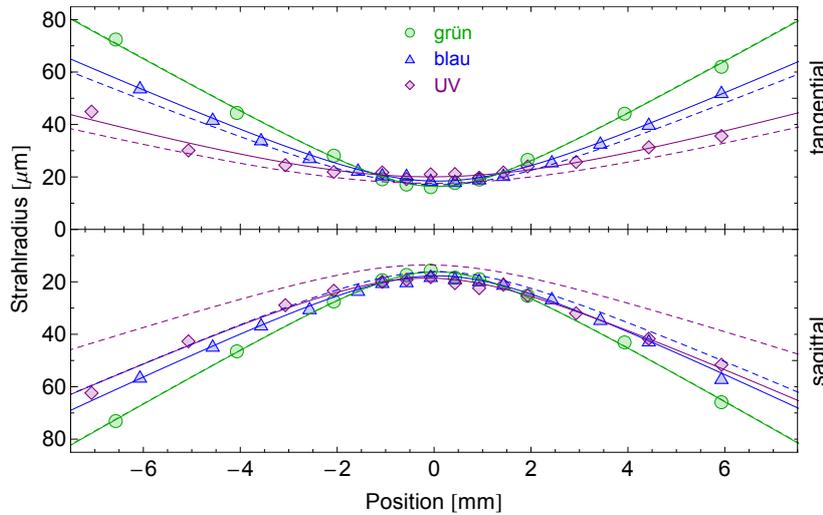


Abbildung 3.12: Überlagerung der Fundamentalstrahlen. Aus der knife-edge Messung bestimmter Strahlradius als Funktion der Position in tangentialer und sagittaler Richtung. Durchgezogene Linie: M^2 -Fit an die Daten; gestrichelte Linie: zugehöriger eingebetteter Gaußstrahl.

(durchgezogene Linien), die zugehörigen eingebetteten Strahlen sind gestrichelt dargestellt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst.

Obwohl dem eingebetteten Strahl physikalisch nicht die Bedeutung der in einem realen Strahl enthaltenen Grundmode zukommt, kann gezeigt werden, dass bei $M^2 < 2$ mindestens 50% des Strahls in der TEM_{00} Mode vorliegen [89]. Deshalb wurde angestrebt eine eingebettete Strahlweite w_0 von $16 \mu\text{m}$ einzustellen, was für alle Strahlen bis auf wenige μm Fehler erreicht wird. Die longitudinale Überlagerung ist mit einer Standardabweichung von $\sigma_{z_0} = 85 \mu\text{m}$ ebenfalls sehr gut. Während der grüne Strahl als beugungslimitiert angesehen werden kann, haben der blaue und UV Strahl ein erwartungsgemäß höheres M^2 , auf Grund des walk-off Effekts.

3.2.2 Einkoppeleffizienz und Propagationsverluste

Die Einkoppeleffizienz η in die Hohlleiter kann über die Transmission T unter Berücksichtigung der Propagationsverluste α entlang der Faser aus

$$T = \eta e^{-\alpha L}, \quad (3.4)$$

bestimmt werden, wobei L die Länge der Faser ist. Dafür ist eine genaue Kenntnis dieser Verluste notwendig. Neben den in Kapitel 2.2.2 theoretisch erfassten Verlusten kann Oberflächenrauigkeit der Faserinnenwand weitere Abschwächung herbeiführen, wobei diese Problematik für kürzere Wellenlängen relevanter ist [146]. Um derartige zusätzliche Verluste ausschließen zu können, wird die Transmissi-

on durch eine freistehende Hohlfaser¹⁶ mit einem Kerndurchmesser von $50\ \mu\text{m}$ gemessen, und die Faser bei gleich bleibender Einkopplung von der Austritts-facette her gekürzt. An die in Abbildung 3.13 gezeigten Messwerte für die drei Fundamentalstrahlen sind exponentielle Abklingkurven angepasst worden. Dabei

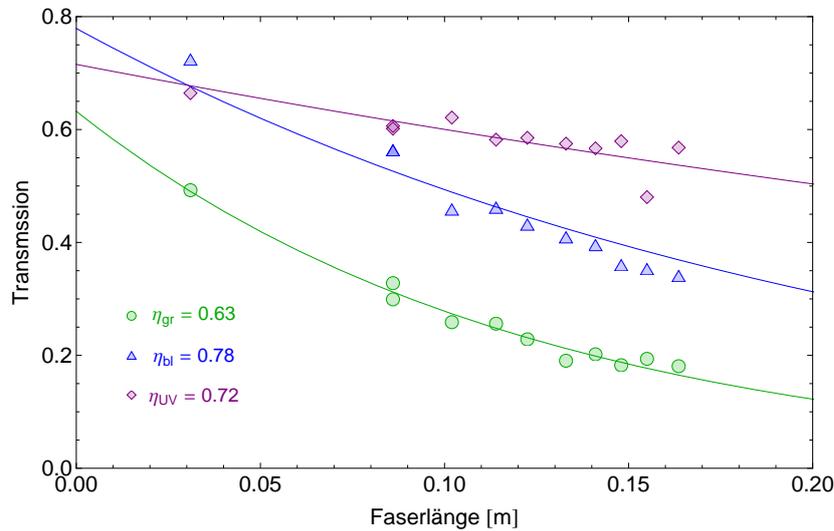


Abbildung 3.13: Propagationsverluste und Einkoppeleffizienz. Hohlfasertransmission bei unterschiedlicher Faserlänge. Für die Anpassung an die Werte (durchgezogene Linie) wurden die theoretischen Verlustkoeffizienten angenommen.

wurde der nach Gleichung (2.24b) theoretische Verlustkoeffizient angenommen, womit die Einkoppeleffizienz η als einziger freier Parameter bleibt. Letztere liegen zwischen 63% und 78%. Unter Berücksichtigung der Streuung der Daten, sind die Theoriewerte für α gut mit der Messung vereinbar. Insbesondere beim UV Strahl, welcher von etwaigen zusätzlichen Verlusten am stärksten beeinflusst wäre, ist keine signifikante Diskrepanz festzustellen.

3.2.3 Metallbedampfte Faserfacetten

Die Optimierung der Einkoppeleffizienz in eine Hohlfaser ist nicht zwangsläufig äquivalent mit einer Leistungsoptimierung am Ende der Faser: Wird der Kern nicht getroffen oder stimmt die Strahlgröße nicht, wird der nicht eingekoppelte Teil des Lichtes im Glasmantel der Faser durch innere Totalreflexion geleitet. Dieses mantelgeführte Licht erleidet praktisch keine Verluste und überstrahlt am Faserausgang als ungeordnetes Streumuster das Kernlicht. Dieses lässt sich durch die Verwendung einer Apertur weitgehend ausblenden, doch ein Teil des

¹⁶Polymicro: TSU050375

Lichtes kann durch die Blende abgebildet werden und verfälscht eine etwaige Leistungsmessung.

Um ein systematisches Vorgehen bei der Einkopplung zu ermöglichen, wurden Versuche zur thermischen Bedampfung der Faserfacetten mit Metallen durchgeführt. Eine dünne Metallschicht soll dabei das nicht eingekoppelte Licht reflektiv oder absorptiv blockieren.

Hierfür wurde ein Verdampfersystem aufgebaut, welches in Abbildung 3.14 skizziert ist. Der komplette Aufbau kann auf einen Druck von etwa 10^{-6} mbar ab-

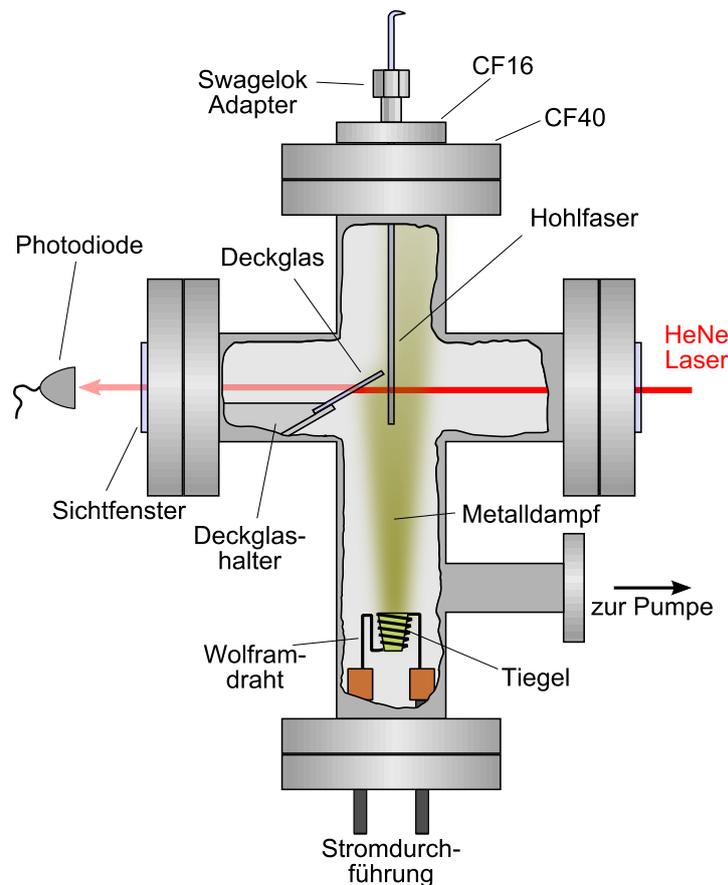


Abbildung 3.14: Skizze der Vakuumapparatur zur thermischen Verdampfung von Metallen. Das Metall wird in einem Tiegel verdampft und schlägt sich auf die darüber gehaltenen Optiken nieder. Die auf einer Seite zugeschmolzene Faser wird über einen Swagelok Adapter in der Kammer gehalten. Die mit einer Photodiode aufgezeichnete Transmission eines HeNe Laserstrahls durch ein Deckplättchen in der Nähe der Faser gibt Aufschluss über die optische Dichte der Metallschicht. Nicht maßstabsgetreu.

gepumpt werden. Der Verdampfer selbst besteht aus einem mit wenigen Gramm Metall-Pellets befüllten Aluminiumoxid Tiegel, welcher von einem Wolframdraht-

3. EXPERIMENTELLE REALISIERUNG

korb¹⁷ gehalten wird. Durch eine Stromdurchführung an der Unterseite der Apparatur können über 50 A durch den Wolframdraht geleitet werden, womit Temperaturen bis etwa 1800 °C erreicht werden. Das evaporierte Metall breitet sich kegelförmig nach oben aus und schlägt sich auf der Faserfacette nieder. Für die Dichtung der Hohlleiter an das Vakuumsystem wird die in [147] beschriebene Quetschdichtung in einem Swagelok Adapter angewandt. Die Hohlleiter wird für diesen Prozess auf einer Seite zugeschmolzen. Wegen der hohen auftretenden Temperaturen wird als Material für die Druckferrulen nicht Teflon, sondern die Thermoplastik Lauramid verwendet (Details siehe [99]). Der Kernbohrdurchmesser der Ferrule beträgt 400 µm. Ein unter 30 ° zur Horizontalen gehaltenes Deckglas in der Apparatur wird zeitgleich mit der Faser bedampft. Die mit einer Photodiode aufgezeichnete Transmission eines HeNe Lasers durch dieses Plättchen dient als Indikator für die Opazität der Schicht.

Lichtmikroskopische Aufnahmen der Faserfacetten von bedampften und unbedampften Hohlleitern sind exemplarisch in Abbildung 3.15 gezeigt. Es wurden Versuche mit Gold und Aluminium unternommen. Die Schichten sind stabil ge-

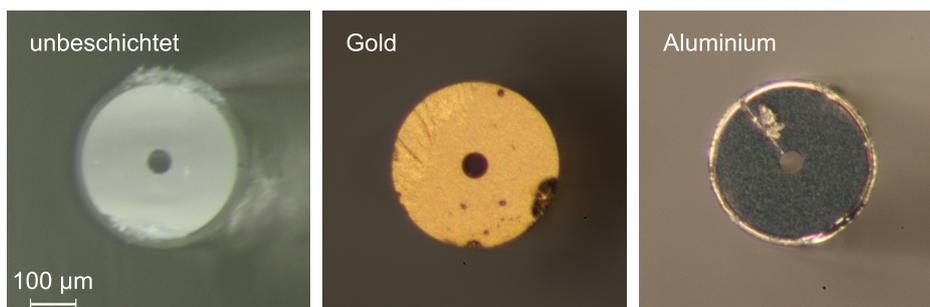


Abbildung 3.15: Metallbedampfte Fasern. Lichtmikroskopische Aufnahmen der Faserfacetten von Hohlleitern mit 50 µm Kerndurchmesser und ~350 µm Außendurchmesser.

genüber mechanischer Einwirkung (Reinigung mit optischen Tüchern), es wurde jedoch beobachtet, dass hohe Intensitäten sie lokal zerstören können. Gold ist diesbezüglich anfälliger als Aluminium, da es im blauen bis ultravioletten Wellenlängenbereich absorbiert. Als weitere Maßnahme zum Schutz der Schichten werden diese auf der Austrittsfläche verwendet, was die auftretenden Leistungsdichten deutlich reduziert.

Eine Transmissionskurve, welche während einer Bedampfung mit Aluminium aufgezeichnet wurde, ist exemplarisch in Abbildung 3.16 gezeigt. Die Stromstärke wird dafür langsam erhöht, bis bei etwa 50 A die Evaporation einsetzt. Die Schichtdicke, welche sich auf der Faser bildet, wird unter Berücksichtigung der Geometrie der Anordnung, sowie der Beschichtungsdauer, aus dem theoretischen Absorptionskoeffizienten [148,149] und einer exponentiellen Anpassung (rote Kurve) an die

¹⁷Bestehend aus drei verdrehten Wolframdrähten mit einem Durchmesser von jeweils 0,025 ″.

Daten (schwarze Kreise) abgeschätzt. Da das Reflexionsverhalten dünner Schichten sehr komplex ist, wird nur das Verhalten für lange Zeiten angefitet. Typische Schichtdicken liegen bei 50-100 nm und sind für den verwendeten HeNe Strahl optisch dicht. Im gezeigten Beispiel beträgt die Schichtdicke nach einer Evaporationszeit von 25 Minuten etwa 60 nm. Die in der Transmissionsmessung detektierte Restintensität für lange Zeiten stammt von der Schwarzkörperstrahlung des heißen Wolframdrahtes und geht auf Null zurück, wenn der Heizstrom abgeschaltet wird.

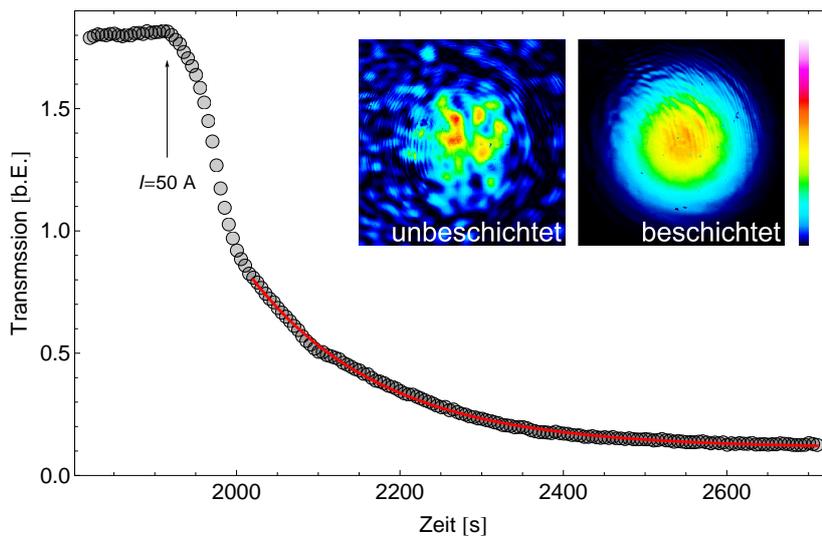


Abbildung 3.16: Transmissionsmessung während einer Aluminium Beschichtung. Ab einer Stromstärke von 50 A setzt die Evaporation ein und die Transmission durch das Deckplättchen nimmt ab. Über einen exponentiellen Fit (rote Kurve) an einen Teil der Daten (schwarze Kreise) kann die Schichtdicke abgeschätzt werden. Die Strahlprofile zeigen den grünen Strahl hinter einer Faser mit und ohne Beschichtung, bei leichter Dejustage.

Die Strahlprofile in Abbildung 3.16 zeigen den grünen Strahl nach Austritt aus einer Hohlleiter im beschichteten und unbeschichteten Fall, bei leicht dejustierter Einkopplung. Ohne Beschichtung ist die Kernmode von einem ungeordneten Interferenzmuster überlagert. Bei der bedampften Faser ist trotz Dejustage kein erhöhter Untergrund festzustellen und der Strahl hat ein gaußsches Profil.

Die erreichbaren Einkoppeleffizienzen in bedampften Fasern sind etwas kleiner als die in unbedampften. Worin dies begründet liegt muss noch im Detail untersucht werden. Eine mögliche Erklärung können geringe Mengen Metall sein, welche sich beim Bedampfen an der Kerninnenwand niederschlagen und dort zu Oberflächenunebenheiten führen. Die zusätzlichen Verluste können dann bei einer Transmissionsmessung als geringere Einkoppeleffizienz missinterpretiert werden. Sollte sich diese Vermutung bestätigen, muss die Verwendung bedampfter Fasern kritisch überdacht werden, da die angesprochenen Verluste für kurzwelliges Licht

am signifikantesten sind. So wurde in [146] beobachtet, dass Aluminiumbeschichtungen der Faserinnenwand mit einer Oberflächenrauigkeit¹⁸ von 10 nm für Wellenlängen unterhalb von 150 nm signifikante, zusätzliche Verluste herbeiführt.

3.3 Vakuumsystem

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit der Beschreibung der Vakuumanlage, in welcher die Erzeugung und der Nachweis von VUV Strahlung stattfindet. Das System ist dabei in zwei Abschnitte unterteilt: Eine Vierwellenmischkammer, in welcher die Hohlfaser krümmungsfrei gehalten wird und eine homogene Quecksilberdampflichtquelle erzeugt werden kann, sowie eine Detektionskammer. In Letztergenannter werden die fundamentalen Strahlen von dem erzeugten VUV Licht dispersiv getrennt und dieses über ein Einzel-Photonen sensitives Nachweissystem detektiert. Im Gegensatz zur Vierwellenmischkammer ist die Detektionskammer frei von Quecksilber.

Das Diagramm 3.17 skizziert den groben Aufbau des Vakuumsystems. Der Pump-

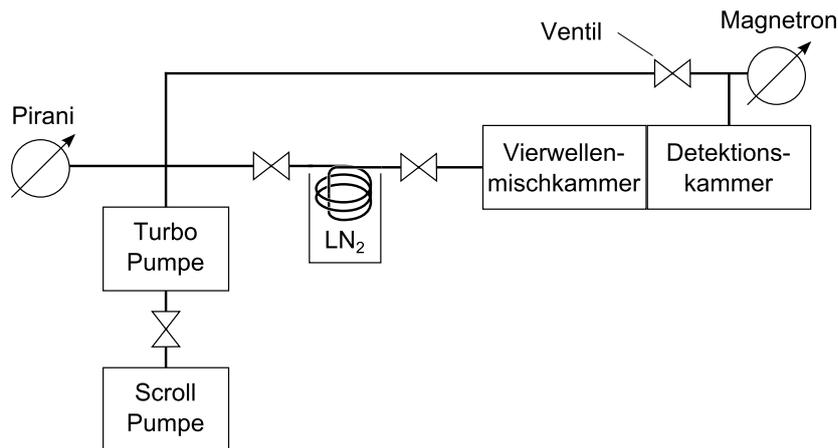


Abbildung 3.17: Übersicht über das Vakuumsystem. Einzelne Abschnitte des Systems lassen sich über Ventile abtrennen. Eine Kühlfalle (LN₂) schützt das Pumpensystem vor Quecksilber aus der dahinter liegenden Kammer.

stand, bestehend aus einer Scroll-Pumpe¹⁹ und einer Turbomolekularpumpe²⁰, ist in der Lage das System bis auf einen Druck von wenigen 10^{-7} mbar zu evakuieren. Ein Ausheizen der Apparatur zur weiteren Druckverbesserung ist auf Grund des Quecksilbers in der Vierwellenmischkammer nicht möglich. Ein Druck von $< 10^{-4}$ mbar ist jedoch ausreichend, um VUV Absorption an Restgasatomen

¹⁸mittlere quadratische Abweichung

¹⁹Edwards: nXDS 10i

²⁰Edwards: EXT75DX

vernachlässigen zu können [150]. Ein Pirani-Manometer²¹ und ein Magnetron²² dienen der Druckmessung im Fein- beziehungsweise Hochvakuumbereich. Der mit Quecksilber befüllte Teil der Apparatur befindet sich hinter einer Flüssigstickstoff-Kühlfalle, um zu verhindern, dass Quecksilber ins Pumpensystem gelangt. Vierwellenmisch- und Detektionskammer werden in den folgenden Abschnitten im Detail beschrieben. Zunächst wird jedoch eine spezielle Spektroskopiekammer präsentiert. In dieser wurde im Vorfeld untersucht, ob die für die Phasen Anpassung notwendigen Dampfdrücke innerhalb der Hohl faser erreicht werden können.

3.3.1 Spektroskopiekammer

Der Nachweis von Quecksilber innerhalb der Hohl faser erfolgt über eine Spektroskopie des ultravioletten $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Übergangs bei 253,7 nm. Bei den zur Phasen Anpassung notwendigen Temperaturen im Bereich von 50–100 °C und den damit assoziierten Dichten liegt die Absorptionslänge auf Resonanz deutlich unter 1 mm. Eine Spektroskopie entlang der Faserachse (longitudinal) ist wegen der hohen optischen Dichte demnach nicht möglich. Die Spektroskopie wird deshalb transversal zur Faser durchgeführt. Die verwendete Hohl faser²³ hat einen Kern durchmesser von 50 µm und einen 350 µm durchmessenden Quarzglas mantel, der von einer etwa 10 µm dicken, UV durchlässigen Polyamidschicht umgeben ist. Die Hohl faser verbindet zwei, bis auf Details identische, Vakuumkammern, an welche sie jeweils über einen Swagelok Adapter mit einer Ferrule aus Lauramid gedichtet ist. Schnittansichten durch eine der Kammern sind in Abbildung 3.18 gezeigt. Die Kammer besteht aus einem CF16-Würfel mit einem etwa 0,5 ml fas-

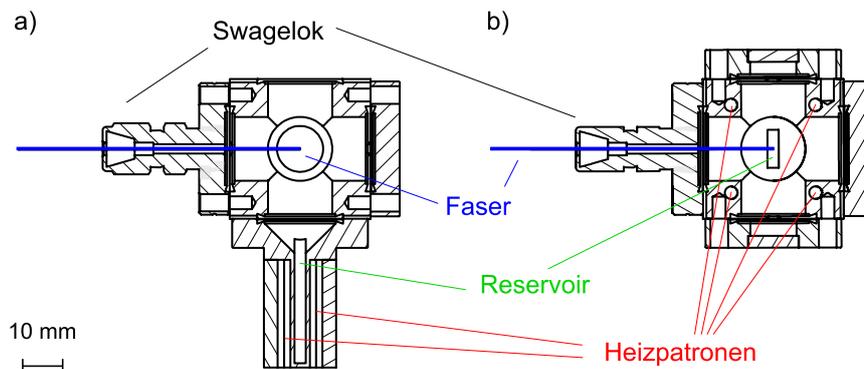


Abbildung 3.18: Schnittansicht der Vakuumkammer. a) Seitenansicht, b) Aufsicht.

senden Quecksilberreservoir an der Unterseite. An der Oberseite ist ein UHV

²¹Edwards: APG100-XLC

²²Edwards: AIM-X

²³Polymicro: TSU050375

3. EXPERIMENTELLE REALISIERUNG

Ventil angeflanscht (nicht abgebildet), hinter welchem sich das Pumpensystem befindet. Die restlichen Seiten sind mit Fenster- oder Bildflanschen verschlossen. Durch sechs Heizpatronen (vier in der Kammer und zwei seitlich des Reservoirs), mit einer maximalen Heizleistung von jeweils 15 W, kann die Kammer auf über 180 °C geheizt werden. Die Temperaturen von Reservoir und Kammer werden dabei getrennt aufgenommen und über einen Mikroprozessorregler auf 0,1 °C genau stabilisiert. Die Dichtung der Faser wird auch durch mehrmaliges Heizen und Abkühlen nicht beeinträchtigt.

In den in diesem Abschnitt beschriebenen Untersuchungen ist nur eine der beiden Kammern mit Quecksilber befüllt, im Folgenden als Hg-Kammer bezeichnet. Für die Spektroskopie wird das durch die Faser verbundene Vakuumkammer-System auf einen Restgasdruck von wenigen 10^{-6} mbar evakuiert. Vor dem Heizen der Hg-Kammer wird diese durch das UHV Ventil vom Pumpensystem getrennt, so dass sie nur noch differentiell über die Faser gepumpt wird. Der schematische Aufbau der Spektroskopie ist in Abbildung 3.19 dargestellt. Als UV Quelle wurde

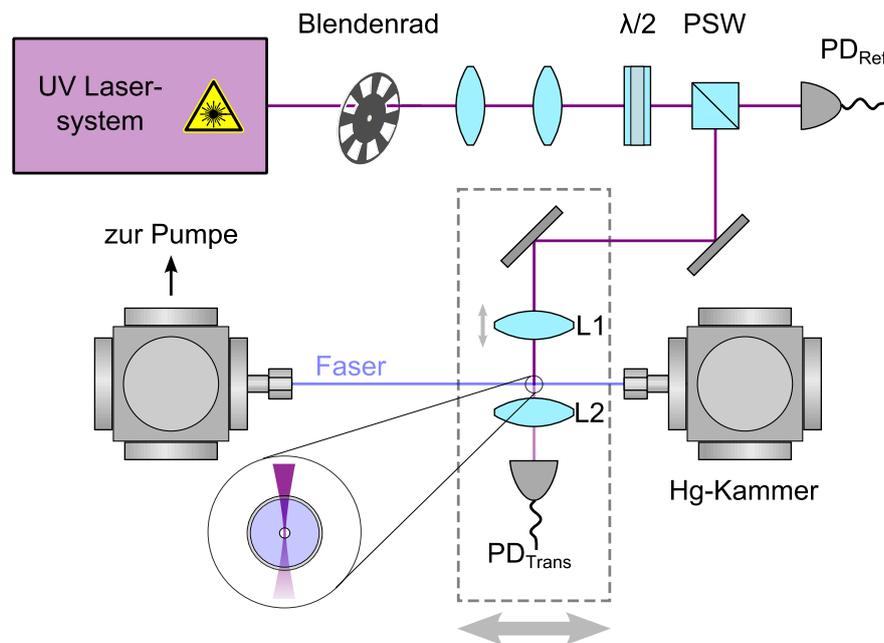


Abbildung 3.19: Aufbau der Hg-Spektroskopie transversal zur Faser. Der zur Lock-in Detektion mit einem Blendenrad modulierte UV Strahl wird über ein Teleskop kollimiert und zur Leistungsnormierung und Spektroskopie aufgeteilt. Die Spektroskopieeinheit (gestrichelter Kasten), bestehend aus Justagespiegel, Fokussierungslinse (L1), Sammellinse (L2) und Photodiode, kann longitudinal zur Faser verschoben werden. Durch die Faser wird heißer Quecksilberdampf von der rechten Vakuumkammer in die linke gepumpt. $\lambda/2$: Halbwellenplatte, PSW: Polarisierender Strahlteilerwürfel, PD: Photodiode.

bei diesen Messungen das Licht des Trapezverstärkers ohne weitere Verstärkung vervierfacht. Der kryogene Faserverstärker stand zum Zeitpunkt der Messungen noch nicht zur Verfügung. Für die Detektion mit einem Lock-in-Verstärker wird das Licht über ein Blendenrad periodisch moduliert. Der Strahl wird durch ein sphärisches Teleskop kollimiert, und mittels einer Kombination aus Halbwellenplatte und polarisierendem Strahlteilerwürfel zwischen Spektroskopie und einer Photodiode zur Leistungsnormierung aufgeteilt. Über eine 50 mm brennweitige Linse (L1) wird das Licht durch den Kern der Hohlleiter fokussiert. Die exakte Positionierung des Fokus innerhalb des Faserkerns wird über Justagespiegel und den Abstand der Linse L1 zur Faser eingestellt. Die Strahlgröße im Fokus beträgt etwa $5\ \mu\text{m}$ und hat damit eine Rayleigh-Länge von $300\ \mu\text{m}$. Dies gewährleistet, dass der Strahl komplett innerhalb des Kerns verläuft und somit auf der ganzen Länge des Kerndurchmessers absorbiert wird. Bei dieser Strahlgröße wird die Sättigungsintensität bereits bei einer Leistung von $8\ \text{nW}$ erreicht (vergleiche Gleichung (3.1)), weshalb die Messungen mit typischerweise $< 5\ \text{nW}$ Leistung durchgeführt wurden. Das transmittierte Licht wird von einer kurzbrennweitigen Linse L2 ($f = 10\ \text{mm}$) aufgesammelt und auf einer Photodiode detektiert. Die gesamte Spektroskopieeinheit (gestrichelter Kasten in Abbildung 3.19) kann entlang der Faserachse verschoben werden, um an verschiedenen Positionen in der Faser zu messen.

Ein Absorptionsspektrum der 6^3P_1 -Resonanz des ^{202}Hg -Isotops bei einer Hg-Kammertemperatur von $T_{\text{Kammer}} = 90\ \text{°C}$ ist in Abbildung 3.20 gezeigt. Zur Be-

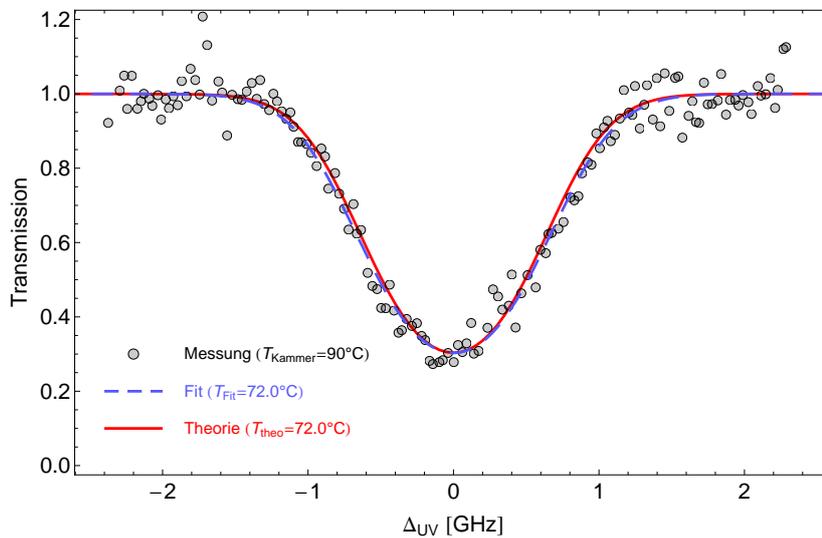


Abbildung 3.20: Hg-Spektroskopie transversal zur Faser. Gemessene, normierte Transmission durch die Hohlleiter (schwarze Kreise) als Funktion der UV-Verstimmung Δ_{UV} zum ^{202}Hg -Isotop. Die blau gestrichelte Kurve ist ein Fit an die Daten, aus welchem die Hg-Dampf-Temperatur bestimmt wird. Die rote Kurve zeigt eine theoretische Rechnung für diese Temperatur.

3. EXPERIMENTELLE REALISIERUNG

stimmung der Dichte wird an die leistungsnormierten Daten eine Funktion der Form

$$f(\nu) = B e^{-A \cdot g(\mu, \delta_L, \sigma_G, \nu)}, \quad (3.5)$$

angepasst. Der Parameter B ist ein Skalierungsfaktor, zur Normierung der Daten auf eine Transmission von 1. Die Linienform $g(\mu, \delta_L, \sigma_G, \nu)$ entspricht einem um μ zentrierten Voigt-Profil mit einer Lorentz-Breite δ_L und einer gaußschen Standardabweichung σ_G . Sie ist bei der Mittenfrequenz $\nu = \mu$ auf 1 normiert, so dass A ein Maß für die Absorptionstiefe auf Resonanz ist. Wegen des geringeren Rechenaufwands wird als Anpassungsfunktion ein erweitertes Pseudo-Voigt-Profil verwendet, dessen maximale Abweichung von einem echten Voigt-Profil bei 0,12 % liegt [151]. Die über die Parameter B und μ skalierten und verschobenen Transmissionsdaten sind in Abbildung 3.20 als Funktion der UV Verstimmung zum ^{202}Hg -Isotop dargestellt (schwarze Kreise). Der Verlauf der Daten wird durch die entsprechend skalierte Anpassungsfunktion (blau gestrichelt) gut wiedergegeben. Aus der Absorptionstiefe kann unter der Annahme einer Absorptionslänge von $50 \mu\text{m}$ und dem nach Kapitel 2.1.1 berechneten linearen Absorptionskoeffizienten die Quecksilberdichte, beziehungsweise Temperatur zu $T_{\text{Fit}} = 72,0^\circ\text{C}$ bestimmt werden. In rot ist der aus dem Imaginärteil von $\chi^{(1)}$ berechnete Kurvenverlauf für eine Temperatur von $T_{\text{theo}} = 72,0^\circ\text{C}$ dargestellt. Nur in den Flanken der Absorptionsmulde sind minimale Unterschiede zu erkennen. Folglich berücksichtigt die theoretische Beschreibung alle relevanten Verbreiterungsmechanismen, was im weiteren genauer quantifiziert werden soll: Die theoretische Breite der Absorptionslinie setzt sich aus den Linienbreiten der homogenen und inhomogenen Verbreiterungsmechanismen zusammen. Diese kann mittels der auf 0,02 % genauen Näherungsformel [152]

$$\Delta_V = 0,5346\Delta_L + \sqrt{0,2166\Delta_L^2 + \Delta_G^2}, \quad (3.6)$$

berechnet werden. Dabei bezeichnen $\Delta_{V,L,G}$ jeweils die vollen Halbwertsbreiten von Voigt-, Lorentz- und Gauß-Profil, und sind mit den Größen δ_L und σ_G über die Beziehungen

$$\Delta_G = 2\sqrt{2\ln(2)}\sigma_G, \quad (3.7a)$$

$$\Delta_L = 2\delta_L, \quad (3.7b)$$

verknüpft (vergleiche Anhang B). Die theoretische Halbwertsbreite der Absorptionslinie, zusammengesetzt aus natürlicher Linienbreite, Druck- und Dopplerverbreiterung, beträgt nach Gleichung (3.6) $\Delta_{\text{theo}} = 1,11 \text{ GHz}$ und stimmt mit der Breite der roten Theoriekurve in Abbildung 3.20 überein. Darin nicht enthalten sind Einflüsse von Wandstoß- und Durchflugzeitverbreiterung. Diese belaufen sich auf $\Delta_{\text{Wand}} = 7 \text{ MHz}$, beziehungsweise $\Delta_{\text{DFZ}} = 20 \text{ MHz}$ und würden additiv zu Δ_L beitragen. Die Breite der an die Daten angepassten Kurve ist mit $\Delta_{\text{Fit}} = 1,16 \text{ GHz}$ nur unwesentlich größer als der theoretische Wert, so dass weitere Verbreitungs-

mechanismen auch experimentell ausgeschlossen werden können. Die experimentell bestimmte Temperatur liegt mit 72 °C signifikant unter der eingestellten Kammertemperatur von 90 °C . Diese Diskrepanz hat zwei Ursachen: Zum einen kann es eine Differenz zwischen der Quecksilberdampf­temperatur und der an der Außenseite gemessenen Kammertemperatur geben. Diese kann von einem Temperaturunterschied zwischen Kammerinnen- und -außenseite, sowie dem schlechten Wärmetransport zwischen Quecksilber und den geheizten Oberfläche stammen, bedingt durch die schlechte Benetzung des Edelstahls [73,81]. Zum anderen verursacht der große Druckunterschied zwischen den Kammern einen unilateralen Fluss, welcher einen linearen Dichtegradienten entlang der Faser bewirkt [153,154]. Um dies experimentell zu überprüfen wird die spektroskopische Dichtebestimmung an unterschiedlichen, longitudinalen Faserpositionen durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Messung sind in Abbildung 3.21 zusammengefasst. Die aus den Spektren bestimmte Temperatur, beziehungsweise Dichte

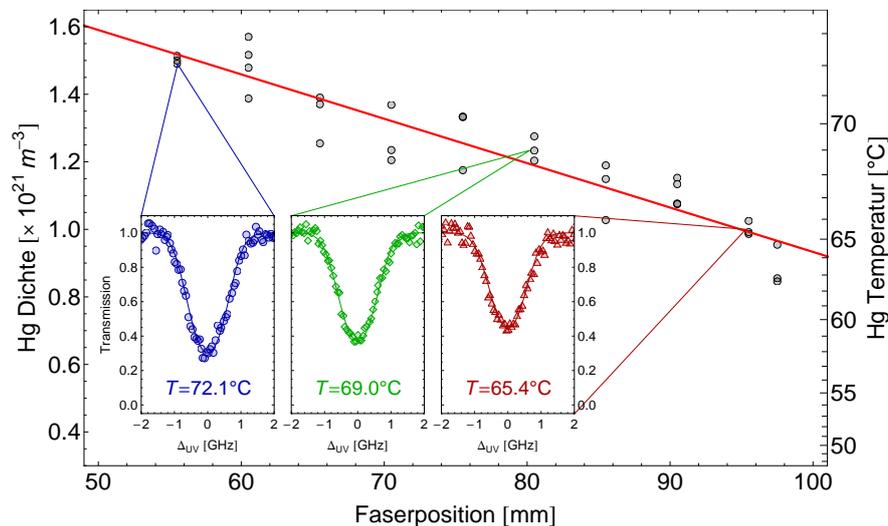


Abbildung 3.21: Transversale Hg-Spektroskopie entlang der Faser. Aus der transversalen Spektroskopie bestimmte Dichte beziehungsweise Temperatur als Funktion der Faserposition (schwarze Kreise). Die rote Linie ist eine Regressionsgerade an die Daten. Exemplarische Spektren zu verschiedenen Messpunkten sind als eingebettete Graphen inkludiert.

ist als Funktion der Faserposition z aufgetragen (schwarze Kreise). Die Position $z = 0\text{ mm}$ entspricht dabei dem Faseranfang innerhalb der Hg-Kammer. Exemplarische Spektren sind einzelnen Messpunkten zugeordnet. An die Daten wurde eine Regressionsgerade angepasst (rote Linie), die den erwarteten Gradienten wiedergibt. Die mittlere relative Abweichung der gemessenen Dichten von der Regressionsgeraden liegen bei $< 5\%$. Extrapoliert man die Temperatur zum Faseranfang erhält man die Quecksilberdampf-Temperatur in der Hg-Kammer. Diese liegt bei $78,8\text{ °C}$.

Die Messungen zeigen, dass die Erzeugung einer ausreichend hohen Dampfdichte innerhalb der Hohlleiter möglich ist. Experimentell konnten keine signifikanten zusätzlichen Linienverbreiterungen festgestellt werden.

Für Experimente zur nichtlinearen Frequenzkonversion ist die Kammerkonstruktion jedoch aus mehreren Gründen ungeeignet: Für die Ausbreitung einer homogenen Dichte entlang der kompletten Faserlänge werden beide Kammern mit Quecksilber befüllt und geheizt. Ohne den durch das Abpumpen hervorgerufenen Druckgradienten gelangt das Quecksilber über Diffusion in die Faser. Es wurde aber beobachtet, dass es ohne ein stetes Pumpen innerhalb der Faser zu Kondensation und Tröpfchenbildung kommt. Dies ist konsistent mit den Beobachtungen von Mason, dass zur Kondensation von Quecksilber ein aus vielen Atomen bestehender Kondensationskeim, sowie eine Oberflächentemperatur nur knapp unterhalb ($\sim 1^\circ\text{C}$) der Dampftemperatur notwendig ist [155]. Ein zusätzliches Heizen der Faser behebt folglich dieses Problem, jedoch ist eine homogene Faserheizung in dieser Anordnung nur unzureichend möglich.

Ferner erfährt die Faser durch die Dichtung mittels der Druckferullen mechanischen Stress und wird tordiert. Dies wirkt sich negativ auf die lichtleitenden Eigenschaften des Wellenleiters aus. So kann beobachtet werden, dass es während des Festziehens einer Faserdichtung, zu einem kompletten Verlust der Grundmode durch Modenmischung kommt. Die EH_{11} -Mode lässt sich auch durch Justage nicht wiederherstellen.

Bei der Konzipierung der, im folgenden Abschnitt vorgestellten, Vierwellenmischkammer wurde entsprechend darauf geachtet, dass die Faser krümmungs- und spannungsfrei gehalten wird, und eine homogene Heizung gewährleistet ist.

3.3.2 Vierwellenmischkammer

In der Vierwellenmischkammer findet die Summenfrequenzmischung in Quecksilber statt. Wie im vorangegangenen Kapitel erörtert wurde, ist dabei eine spannungsfreie Halterung der Faser essenziell.

Eine schematische Übersichtszeichnung der Vierwellenmischkammer ist in Abbildung 3.22 a) dargestellt. Im Gegensatz zur Spektroskopiekammer, sind die beiden Quecksilber-Kammern (vergleiche Abbildung 3.18) hier starr über ein CF16-T-Stück verbunden. Auf der Außenseite dieser Verbindung angebrachte Heizelemente, mit einer maximalen Gesamtheizleistung von 135 W, gewährleisten eine gleichmäßige Temperierung, welche über eine Regelschleife stabilisiert wird. In Abbildung 3.22 c) und d) sind Schnittansichten der Kammer gezeigt. Auf der Einkoppelseite (rechts im Bild) ermöglichen Sichtfenster die Positionierung der Faserfrontfacette an die Fokusposition der Fundamentalstrahlen, welche mit Hilfe eines Justagelasers markiert wird (siehe Abschnitt 3.2). Zu diesem Zweck ist die komplette Vakuumkammer auf einem dreiachsigen Verschiebetisch montiert.

Die fundamentalen Laserstrahlen treten über ein Einkoppelfenster aus Quarzglas in die Kammer ein. Dieses steht im Brewsterwinkel für die blaue Wellenlänge,

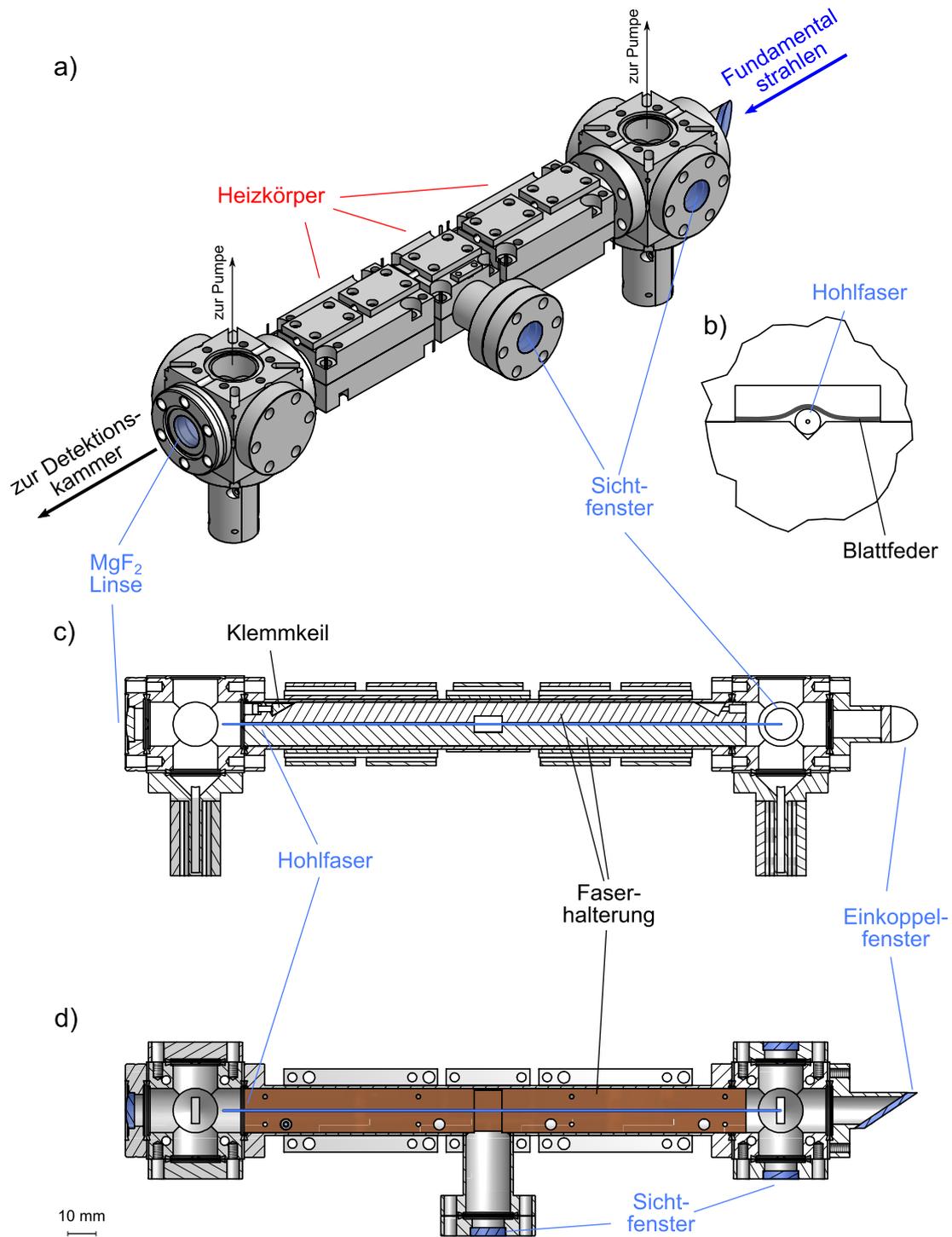


Abbildung 3.22: Übersichtszeichnung der Vierwellenmischkammer. a) Isometrische Ansicht der Vakuumkammer. b) Detaillierte Frontalansicht der Faserhalterung. c) Sagittale und d) tangentielle Schnittansicht.

um Reflexionsverluste zu minimieren. Ein zusätzliches lokales Erwärmen mittels Heizfolien (nicht abgebildet) verhindert Kondensation von Quecksilber am Glas. Die Faser ist in einem zweigeteilten Titanzylinder gehalten (Oberseite - grau, Unterseite - braun in Abbildung 3.22). Verglichen mit Edelstahl hat Titan einen etwas höheren Wärmeleitkoeffizienten und bildet mit Quecksilber ebenfalls keine Amalgame [156]. Der Außendurchmesser des Zylinders ist dabei an den Innendurchmesser des umgebenden Rohrs angepasst und kann durch Klemmkeile darin fixiert werden. In der unteren Hälfte des Zylinders befindet sich entlang der Längsachse eine v-förmige Auskehlung, in welcher die Faser liegt (siehe Detailsansicht b) in Abbildung 3.22). Durch Blattfedern wird die Faser bei der Verschraubung von Zylinderober- mit -unterseite ohne großen mechanischen Druck in Position gehalten.

Eine Aussparung auf halber Länge des Zylinders und der seitliche Fensterflansch an der T-Verbindung bieten optischen Zugang zur Beobachtung der Zwei-Photonen Fluoreszenz.

Der Abschluss der Vierwellenmischkammer zur Detektionskammer wird durch eine, in einen doppelseitigen Durchgangsflansch eingeklebte²⁴, Magnesiumfluorid Linse realisiert. Diese erfüllt zwei Funktionen: Zum einen trennt sie die beiden Vakuumbereiche von einander. Des Weiteren dient die Linse der Kollimation der aus der Faser stark divergent austretenden Strahlen. Die einen halben Zoll durchmessende, plan-konvexe Linse hat einen Krümmungsradius von $R = 20$ mm. Während die Brennweite im hier diskutierten VUV Bereich bei etwa 32 mm liegt, beträgt sie im UV-VIS Bereich der Fundamentalstrahlen zwischen 50 mm und 53 mm. Das hat zur Folge, dass die Fundamentalstrahlen nach der Linse noch eine Restdivergenz aufweisen, während der VUV Strahl nahezu kollimiert ist. Der Strahlradius des grünen Laserstrahls beträgt nach einer Freistrahpropagation von 30 cm etwa 1,7 mm und ist damit an dieser Stelle etwa zehn mal größer als der VUV Strahl. Zum Schutz vor Quecksilberkondensation ist auch diese Linse zusätzlich etwas über Kammeratemperatur geheizt.

3.3.3 Detektionskammer

In der Detektionskammer erfolgt die räumliche Separation der Fundamentalstrahlen von der VUV Strahlung, sowie die Detektion der erzeugten Photonen. Der hierfür verwendete Aufbau ist in Abbildung 3.23 gezeigt. Am rechten Rand ist die Magnesiumfluorid Linse dargestellt, welche den Abschluss zur Vierwellenmischkammer bildet. Ein flexibler Wellenschlauch erlaubt eine relative Verschiebung der beiden Kammerysteme gegeneinander. Die Detektionskammer besteht aus einem individualisierten CF100 Messflansch mit insgesamt sechs Messstutzen ($4 \times$ CF16 (A-D), $2 \times$ CF40 (E-F)). Über den Flansch A gelangen die Strahlen in die Kammer und treffen unter einem Winkel von 60° zum Lot auf ein gleichseitiges Magnesi-

²⁴EPO-TEX ND353 - UHV geeigneter Hochtemperatur zwei Komponenten Epoxidkleber

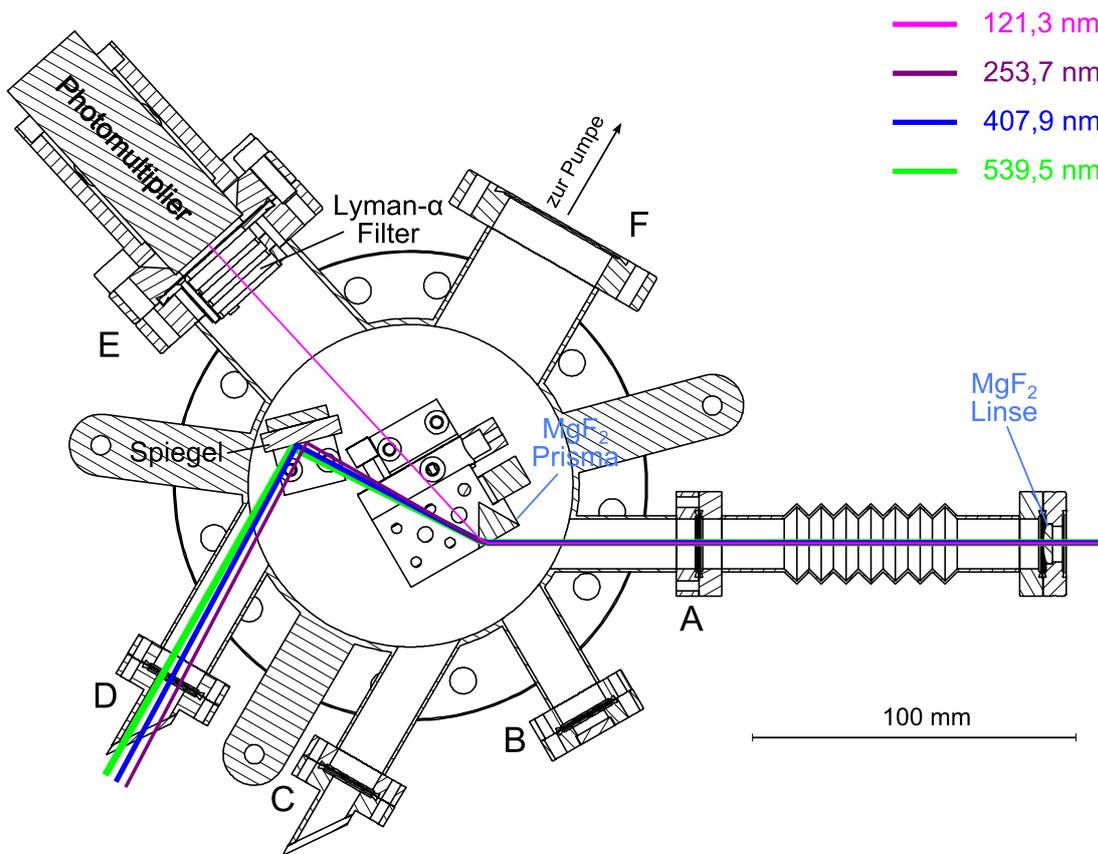


Abbildung 3.23: Tangentiale Schnittansicht der Detektionskammer. Die Fundamentalstrahlen werden an einem Magnesiumfluorid Prisma dispersiv von der VUV Strahlung getrennt und aus der Kammer reflektiert. Der Nachweis der erzeugten Strahlung erfolgt in einem Photomultiplier.

umfluorid Prisma. Dies entspricht annähernd dem Brewsterwinkel für den VUV Strahl. Der geringe an der Fläche reflektierte Anteil der Fundamentalstrahlen wird über Flansch C aus der Kammer ausgekoppelt. Mittels eines Justagelasers kann über das Sichtfenster an Flansch B die exakte Ausrichtung des Prismas kontrolliert werden. Die Fundamentalstrahlen und der VUV Strahl laufen nach dem Prisma wegen der unterschiedlichen Dispersion unter einem Winkel von etwa 18° auseinander. Über einen Spiegel werden die Fundamentalstrahlen aus der Kammer reflektiert (Flansch D) und können, nach Abtrennung über Dichroiten, separat beobachtet werden. In Vorwärtsrichtung gestreutes infrarotes Licht aus dem strahlenden Zerfall des 7^1S_0 -Niveaus kann so ebenfalls detektiert werden. Die Transmission der Fundamentalstrahlen durch die Detektionskammer, inklusive Separationslinse beträgt etwa 85 %. Die Strahlung bei der Summenfrequenz wird auf einen Photomultiplier²⁵ gelenkt und dort Einzel-Photonen sensitiv de-

²⁵Hamamatsu - R6835

tektiert (Flansch E). Ansteuerung und Dichtung der Verstärkerröhre an das Vakuumsystem sind [150] nachempfunden und dort im Detail beschrieben. Während der Photomultiplier insensitive für das grüne und blaue Licht ist, kann gestreutes UV Licht einen Untergrund hervorrufen. Zwei Lyman- α Filter²⁶ mit einer Transmission von jeweils 4,7% bei 121,56 nm unterdrücken diesen pro Filter um einen Faktor $3,7 \times 10^{-4}$.

In früheren Experimenten zur kontinuierlicher Lyman- α Erzeugung wurde beobachtet, dass UV-induzierte Spaltung organischer Restgasmoleküle einen VUV undurchlässigen Beschlag auf Optiken verursachen kann [51,157]. Zur Vermeidung dieser Problematik ist der Deckel der Detektionskammer als Dewargefäß mit thermisch nicht isoliertem Boden konzipiert, der bei Befüllung mit flüssigem Stickstoff als Kühlfalle fungiert. Über den Flansch F kann die Kammer evakuiert werden. Unter Zuhilfenahme der Kryofalle werden Drücke von wenigen 10^{-8} mbar erreicht.

VUV Transmission von Optiken

Zur Abschätzung der erzeugten Leistung bei der Summenfrequenz ist die Kenntnis der Transmissionsverluste der verwendeten Magnesiumfluorid Optiken (Separationslinse und Prisma) erforderlich. Zur Vermessung der Transmission von Optiken im VUV Wellenlängenbereich wurde in [150] ein Teststand aufgebaut. In diesem wird das Licht einer Deuteriumlampe monochromatisch gefiltert und die Photonenzählrate eines Photomultipliers mit und ohne Optik verglichen. Aus technischen Gründen kann dieser aber für die in diesem Experiment erforderlichen Optiken nicht verwendet werden: Die doppelte Brennweite der Linse ist deutlich kleiner als der Abstand des Optikhalters zum Photomultiplier im Teststand, so dass der Strahl zu stark aufgeweitet wird, um noch vollständig nachgewiesen werden zu können. Beim Prisma unterbindet der gewinkelte Strahlengang eine Anwendung.

Deshalb wurde eine alternative Messapparatur aufgebaut, die in Abbildung 3.24 skizziert ist. Als Lichtquelle dient auch hier eine Deuteriumlampe²⁷ deren Emissionsspektrum zwischen 115 nm und 400 nm liegt. Zwei Vakuumvoll dichtungen mit einer 1 mm durchmessenden zentrischen Bohrung formen einen Strahl aus dem von der Lampe emittierten Licht. Diese Lichtquelle (gestrichelter Kasten) ist über einen Wellenschlauch mit der Detektionskammer verbunden. Die dispersiven Eigenschaften des Magnesiumfluorid Prismas in Kombination mit der schmalen Bandbreite der Lyman- α -Filter bilden einen Monochromator, mit einer nur wenigen Nanometer breiten Akzeptanz um 121,6 nm. Der sichtbare Teil des Lampenspektrums kann am Austrittsflansch der Fundamentalen als 1,5-2 mm großer Strahl beobachtet werden. Für Messungen wird die Apparatur auf einen Druck von etwa 1×10^{-6} mbar evakuiert.

²⁶Acton Optics & Coatings - FN122-XN

²⁷Hamamatsu - L7293-50

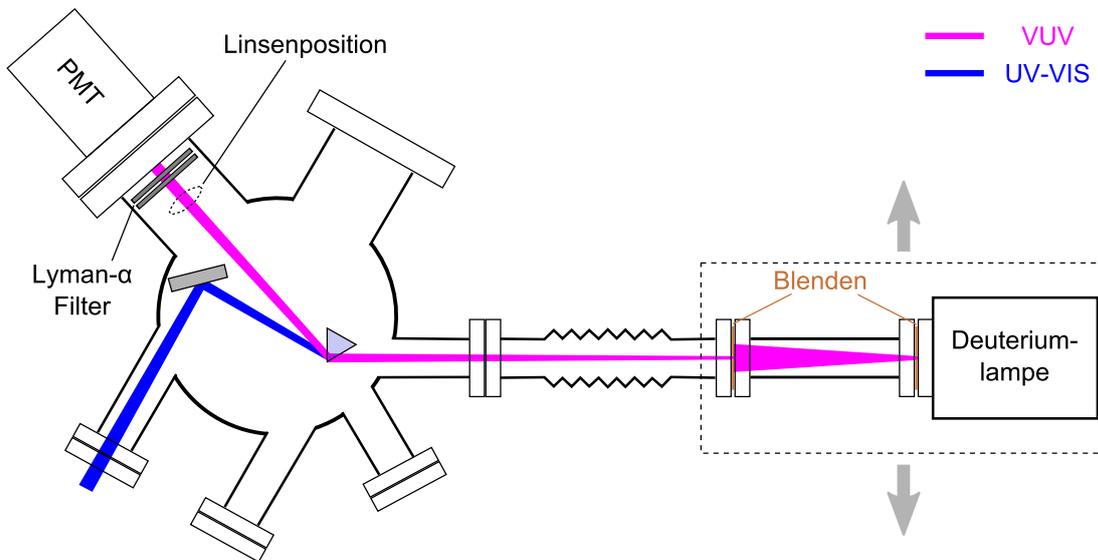


Abbildung 3.24: Schematischer Aufbau zur VUV Transmissionsmessung. Der durch ein Blendensystem geformte Strahl einer Deuteriumlampe wird über das Prisma der Detektionskammer in den Photomultiplier (PMT) gelenkt. Die Separationslinse wird für die Transmissionsmessung dicht vor den PMT montiert. Zur Vermessung des Prismas kann die Lichtquelle senkrecht zum Strahl verschoben werden.

Für die Transmissionsmessung durch die kurzbrennweitige Separationslinse wird diese in etwa 5 cm Abstand vor dem Photomultiplier montiert, und die Photonen-zählrate mit und ohne Linse verglichen. Die Transmission beträgt 63 % und liegt damit etwas unter der Herstellerangabe²⁸ von 73 %. Diese Angabe beruht auf einem Transmissionspektrum einer 5 mm Platte des verwendeten Materials, aus der sich unter Berücksichtigung der Fresnel-Reflexion ein Absorptionskoeffizient von $\alpha_{\text{MgF}_2} = 61,7 \text{ m}^{-1}$ bestimmen lässt. Um auszuschließen, dass die Transparenz der Linse durch die Klebe-Prozedur in den Flansch beeinträchtigt wurde, sind Messungen mit eingeklebten wie auch unbehandelten Linsen durchgeführt worden. Beide lieferten vergleichbare Ergebnisse.

Bei der Transmissionsmessung des Prismas ist der Auftreffpunkt auf der ersten Grenzfläche relevant, da dieser die Weglänge durch das Material bestimmt. Hierfür ist die Lichtquelle auf einen Linearverschiebtisch senkrecht zur Strahlrichtung montiert. Aus dem exponentiellen Abfall der Transmission bei linearer Änderung der Absorptionsstrecke lässt sich der Absorptionskoeffizient bestimmen. Die Photonen-zählrate als Funktion der Verschiebung senkrecht zur einlaufenden Strahlachse ist in Abbildung 3.25 a) logarithmisch aufgetragen. Dabei werden drei Bereiche unterschieden, die farblich gekennzeichnet sind und in Abbildung 3.25 b) veranschaulicht werden: Im blau markierten Bereich trifft der

²⁸Bernhard Halle Nachfl. GmbH

3. EXPERIMENTELLE REALISIERUNG

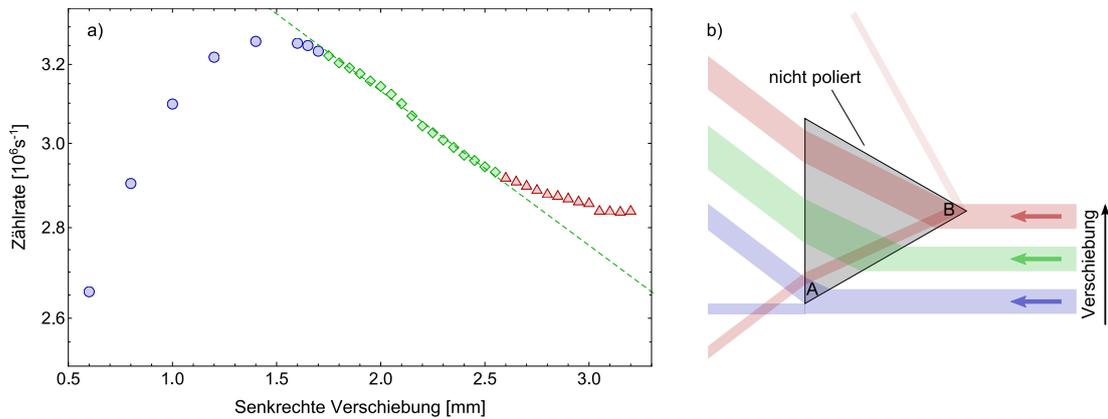


Abbildung 3.25: Transmissionmessung durch MgF_2 Prisma. a) Gemessene Zählrate (logarithmisch aufgetragen) in Abhängigkeit von der Verschiebung der Strahlposition. Die Farben codieren dabei die drei in b) skizzierten möglichen Strahlengänge. Aus den grün markierten Daten wird mittels einer exponentiellen Anpassung (gestrichelte Linie) der Absorptionskoeffizient bestimmt.

Strahl das Prisma unvollständig und nur ein Teil der VUV Leistung wird detektiert. Mit wachsender Überschneidung steigt die Zählrate stark an. Im grün eingefärbten Bereich liegt der Strahl vollständig auf dem Prisma und wird in den Photomultiplier geleitet. Der Verlauf dieser Daten zeigt auf der logarithmischen Skala einen annähernd linearen Abfall, der mit der längeren Absorptionsstrecke assoziiert ist. Unter Berücksichtigung der geometrischen Weglängenänderung bei senkrechter Verschiebung kann über eine Anpassung an diese Daten (grün gestrichelte Linie) der Absorptionskoeffizient zu $\alpha_{\text{MgF}_2} = 64,7 \text{ m}^{-1}$ bestimmt werden, in hinreichender Übereinstimmung mit den Herstellerangaben. Der verminderte Abfall im roten Kurvenverlauf lässt sich mit Reflexion beziehungsweise Streuung an der nicht polierten Seitenfläche des Prismas erklären²⁹. Licht oberhalb der mit B markierte Spitze wird nur diffus in den Photomultiplier gestreut, überlagert aber dennoch den eigentlich erwarteten Abfall auf Grund der Strahlanteile, die den Photomultiplier nicht mehr erreichen. Verantwortlich dafür ist die fehlende Absorption im Medium und der Anteil anderer Wellenlängen im UV-VUV Bereich, im Spektrum der Deuteriumlampe welche innerhalb der Ansprechempfindlichkeit des Detektors liegen.

Der Auftreffpunkt der Strahlen im Experiment kann durch die Streuung des grünen Strahls über ein Sichtfenster mit einer CCD-Kamera bestimmt werden und liegt etwa 3,7 mm von der Spitze A des Prismas entfernt. Inklusive der Fresnel-Verluste von 1 % beträgt die VUV Transmission an diesem Durchstoßpunkt 78,2 %.

²⁹Für den blauen und grünen Bereich ist der Übersichtlichkeit halber auf die Darstellung der reflektierten Strahlanteile in Abbildung 3.25 b) verzichtet worden.

ERGEBNISSE

Dieses Kapitel beschreibt die ersten nichtlinearen optischen Experimente mit dem vorgestellten apparativen Aufbau, welche in einer Quecksilberdampf gefüllten Hohlfasern durchgeführt werden konnten.

Im ersten Teil wird dabei ausführlich auf die für den Mischprozess essentielle Zwei-Photonen Resonanz eingegangen, deren Nachweis über den infraroten Zerfall des angeregten Niveaus realisiert ist. Wie auch schon in Experimenten mit fokussierten Gaußstrahlen, kann bei kleinen Verstimmungen zum intermediären 6^3P_1 Niveau das Auftreten von TALISE, einem durch Zwei-Photonen Absorption gepumpten Laserprozess auf dem infraroten Zerfallskanal des 7^1S_0 Niveaus, beobachtet werden.

Zudem werden signifikante Abweichungen der gemessenen Linienform des Fluoreszenzsignals vom theoretischen Verlauf beobachtet. Die Möglichkeit, dass diese eine erstmalige experimentelle Manifestation einer Licht-induzierten Drift auf der Basis einer Zwei-Photonen Anregung sind, wird diskutiert.

Im zweiten Abschnitt wird die Erzeugung vakuumultravioletter Laserstrahlung bei 121,26 nm präsentiert. Der Einfluss des 7^1S_0 Niveaus auf die Mischeffizienz wird experimentell untersucht und es werden maximale Mischeffizienzen erreicht, welche mit denen bisheriger Experimente mit fokussierten Gaußstrahlen vergleichbar sind.

4.1 Zwei-Photonen Resonanz

Gegenstand des vorliegenden Abschnittes ist die Untersuchung der $6^1S_0 - 7^1S_0$ Zwei-Photonen Resonanz, wobei die Wellenlänge des UV Lasers in der Nähe des 6^3P_1 Zwischenniveaus liegt. Wegen der großen Relevanz für ein effizientes Vierwellenmischen mit kontinuierlichen Laserstrahlen ist ein gutes Verständnis dieses Prozesses essentiell. Auf Grund des niedrigen Absorptionswirkungsquerschnittes von Mehr-Photonen Prozessen ist auch auf Resonanz die Absorption auf diesem

Übergang typischerweise gering, und beeinträchtigt den nichtlinearen Mischprozess im Allgemeinen nicht [158]. Mit der Messung der Fluoreszenz des strahlenden $7^1S_0 \rightarrow 6^1P_1$ Zerfalls bei 1014 nm steht eine geeignete Methode zur Detektion zur Verfügung.

Darüber hinaus stellt die Beobachtung der Zwei-Photonen Fluoreszenz einen ersten experimentellen Nachweis eines nichtlinearen Mehr-Photonen Prozesses innerhalb der Hohlleiter dar.

Abhängig von der Verstimmung zum intermediären 6^3P_1 Niveau kann zwischen nah- und fernresonantem Regime unterschieden werden. Der nahresonante Fall ist dabei durch einen nicht zu vernachlässigenden Einfluss von Ein-Photon Prozessen charakterisiert, welche bei großen UV Verstimmungen nur eine untergeordnete Relevanz haben. Alle in diesem Kapitel gezeigten Theoriekurven zur Zwei-Photonen Resonanz sind deshalb über die in [88,89] beschriebene Lösung der optischen Bloch Gleichungen berechnet (vergleiche Kapitel 2.1.2), sofern nicht anders angegeben.

4.1.1 Fern-resonante UV Verstimmung

Zur Untersuchung der 7^1S_0 Resonanz werden der UV und der blaue Fundamentallaser in die, mit Quecksilberdampf gefüllte Hohlleiter eingekoppelt. Mittels Photodioden hinter den entsprechenden Verdopplungsresonatoren wird kontinuierlich die Leistung der Fundamentallaser zur Normierung mitgeschrieben. Wegen der geringen Signalstärke der isotrop emittierten Fluoreszenz wird zur Detektion ein Lock-in Verfahren verwendet. Hierfür wird der UV Strahl mit einem Blendenrad periodisch moduliert.

Die Vakuumapparatur bietet die Möglichkeit, die Fluoreszenz longitudinal und transversal zur Faserachse über InGaAs-Photodioden¹ zu beobachten (vergleiche Abbildung 4.1): Transversal erlaubt das seitliche Sichtfenster der Vierwellenmischkammer optischen Zugang. Longitudinal wird das Fluoreszenzlicht zusammen mit den Fundamentallasern aus der Detektionskammer reflektiert und von diesen durch dichroitische Spiegel getrennt. Interferenzfilter bei 1014 nm mit einer Bandbreite von 10 nm vor den Photodioden dienen der weiteren Reduktion von Hintergrundlicht.

Eine Messung der transversal aufgenommenen Zwei-Photonen Resonanz ist in Abbildung 4.2 gezeigt. Hierfür wurde bei einer festen UV Verstimmung von $\Delta_{UV} = -135$ GHz die Frequenz des blauen Lasers über einen Bereich von 25 GHz um das 7^1S_0 Niveau gescannt. Die Daten (rote Kreise) sind über der Zwei-Photonen Verstimmung $(\nu_{\text{blau}} + \nu_{UV}) - \nu_{7^1S_0}$ zum häufigsten Isotop ^{202}Hg aufgetragen und auf die Signalthöhe dieser Resonanz normiert. Man erkennt deutlich die von den verschiedenen Isotopen stammenden Resonanzpeaks. Die Lagen und relativen Häufigkeiten eines natürlichen Quecksilber Isotopengemischs sind als

¹Hamamatsu - InGaAs PIN photodiode G8605-25

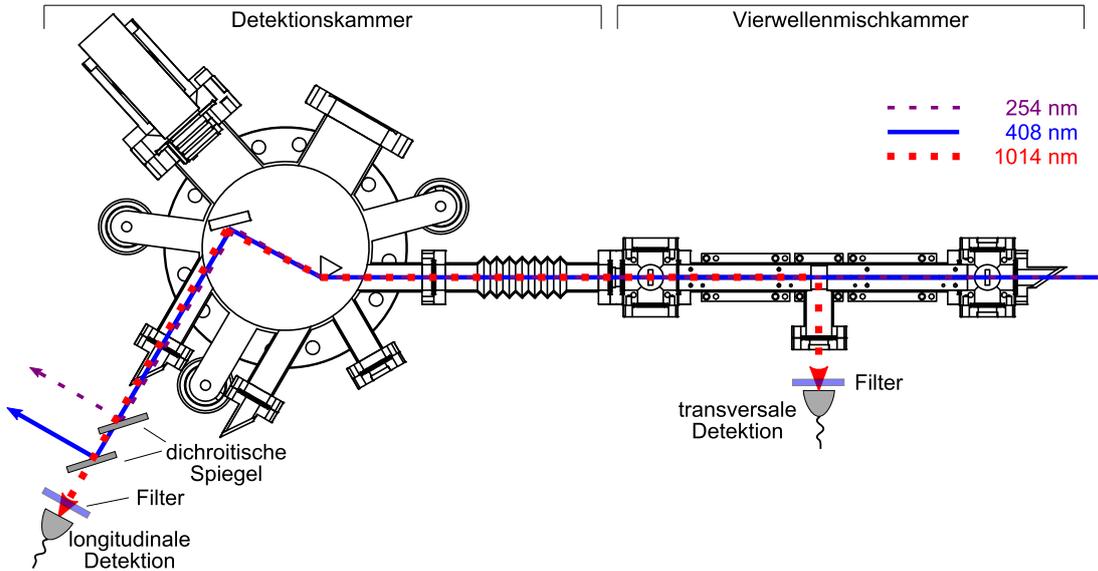


Abbildung 4.1: Schematische Messanordnung zur Detektion der Zwei-Photonen Fluoreszenz. Der, zur Lock-in Detektion modulierte, UV und der blaue Strahl regen in der Hohlfaser das 7^1S_0 Niveau in Quecksilber an. Dessen Zerfall bei 1014 nm kann longitudinal und transversal zur Faserachse detektiert werden.

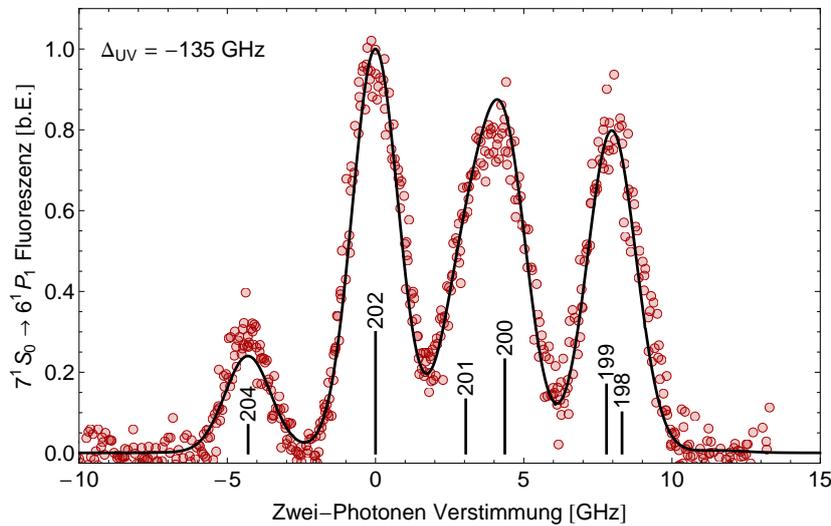


Abbildung 4.2: Zwei-Photonen Resonanz bei $\Delta_{UV} = -135$ GHz. Transversales Fluoreszenzsignal als Funktion der Zwei-Photonen Verstimmung zum ^{202}Hg Isotop (rote Kreise). In schwarz ist die zugehörige Theoriekurve gezeigt. Die vertikalen Striche deuten Lage und Häufigkeit der Isotope an. $T_{\text{Kammer}} = 70^\circ\text{C}$, $P_{UV} = 20\text{ mW}$, $P_{\text{blau}} = 150\text{ mW}$.

vertikale Striche im Bild angedeutet. Höhen, Positionen und Breiten der einzelnen Resonanzen werden durch die Theoriekurve (schwarze Linie) mit hoher Güte wiedergegeben.

Wegen des durch die Fasergeometrie vorgegebenen kleinen Raumwinkels ist das Signal in longitudinaler Richtung typischerweise zu klein um sich vom Untergrundrauschen abzuheben, so dass hier keine Messung möglich ist.

4.1.2 Nah-resonante UV Verstimmung

Ist neben der Erfüllung der Zwei-Photonen Resonanzbedingung ebenfalls die UV Wellenlänge im Bereich der Ein-Photon Resonanz, zeigen sich eine Vielzahl interessanter zusätzlicher Effekte: So wurde in unserer Gruppe das Auftreten einer geschwindigkeitsselektiven Doppelresonanz [88], die Verschiebung von Resonanzen durch das intermediäre Niveau oder die Unterdrückung der Zwei-Photonen Resonanz durch die Hyperfein aufgespalteten Isotope im Zwischenniveau in Quecksilber nachgewiesen [89].

Hier werden einige Effekte diskutiert, die sich bereits bei mehreren 10 GHz Verstimmung zum 6^3P_1 Niveau manifestieren und teilweise auf dem Einschluss der Atome in der Hohlleiter begründet sind.

Zwei-Photonen induzierte stimulierte Emission

Mit abnehmender UV Verstimmung erhöht sich die Population des Zwei-Photonen Niveaus. Wegen der kurzen Lebensdauer des 6^1P_1 Niveaus von $\tau_{6^1P_1} = 1,48$ ns [159] wird dieses schnell durch den strahlenden Zerfall bei 185 nm in den Grundzustand entvölkert (vergleiche Abbildung 4.3). Dem gegenüber ist die Lebensdauer des 7^1S_0 Zustandes mit $\tau_{7^1S_0} = 32,1$ ns verhältnismäßig lang [70]. Dies kann bei ausreichender Pumprate zu einer Besetzungsinversion durch Zwei-Photonen Absorption führen. Spontan emittiertes Fluoreszenzlicht wird in diesem Fall durch stimulierte Emission verstärkt. Dieser durch Zwei-Photonen Absorption gepumpte Laserprozess wird in der Literatur als TALISE² bezeichnet. Er wurde erstmals auf dem $3S - 2P$ Übergang in Wasserstoff beobachtet [160] und ist wegen der geringen Anregungswahrscheinlichkeit typischerweise nur bei gepulsten Quellen zu beobachten. In unserer Arbeitsgruppe konnte TALISE in Quecksilber das erste mal mit kontinuierlichen Lasern nachgewiesen werden [158], bedingt durch die geringe Verstimmung zum intermediären 6^3P_1 Niveau.

In der Hohlleiter bietet die, durch den transversalen Einschluss der Atome vorgegebene, ausgezeichnete Pumpgeometrie ideale Voraussetzungen für die gerichtete, stimulierte Emission, longitudinal zur Faserachse.

Die simultane Messung der Zwei-Photonen Fluoreszenz in longitudinaler und transversaler Richtung ist für zwei unterschiedliche Pumpleistungen in Abbildung

²Two-Photon Absorption Laser Induced Stimulated Emission

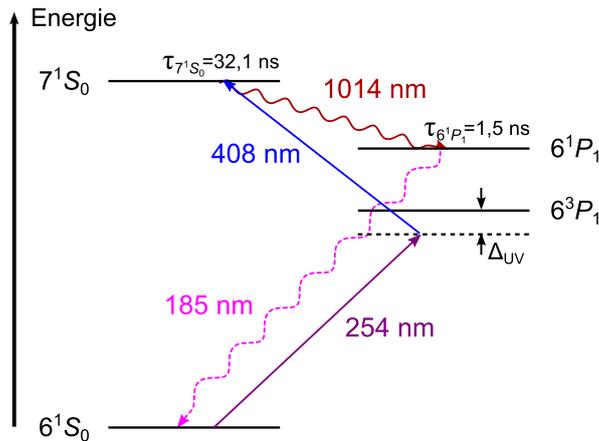


Abbildung 4.3: Zwei-Photonen Anregung in Quecksilber. Die über Zwei-Photonen Absorption bei 254 nm und 408 nm aufgebaute Population des 7^1S_0 Zustandes zerfällt zu 87% in den 6^1P_1 Zustand. Dieser wird schnell durch den strahlenden Zerfall in den Grundzustand entvölkert.

4.4 über der Zwei-Photonen Verstimmung aufgetragen. Die feste UV Verstimmung zum Zwischenenniveau liegt in den gezeigten Graphen bei $\Delta_{UV} = -60$ GHz. Die Pumpleistungen in den Messungen a) und c) sind dabei geringer als in b) und d). Alle Daten sind jeweils auf die Höhe der ^{202}Hg Resonanz normiert. Das transversal detektierte Signal (rote Kreise) zeigt den bekannten Verlauf der isotrop emittierten Fluoreszenz mit vier Resonanzpeaks. Die Lage der beteiligten Isotope mit ihren relativen Häufigkeiten sind durch vertikale Striche angedeutet. Das Signal in Strahlrichtung (grüne Dreiecke) weicht deutlich von diesem Verlauf ab: Abhängig von der eingestrahlten Pumpleistung erkennt man ein oder zwei Resonanzen die den Isotopen mit den größten Häufigkeiten zugeordnet werden können (^{202}Hg und ^{200}Hg). Dies ist ein klares Indiz für das nichtlineare Verhalten eines Laserprozesses im Bereich der Schwellenpumpleistung. Die unterschiedlichen Teilchenzahldichten der verschiedenen Isotope bedingen ein isotopenselektives Anschwingen des Verstärkungsprozesses. Die geringere spektrale Breite des longitudinalen Signals ist ein weiteres Charakteristikum der stimulierten Emission. Ebenso die höhere Leistung: In Vorwärtsrichtung ist bei reiner Fluoreszenz typischerweise kein infrarotes Signal detektierbar. Die Höhen des TALISE Signals der ^{202}Hg Resonanz in Abbildung 4.4 c) und d) entsprechen absoluten Leistungen von 0,7 nW beziehungsweise 1,0 nW.

Licht-induzierte Drift im Zwei-Photonen Signal

Ein weiterer Einfluss der Faser manifestiert sich ebenfalls mit sinkender UV Verstimmung. Abbildung 4.5 zeigt die transversal detektierte Zwei-Photonen Resonanz für verschiedene UV Verstimmungen (rote Kreise: $\Delta_{UV} = -135$ GHz, grüne

4. ERGEBNISSE

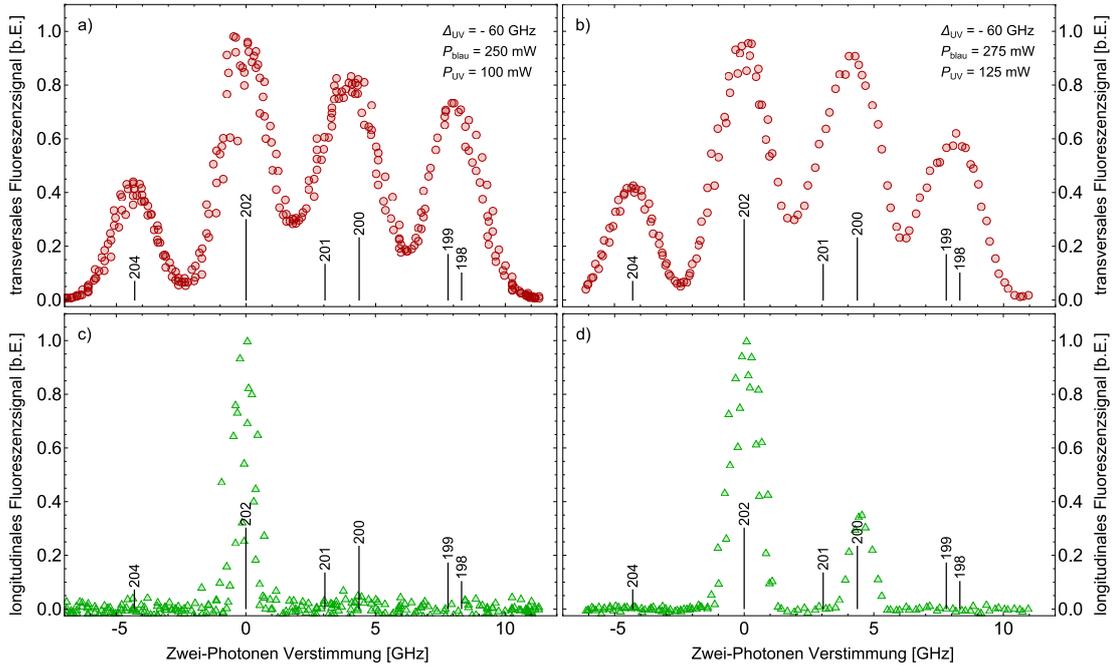


Abbildung 4.4: Zwei-Photonen induzierte stimulierte Emission.

Transversal (a,b) und zugehöriges longitudinal (c,d) zur Faser gemessenes infrarotes Fluoreszenzsignal als Funktion der Zwei-Photonen Verstimmung. Die deutlichen Unterschiede der Linienform in longitudinaler Richtung sind auf Zwei-Photonen induzierte Laserprozesse zurückzuführen. Die einlaufenden Leistungen in a), c) sind etwas geringer als in b), d). Die vertikalen Striche geben Lage und relative Häufigkeit der Quecksilberisotope an. $T_{\text{Kammer}} = 83 \text{ }^\circ\text{C}$.

Dreiecke: $\Delta_{\text{UV}} = -60 \text{ GHz}$, blaue Quadrate: $\Delta_{\text{UV}} = -39 \text{ GHz}$) bei sonst vergleichbaren experimentellen Bedingungen. Alle Daten sind auf die Höhe der jeweiligen ^{202}Hg Resonanz normiert und die theoretischen Kurvenverläufe als durchgezogene Linie eingezeichnet. Während die Theorie den Verlauf der Daten für $\Delta_{\text{UV}} = -135 \text{ GHz}$ gut wiedergibt, ist mit zunehmender Nähe zum intermediären 6^3P_1 Niveau eine wachsende Abweichung festzustellen. Insbesondere die relative Höhe der dem Isotop ^{204}Hg zugeordneten Resonanz ist signifikant größer als theoretisch erwartet. Für $\Delta_{\text{UV}} = -39 \text{ GHz}$ treten auch bei den anderen Isotopen Veränderungen der Linienform auf.

Da die Lösung der optischen Bloch-Gleichungen in Experimenten mit fokussierten Gaußstrahlen auch bei kleinen UV Verstimmungen eine hervorragende Übereinstimmung mit gemessenen Fluoreszenzsignalen liefert [89,158], werden bisher nicht berücksichtigte Einflüsse der Faser als Ursache vermutet. Ein möglicher Erklärungsansatz ist die Veränderung der relativen Häufigkeiten der Isotope entlang der Faser durch Licht-induzierte Kräfte. Da die Isotope auf Grund der Isotopiever-

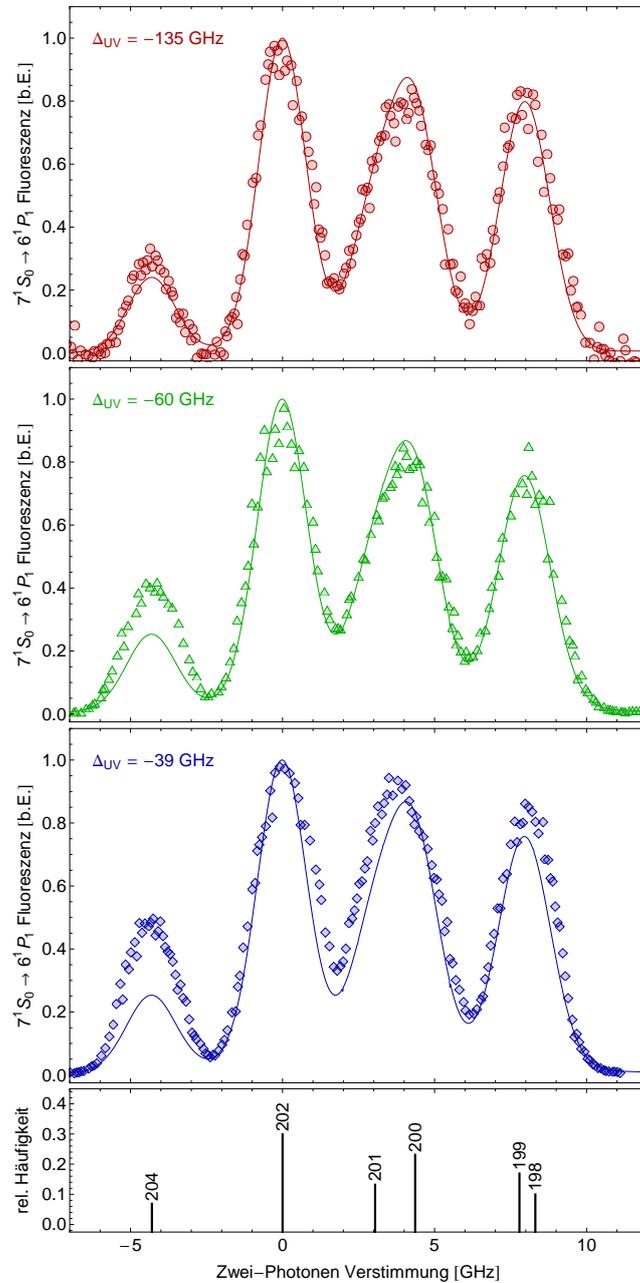


Abbildung 4.5: Zwei-Photonen Resonanz bei unterschiedlicher UV Verstimmung. Transversal aufgenommenes Fluoreszenzsignal bei $\Delta_{UV} = -135$ GHz (rote Kreise), $\Delta_{UV} = -60$ GHz (grüne Dreiecke) und $\Delta_{UV} = -39$ GHz (blaue Quadrate). Die durchgezogenen Linien entsprechen Theorieturven mit den gegebenen experimentellen Parametern. Die vertikalen Linien im unteren Diagramm geben Lage und Häufigkeit der Isotope an. Alle Messungen wurden bei vergleichbaren Temperaturen von $T_{Kammer} = 75 \pm 5$ °C durchgeführt. Die Laserleistungen lagen bei $P_{UV} = 30 \pm 10$ mW und $P_{blau} = 200 \pm 25$ mW.

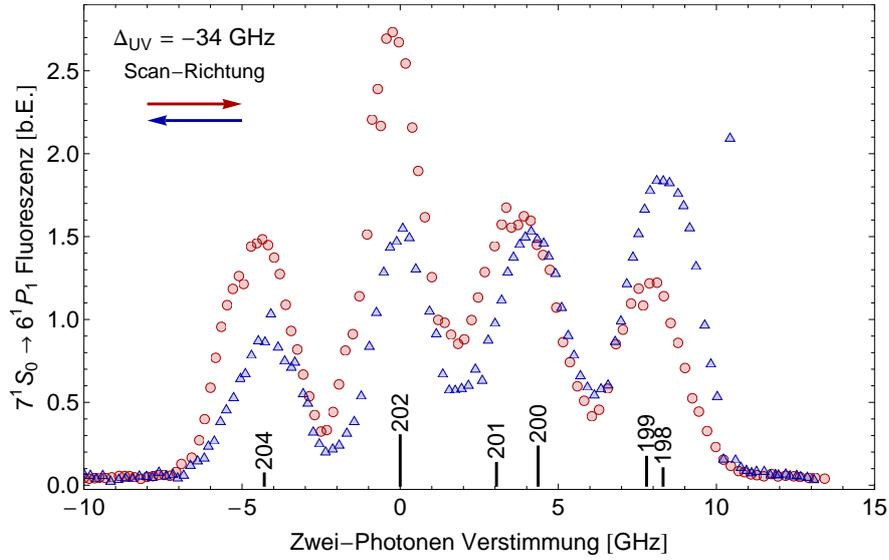


Abbildung 4.6: Zwei-Photonen induzierte Drift. Das Zwei-Photonen Fluoreszenzsignal zeigt ein stark asymmetrisches Verhalten, abhängig von der Scanrichtung der blauen Frequenz (rot - ansteigend, blau - absteigend). Scanrate: 200 MHz/s, $T_{\text{Kammer}} = 90^\circ\text{C}$, $P_{\text{UV}} = 50\text{ mW}$, $P_{\text{blau}} = 250\text{ mW}$.

schiebung und Hyperfeinstrukturaufspaltung, sowie der verschiedenen relativen Häufigkeiten, in unterschiedlicher Weise und Intensität mit dem Strahlungsfeld wechselwirken, können einzelne Isotope verschieden stark beeinflusst werden. Allerdings wurde abgeschätzt, dass der Einfluss von LID bei den gezeigten Verstimmungen vernachlässigbar sein sollte, da die eingestellten Verstimmungen mit mehreren 10 GHz deutlich außerhalb der Dopplerbreite der Resonanzen liegen (vergleiche Abschnitt 2.4.2).

Da aber die Kombination aus UV und blauer Laserwellenlänge beim Spektroskopieren des Zwei-Photonen Übergangs nah- beziehungsweise vollresonant ist, wird eine Anregung in das 7^1S_0 Niveau als Ursache für LID vermutet. Der Einfluss der Verstimmung zum intermediären Niveau spiegelt sich dann in einer erhöhten Anregungsrate und damit in der Ausprägung des Effektes wider. In der Literatur ist der Fall von Zwei-Photonen Absorption bedingter Licht-induzierter Drift kaum diskutiert: Es existieren wenige theoretische Arbeiten, die Licht-induzierte Drift durch Zwei-Photonen Anregung vorhersagen [161–163], experimentell wurde der Effekt aber bisher noch nicht nachgewiesen.

Einen signifikanten Hinweis dafür, dass die Ursache der beobachteten Abweichungen auf der Anwesenheit des blauen Laserlichtfeldes basiert, liefert eine weitere Messung bei noch kleinerer UV Verstimmung und höheren Laserleistungen: In Abbildung 4.6 ist erneut ein transversal detektiertes 7^1S_0 Fluoreszenzsignal als Funktion der Verstimmung dargestellt. Die beiden gezeigten Datensätze entsprechen dabei unterschiedlichen Scanrichtungen über die Resonanz. Es zeigt sich eine

deutliche Asymmetrie zwischen den Spektren mit ansteigender (rot) und absteigender Frequenz (blau). Die Scangeschwindigkeit der blauen Laserfrequenz liegt bei 200 MHz/s.

Um abzuschätzen, ob ein derart dynamisches Verhalten, wie es sich in den Messungen präsentiert, durch LID hervorgerufen werden kann, sollen die in Abschnitt 2.4.2 erarbeiteten Transportgleichungen für Dichte und Intensität entlang der Faser auf den Fall von Zwei-Photonen Absorption angepasst werden. Eine quantitative theoretische Beschreibung erfordert die Lösung der optischen Bloch-Gleichungen für das betrachtete Drei-Niveau System unter Berücksichtigung geschwindigkeitsverändernder Stoßprozesse. Da darüber hinaus die entsprechenden Stoßwirkungsquerschnitte der beteiligten Niveaus, welche als Parameter in die Rechnung mit einfließen, nicht bekannt sind, wird hier ein heuristischer Ansatz gewählt:

Die induzierte Drift basiert auf der nahresonanten Anregung des dopplerverbreiterten Zwei-Photonen Niveaus und ist folglich proportional zu

$$\partial_z(I_1 + I_2)|_{\text{abs}} = -\hbar(\omega_1 + \omega_2)\sigma_{2\gamma}NI_1I_2, \quad (4.1)$$

der durch Absorption verursachten Schwächung der beiden eingestrahnten Lichtfelder [163]. Dabei bezeichnet $\sigma_{2\gamma}$ den Zwei-Photonen Absorptionswirkungsquerschnitt und N die Dichte.

Weiterhin muss beachtet werden, dass ein Gemisch mehrerer Isotope vorliegt: Wenn ein Gradient der Gesamtdichte existiert, welcher zu einer kollektiven Drift aller Isotope führt, so können auch Isotope, die gerade keine Licht-induzierte Kraft erfahren, diffusiv aus dem Reservoir nachströmen. Ebenso muss der Konzentrationsausgleich der einzelnen Isotope untereinander berücksichtigt werden. Dies lässt sich durch eine geänderte diffusive Drift

$$J_i = -\frac{D}{2} \frac{\partial}{\partial z} N_i - \frac{D}{2} \frac{N_i}{N} \frac{\partial}{\partial z} N, \quad (4.2)$$

in den Gleichungen erfassen [164]. Dabei bezeichnet J_i die Drift des Isotops i , N_i dessen Dichte, N_i/N den Anteil dieses Isotops an der Gesamtdichte $N = \sum_j N_j$ und D die Diffusionskonstante (Details siehe Anhang C.2). Die zeitliche Änderung der Dichteverteilung eines Isotops wird dann durch die Gleichung

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} N_i &= \frac{D}{2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} N_i + \frac{D}{2} \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{N_i}{N} \frac{\partial}{\partial z} N \right) \\ &\quad - \hbar(\omega_1 + \omega_2)q_{2\gamma,i}\sigma_{2\gamma,i} \frac{\partial}{\partial z} (N_i I_1 I_2), \end{aligned} \quad (4.3a)$$

beschrieben. Der eingeführte Parameter $q_{2\gamma,i}$ beschreibt dabei wieder die Stärke der induzierten Drift für das Isotop i (vergleiche Gleichung (2.46b)). Deren Größe ist nicht bekannt und geht als einziger freier Parameter in die folgenden numme-

rischen Berechnungen ein. Die Schwächung der Intensitäten $I_{1,2}$ der Fundamentallstrahlen wird über

$$\frac{\partial I_1}{\partial z} = -\hbar\omega_1 \sum_i \sigma_{2\gamma,i} N I_1 I_2 - \alpha_1 I_1, \quad (4.3b)$$

$$\frac{\partial I_2}{\partial z} = -\hbar\omega_2 \sum_i \sigma_{2\gamma,i} N I_1 I_2 - \alpha_2 I_2, \quad (4.3c)$$

formuliert, wobei auch Faserverluste in Form der Koeffizienten $\alpha_{1,2}$ beinhaltet sind. Die Absorptionswirkungsquerschnitte $\sigma_{2\gamma,i}$ berechnen sich nach Gleichung (2.12) unter Vernachlässigung von Ein-Photon Prozessen.

Für den betrachteten Fall in Quecksilber besteht das Gleichungssystem (4.3) aus acht nichtlinear gekoppelten partiellen Differentialgleichungen (sechs Isotope, zwei Lichtfelder). Ein Scan der blauen Laserfrequenz über die 7^1S_0 Resonanzen (-10 GHz bis 12 GHz) dauert bei einer Scanrate von 200 MHz/s 110 Sekunden. Die frequenzabhängigen Parameter $q_{2\gamma,i}$ und $\sigma_{2\gamma,i}$ werden dabei zu Funktionen der Zeit. Für die unbekannte Größe $q_{2\gamma,i}$ wird analog zum Ein-Photonen Fall eine lineare Funktion der Verstimmung mit Nulldurchgang bei der Resonanzfrequenz angenommen, deren Vorzeichen der Richtung der induzierten Drift entspricht. Die Stärke ist dabei willkürlich über den Wert q' bei -10 GHz parametrisiert. Von Interesse für die beobachteten Abweichungen ist die durch LID verursachte Dichteveränderung der einzelnen Isotope am Beobachtungspunkt der Zwei-Photonen Fluoreszenz. Man erhält diese aus der numerischen Lösung des zeitabhängigen Gleichungssystems (4.3), unter Berücksichtigung der Randbedingung $N_i(t, 0) = N_i(t, L) = N_{0i}$ an den offenen Zellenenden. Ausgangssituation ist eine homogene Dichteverteilung mit der natürlichen Häufigkeitsverteilung.

Abbildung 4.7 zeigt die Lösung für beide Scanrichtungen wobei die zeitliche Abfolge wieder in eine Verstimmung übersetzt ist. Die generelle Form des Verlaufs ähnelt dem einer Dispersionskurve. Man erkennt deutlich die Erhöhung beziehungsweise Verminderung der Dichte, abhängig von der Verstimmung zum jeweiligen Isotop. Auf Grund der Dynamik ist der Wendepunkt gegenüber den Resonanzfrequenzen (vertikale Striche) verschoben. Die Verschiebung ist dabei abhängig von der Scanrichtung. Dichteveränderungen jenseits der Resonanz eines Isotops beruhen auf dem durch Diffusion bedingten partiellen Nachfluss aller Isotope bei einem Gradienten der Gesamtdichte.

Das aus dieser Dichteverteilung resultierende Fluoreszenzsignal ist in Abbildung 4.8 als Funktion der Zwei-Photonen Verstimmung dargestellt. Dafür wird zu jeder Verstimmung die gegenwärtige Dichte mit der Anregungswahrscheinlichkeit multipliziert. Wegen der, über die ausgedehnte Beobachtungszone (1 cm) abfallenden Fundamentealleistungen, wird dieses Signal zusätzlich mit den räumlich veränderlichen Intensitätsverläufen der Laserstrahlen in Propagationsrichtung gewichtet.

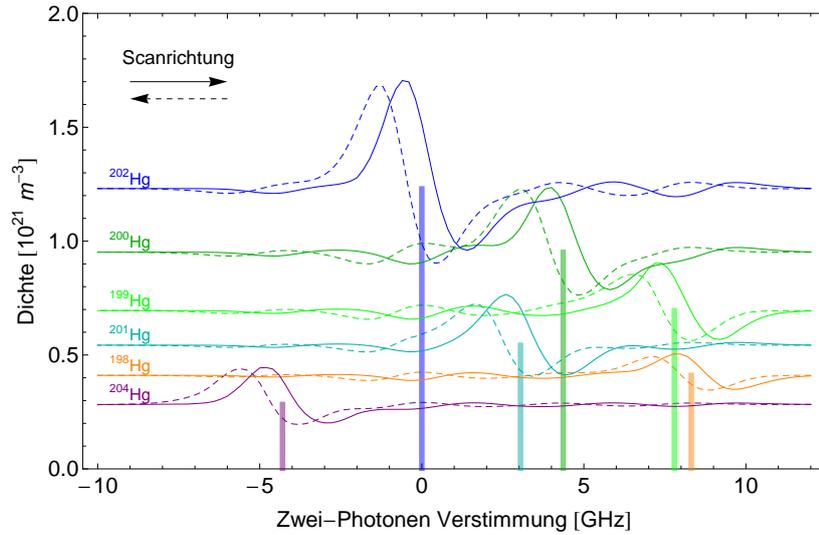


Abbildung 4.7: Simulierte Dichteveränderungen am Beobachtungsort durch LID. Die zur Berechnung verwendeten Parameter entsprechen den experimentell eingestellten Größen der in Abbildung 4.6 gezeigten Messung. Für die Stärke der Lichtkraft wurde $q' = 7,5 \times 10^{-4} \text{ N}^{-1}$ angenommen. Die vertikalen Striche deuten die Lage der 7^1S_0 Resonanz der jeweiligen Isotope an.

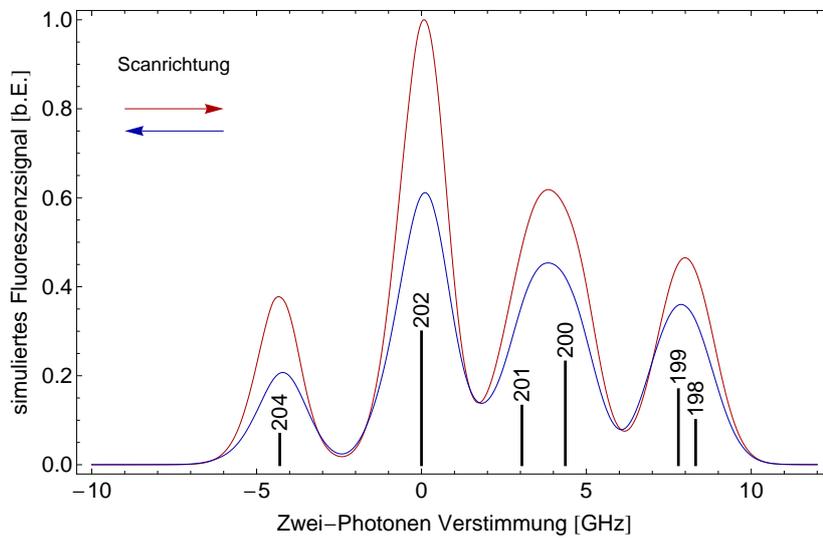


Abbildung 4.8: Simuliertes Zwei-Photonen Fluoreszenzsignal unter Einfluss von LID. Aus der in Abbildung 4.7 gezeigten Dichteverteilung resultierende 7^1S_0 Fluoreszenz. Die Asymmetrie bei unterschiedlicher Scanrichtung wird durch Licht-induzierte Drift hervorgerufen. Die horizontalen Balken geben Lage und relative Häufigkeit eines natürlichen Isotopenmischs wieder.

Wie auch im Experiment, zeigt sich eine deutliche Asymmetrie der Kurven zwischen steigendem und fallendem Frequenzscan, deren Ursache in der unterschiedlichen Dynamik von LID in und entgegen der Laserrichtung begründet liegt. Allerdings werden durch die Simulation nicht alle Merkmale der im Experiment beobachteten Veränderungen wiedergegeben. Während der deutlich ausgeprägte Höhenunterschied sowie eine leichte Verschiebung des Maximums für die Resonanzkurven der Isotope ^{204}Hg und ^{202}Hg qualitativ reproduziert werden, ist die Übereinstimmung für die restlichen Isotope nur unzureichend. Auch kann das Modell die von der Scanrichtung unabhängige Erhöhung der ^{204}Hg Resonanz bei größeren UV Verstimmungen nicht erklären (vergleiche Abbildung 4.5). Hier liefert die Simulation bei Verwendung des gleichen Parameters q' und Anpassung der experimentellen Größen keine signifikante Änderung der Linienform.

Als Grund hierfür wird die Simplizität des zugrunde liegenden Modells vermutet: Bei der Berechnung der Absorptionswirkungsquerschnitte wurde die doppelte Ein-Photon Absorption vernachlässigt, deren Beitrag wegen der Isotopieverschiebung und Hyperfeinstrukturaufspaltung des intermediären 6^3P_1 Niveaus ebenfalls isotopenselektiv ist. Ebenso ist ein Einfluss der aus dem 7^1S_0 in das 6^3P_1 oder 6^1P_1 Niveau zerfallenen Atome, sowie die Auswirkung von Sättigung bisher unberücksichtigt. In [162] wird darüber hinaus die bei Zwei-Photonen Absorption zusätzlich auftretende geschwindigkeitsselektive Anregung auf Grund eines dynamischen Stark Effektes diskutiert.

Obwohl die Details der beobachteten, veränderten Isotopenhäufigkeit noch nicht vollständig verstanden sind, wird davon ausgegangen, dass die Ursache hierfür die durch den starken transversalen Einschluss der Atome in der Hohlleiter hervorgerufene LID ist. Die gezeigten Messungen stellen somit die nach unserem Kenntnisstand erste experimentelle Beobachtung von Zwei-Photonen Absorption bedingter Licht-induzierter Drift dar. Dabei spielt die Tatsache, dass die Propagationsverluste in der Faser zu einer stärkeren Ausprägung des Effektes führen eine maßgeblich Rolle (vergleiche Abschnitt 2.4.2).

Im Hinblick auf die VUV Erzeugung ist wegen des Einflusses der Dichteveränderungen auf die Phasen Anpassung des Mischprozesses ein besseres Verständnis der vorliegenden Mechanismen notwendig. Dies bedarf weiterer systematischer Untersuchungen, sowohl experimenteller als auch theoretischer Natur. Da die Auswirkungen von LID im vorliegenden Experiment nur als Nebeneffekt zu beobachten sind, ist auf experimenteller Seite gegebenenfalls eine modifizierte Messanordnung zweckmäßig, in welcher sich die Einflüsse isoliert quantifizieren lassen. So ist beispielsweise in einer geschlossenen Zelle der sich einstellende relative Druckunterschied auf Grund von SLID direkt proportional zum Unterschied der Akkomodationskoeffizienten von Grund- und angeregtem Zustand. SLID stellt damit, losgelöst von seinem Einfluss auf die Erzeugung von kohärenter kurzwelliger Strahlung, eine sensitive Methode zur Untersuchung zustandsselektiver Oberflächenwechselwirkung von Atomen dar und ist auch hinsichtlich der Möglichkeit zur Isotopentrennung ein eigenständiges, interessantes Forschungsthema.

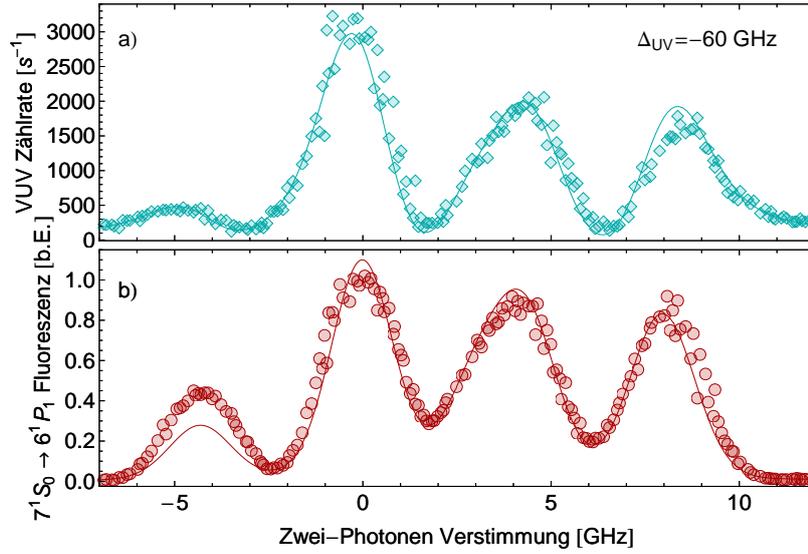


Abbildung 4.9: Zwei-Photonen Signal in der VUV Zählrate. a) VUV Zählrate in Abhängigkeit von der Zwei-Photonen Verstimmung. b) Zugehöriges, transversal aufgezeichnetes Fluoreszenzsignal des 7^1S_0 Niveaus. Die theoretischen Verläufe sind als durchgezogene Kurven eingezeichnet. Verstimmung zum 12^1P_1 Niveau $\Delta_{\text{VUV}} = -31$ GHz, $T_{\text{Kammer}} = 90$ °C.

4.2 VUV Erzeugung in einer Hohlfaser

Im Folgenden werden die ersten Ergebnisse zur Erzeugung vakuumultravioletter Laserstrahlung durch Summenfrequenzmischung in einer Quecksilberdampf gefüllten Hohlfaser präsentiert. Nach unserem Kenntnisstand stellt dies die erste experimentelle Demonstration von durch einen Vierwellenmischprozesses in einer mit Metaldampf gefüllten Faser erzeugter VUV Strahlung dar. Dies markiert einen wichtigen Schritt hin zu einer Effizienzsteigerung kontinuierlicher kohärenter VUV Lichtquellen. In diesen ersten Experimenten wird für den grünen Fundamentalstrahl eine Wellenlänge von 540 nm gewählt, um durch die Nähe zu einer vakuumultravioletten Ein-Photon Resonanz die nichtlineare Suszeptibilität zu erhöhen. Die Wellenlänge der generierten Strahlung beträgt damit 121,26 nm. Der Einfluss der Zwei-Photonen Resonanz auf den Vierwellenmischprozess wird anhand von Abbildung 4.9 a) verdeutlicht. Es zeigt die am Photomultiplier gemessene Zählrate detektierter VUV Photonen als Funktion der Zwei-Photonen Verstimmung. Hierfür wurde bei einer festen UV Verstimmung von $\Delta_{\text{UV}} = -60$ GHz die Frequenz des blauen Lasers über die Zwei-Photonen Resonanz gescannt. Die Erhöhung der Mischeffizienz bei Erfüllung der Resonanzbedingung für die unterschiedlichen Isotope ist als deutliche Signatur im Signal zu erkennen. Die durchgezogene Kurve entspricht der berechneten Linienform und liefert eine sehr gute Übereinstimmung mit den Messwerten. Die Untergrundzählrate des Photomulti-

pliers beträgt bei der Messung etwa 50 s^{-1} und ist auf detektiertes Streulicht des UV Lasers zurückzuführen. Abbildung 4.9 b) zeigt die zugehörige Zwei-Photonen Fluoreszenz zusammen mit dem berechneten Verlauf (durchgezogene Linie). Die theoretisch vorhergesagte Verschiebung der Maxima im VUV Signal gegenüber der Lage wie sie im Fluoreszenz Signal wiedergegeben werden, lässt sich auch experimentell verifizieren (vergleiche Abbildung 2.5).

Es fällt auf, dass die durch LID verursachte Diskrepanz in der Signalhöhe des ^{204}Hg Isotops nur im Fluoreszenzsignal, nicht aber in der VUV Zählrate auftritt. Eine Modifikation der Dichte sollte sich aber auch in der Leistung bei der erzeugten Summenfrequenz niederschlagen (vergleiche Gleichung (2.39b)). Die Erklärung für dieses Verhalten liegt in der Tatsache begründet, dass der hier gezeigte Mischprozess nicht korrekt temperaturphasenangepasst ist: Die bei der Messung eingestellte Kammertemperatur liegt mit $T_{\text{Kammer}} = 90 \text{ }^\circ\text{C}$ unterhalb der theoretischen Phasenangepasstungstemperatur von $T_{\text{opt}} = 97 \text{ }^\circ\text{C}$. Die Erkenntnisse aus Kapitel 3.3.1 lassen vermuten, dass wegen $T_{\text{Hg}} < T_{\text{Kammer}}$ die Fehlanpassung tendenziell noch größer ist. Somit findet nur in einem kurzen Bereich am Anfang der Faser eine effektive Konversion statt, in welchem die Dichteverteilung der Isotope durch den Anschluss an das Quecksilberreservoir weitgehend der natürlich vorkommenden Häufigkeitsverteilung entspricht. Die Fluoreszenz dagegen wird etwa in der Mitte der Faser detektiert, wo Dichteveränderungen durch LID am ausgeprägtesten sind.

Wie die Fluoreszenzmessungen des vorangegangenen Abschnittes gezeigt haben, wird der Einfluss von LID bei kleinen UV Verstimmungen signifikanter. Dies bestätigt sich auch in einer Messung der VUV Leistung in Abhängigkeit von der Zwei-Photonen Resonanz für eine UV Verstimmung von nur $\Delta_{\text{UV}} = -34 \text{ GHz}$, welche in Abbildung 4.10 dargestellt ist. Die beiden gezeigten Datensätze entsprechen wieder unterschiedlichen Scanrichtungen der blauen Laserfrequenz über die 7^1S_0 Resonanz. Die durch die Nähe zum 6^3P_1 Niveau erhöhte Anregungsrate begünstigt das Auftreten einer LID und geringe Höhenunterschiede der zu ^{204}Hg und ^{202}Hg gehörigen Resonanzen sind festzustellen. Zudem scheint eine, über das theoretisch erwartete Maß hinaus, stärkere Verschiebung des ^{204}Hg Peaks hin zu negativen Verstimmungen zu existieren. Die Ursache hierfür ist im Moment noch nicht geklärt.

Obwohl sich die rechnerischen, phasenangepassten Mischeffizienzen für die in Abbildung 4.9 und 4.10 eingestellten UV Verstimmungen nur um etwa 10% unterscheiden, ist die Zählrate bei der Messung mit $\Delta_{\text{UV}} = -34 \text{ GHz}$ deutlich größer. Dies lässt sich damit erklären, dass die Phasenangepasstungstemperatur von $T_{\text{opt}} = 85 \text{ }^\circ\text{C}$ näher an der tatsächlichen Quecksilberdampfatemperatur liegt, als in der vorangegangenen Messung. Damit geht eine Vergrößerung der Kohärenzlänge einher, so dass zudem die Indizien für Licht-induzierte Dichteänderungen prominenter werden.

Im Hinblick auf die Phasenangepasstung des Vierwellenmischprozesses muss berücksichtigt werden, dass LID zu einer Abweichung von der angestrebten homogenen

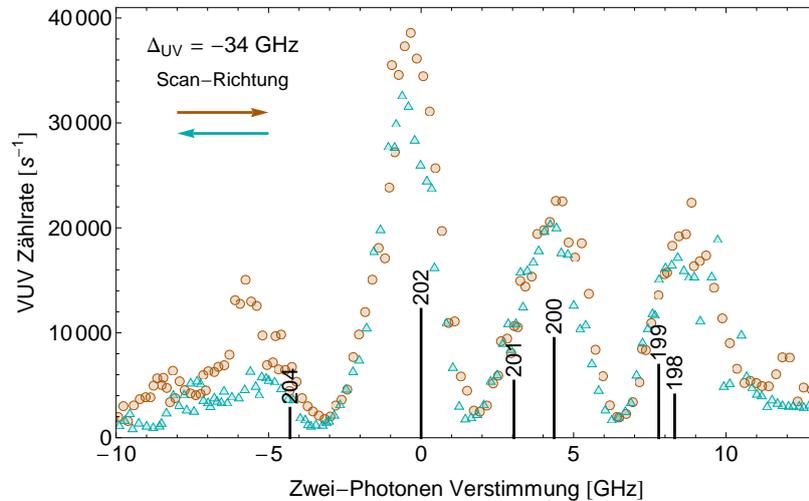


Abbildung 4.10: VUV Zählrate unter Einfluss von LID. Die beiden Datensätze zeigen den Einfluss der Zwei-Photonen Resonanz auf das VUV Signal bei unterschiedlicher Scanrichtung der blauen Laserfrequenz. Die leichten Unterschiede in den beiden Kurven werden auf LID zurückgeführt. Die horizontalen Balken deuten Lage und relative Häufigkeit eines natürlichen Isotopengemischs an. Bis auf die UV Verstimmung sind die experimentellen Parameter mit denen aus der in Abbildung 4.9 gezeigten Messung vergleichbar. Scanrate: 200 MHz/s.

Dichteverteilung führt. Dies schränkt gegebenenfalls die Bereiche möglicher Phasen Anpassung ein, insbesondere bei kleinen UV Verstimmungen.

Die für eine effiziente VUV Erzeugung erforderliche Phasen Anpassung der nichtlinearen Frequenzkonversion wird vermittels der Temperatur der Quecksilberkammer über die Dichte in der Faser eingestellt. Die in diesem Experiment bisher maximal erzielte VUV Leistung wurde in der in Abbildung 4.11 dargestellten Messung erreicht und beträgt 52 nW. Die Daten zeigen die Zählrate des Photomultiplifiers, während die Kammertemperatur über einen Bereich von etwa 70 °C bis 100 °C erhöht wurde. Für die Umrechnung von Zählrate in Leistung siehe Anhang C.3. Die Einkopplung der Fundamentalstrahlen in die Faser muss wegen der thermischen Ausdehnung der Apparatur dabei kontinuierlich nachjustiert werden. Der gemessene Kurvenverlauf weicht signifikant von der theoretisch erwarteten schmalen Linienform mit einem ausgeprägten Maximum ab, welches bei den gegebenen experimentellen Parametern rechnerisch um 87,4 °C zentriert sein müsste. Statt dessen zeigt sich nach einem steilen Anstieg oberhalb von 75 °C über einen weiten Temperaturbereich ein stark strukturierter Verlauf.

Als Ursache für dieses abweichende Verhalten kommen mehrere Aspekte in Frage: Betrachtet man die Strahlprofile der fundamentalen Laserstrahlen welche aus der Detektionskammer herausreflektiert werden (Abbildung 4.12) erkennt man, dass

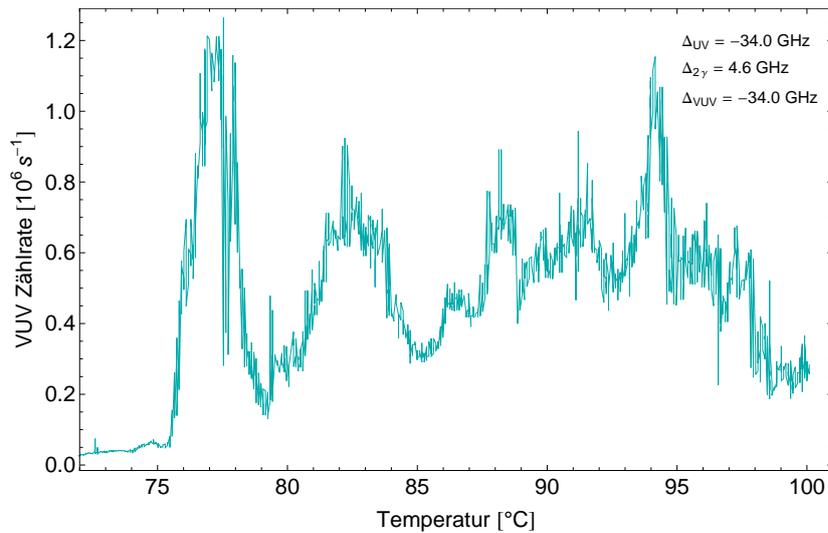


Abbildung 4.11: VUV Zählrate in Abhängigkeit von der Temperatur. Zur Phasen Anpassung wird die Quecksilberdichte über die Temperatur variiert. Die maximale VUV Leistung liegt bei etwa 52 nW.

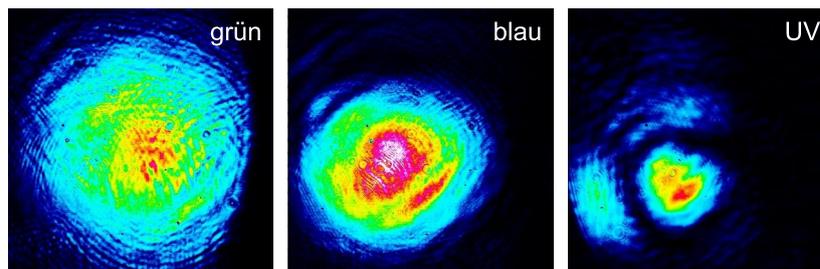


Abbildung 4.12: Fundamentalstrahlen hinter der Detektionskammer. Transversale Strahlprofile der Fundamentallaserstrahlen nach Austritt aus der Detektionskammer. Der UV Strahl weist höhere Modenanteile auf.

der UV Strahl bei der Messung nicht ausschließlich in der EH_{11} Fasergrundmode geführt wurde. Auch die höheren Modenanteile können an einem Mischprozess teilnehmen. Dieser ist allerdings bei höheren Temperaturen phasenangepasst (vergleiche Abschnitt 2.3.5).

Weiterhin ist der Einfluss von Licht-induzierten Dichteveränderungen und deren Relevanz für die Phasen Anpassung unklar. Fakt ist, dass bei einem signifikanten Auftreten von LID keine homogene Dichteverteilung vorliegt, was eine optimale Phasen Anpassung unterbindet.

Jenseits dieser physikalischen Aspekte, ist die Messung zudem durch eine technische Problematik verfälscht: Nachdem in folgenden Messungen weder die erzielbare Maximalleistung, noch die Struktur des Signals reproduziert werden konnte, wurde die Vakuumkammer geöffnet und eine Verschmutzung der MgF_2 Separa-

tionslinse zwischen Vierwellenmisch- und Detektionskammer festgestellt. Dabei handelt es sich um einen etwa 1 mm durchmessenden runden, bräunlichen Beschlag mittig auf der Linse, wo die Strahlen verlaufen. Die Verunreinigung ist ausschließlich auf der Seite der Quecksilberkammer und lässt sich mittels Methanol unproblematisch entfernen. Dies lässt vermuten, dass es sich um durch UV Exposition aufgespaltene organische Verbindungen handelt. In früheren Experimenten zur Lyman- α Erzeugung wurde dies bereits beobachtet, und kann zu einer Unterdrückung der VUV-Transmission von mehreren Größenordnungen führen [51]. Kryofallen in der Nähe und ein Heizen der kritischen Optiken können das Aufkommen derartiger Beschläge verhindern [157], was bei der Konzipierung der Apparatur auch berücksichtigt wurde. Da sich aber die *cutoff* Wellenlänge, bis zu welcher MgF_2 transparent ist (113,7 nm bei 25 °C), mit steigender Temperatur zu größeren Wellenlängen verschiebt [165], wurde die Separationslinse nur moderat und offenkundig unzureichend geheizt. Da an dem stärker geheizten Eintrittsfenster aus Quarzglas keine derartigen Verunreinigungen auftreten, besteht die Möglichkeit, dass eine höhere Temperatur der Linse bereits eine hinreichende Verbesserung der Situation herbeiführt. Alternativ muss die Vakuumkammer mit einem Kühlfinger in der Nähe der betroffenen Optik modifiziert werden.

Obwohl die Daten suggerieren, dass der Mischprozess nicht korrekt phasenangepasst war, beziehungsweise Absorption an der Verunreinigung der Separationslinse die erreichbaren VUV Leistungen limitiert hat, ergibt sich bei einer konservativen Abschätzung der eingekoppelten Fundamentalleistungen eine Mischeffizienz von $\eta_{\text{VUV}} > 550 \mu\text{W}/\text{W}^3$. Dieser Wert ist vergleichbar mit den bisher höchsten Mischeffizienzen die bei dreifach resonantem Vierwellenmischen mit fokussierten Gaußstrahlen erreicht wurden [54].

Folglich lässt das Konzept des Vierwellenmischens in einer Quecksilberdampf gefüllten Hohlleiter eine gute Prognose für zukünftige Effizienzsteigerungen kohärenter, kontinuierlicher VUV Quellen zu.

ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK

Zukünftige Vorhaben zur Laserkühlung und Spektroskopie magnetisch gefangener Antiwasserstoffatome, sowie quantenlogischen Operationen, mit Rydberg angeregten Calciumionen in einer Paulfalle, benötigen kontinuierliche Laserstrahlung im Bereich um 122 nm mit mehreren nW bis μ W Leistung.

Im Rahmen der vorgestellten Doktorarbeit wurden die theoretischen, sowie experimentellen Grundlagen für eine kontinuierliche VUV Quelle, basierend auf der nichtlinearen Summenfrequenzmischung dreier Fundamentallaserstrahlen in einer Quecksilberdampf gefüllten Hohlleiter geschaffen. In dieser soll die lange Wechselwirkungszone von Lichtfeldern und nichtlinearem Medium zu einer deutlichen Effizienzsteigerung gegenüber der Verwendung fokussierter Gaußstrahlen führen. Neben einer ausführlichen theoretischen Analyse des Vierwellenmischprozesses unter Berücksichtigung der relevanten Fasercharakteristika wurde eine kompakte Vakuumapparatur zur Erzeugung und Detektion von VUV Strahlung aufgebaut und in Betrieb genommen. Durch die Ausnutzung dreier atomarer Resonanzen in Quecksilber konnten 52 nW Leistung bei einer Wellenlänge von 121,26 nm nachgewiesen werden. Dies ist nach unserem Kenntnisstand das erste Mal, dass die Erzeugung kohärente, kontinuierliche VUV Strahlung durch Vierwellenmischen in einer Metaldampf gefüllten Hohlleiter demonstriert werden konnte. Obwohl aus apparativen Gründen keine optimale Phasenanpassung möglich war, ist die Mischeffizienz in diesen ersten Experimenten bereits vergleichbar mit den maximal erreichten Effizienzen mit fokussierten Strahlen.

Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit bilden damit einen guten Ausgangspunkt für weitere Leistungssteigerungen im VUV Bereich, die nach theoretischen Vorhersagen möglich sein sollten. Als ersten Schritt ist hier die Vermeidung der beobachteten Verunreinigungen der Separationslinse zu nennen, was Voraussetzung für die Messung einer kompletten Phasenanpassungskurve ist.

Ferner wurden bei der Untersuchung der für den Mischprozess essentiellen Zwei-Photonen Resonanz Hinweise auf Licht-induzierte Drift in der Faser auf Basis einer Zwei-Photonen Anregung beobachtet. Die durch diesen, bis dato experimen-

tell nicht beobachteten, Effekt bedingten signifikanten Dichtänderungen wirken sich negativ auf die Phasenanpassung aus. Entsprechend ist ein besseres quantitatives Verständnis der Vorgänge substanziell und sollte Gegenstand weiterer theoretischer wie experimenteller Untersuchungen sein.

Sowohl zukünftiges Dopplerkühlen von Antiwasserstoff, als auch die Rydberg-Physik mit gefangenen Ionen profitieren von einer effizienteren VUV Quelle: Beim Laserkühlen ist mit höheren VUV Leistungen eine direkte Reduzierung der Kühlzeit verbunden. Bei ausreichend hohen Mischeffizienzen können im Hinblick auf die Installation des Systems am CERN auch einfacher handhabbare Alternativsysteme für die Fundamentallaser mit geringeren Leistungsansprüchen in Erwägung gezogen werden.

Die Wahl der derzeit präferierten Rydbergniveaus ist stark an die Resonanzstruktur von Quecksilber, und der damit verbundenen Überhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität gekoppelt. Gelockerte Anforderungen an die Fundamentallaserleistungen würden hier eine größere Freiheit bei der Wahl des Rydbergniveaus erlauben.

Darüber hinaus existieren weitere Ansätze zur Weiterentwicklung des Systems, welche die erreichbaren VUV Leistungen steigern sollen. Bei diesen kann konzeptionell zwischen einer Steigerung der Fundamentalleistungen, welche vornehmlich mit Laserentwicklungen einhergehen, und Effizienzsteigerung des Vierwellenmischprozesses unterschieden werden. Diese sollen im Folgenden diskutiert werden.

Fundamentalleistungen und Laserentwicklung

Die Leistung jedes einzelnen Fundamentallasers liefert einen linearen Beitrag zur Leistung bei der Summenfrequenz. Entsprechend besteht ein nicht unwesentlicher Anteil an Forschungsarbeit der Gruppe in der Neu- und Weiterentwicklung von Lasersystemen mit hoher Ausgangsleistung bei den fundamentalen Wellenlängen. Mit dem selbst aufgebauten Faserverstärkersystem und der Frequenzverdopplung für den grünen Fundamentalstrahl, steht im Wellenlängenbereich von 540-555 nm bereits eine Quelle mit bis zu 20 W zur Verfügung [123,124,126].

Im blauen Lasersystem wurde mittlerweile die Pumpquelle des Ti:Sa Lasers durch ein stärkeres Modell¹ ersetzt wodurch bis zu 2,0 W bei 408 nm erreicht werden. In einem vergleichbaren System wurden Verdopplungseffizienzen von 80 % realisiert [166], so dass auch hier Optimierungsmöglichkeiten bestehen.

Die Ausgangsleistung des Systems bei 254 nm ist momentan durch Degeneration des BBO Kristalls bei der Verdopplung ins UV limitiert [121]. Mit dem in [127] präsentierten kryogenen Faserverstärker, welcher bis zu 10 W infrarote Leistung zur Frequenzvervierfachung bereitstellt, werden derzeit alternative nichtlineare Kristalle zur Frequenzkonversion untersucht. Für die Verdopplung

¹Coherent: Verdi V18

ins UV soll dabei Cäsium-Lithium-Borat ($\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$, kurz: CLBO) verwendet werden. Der nichtlineare Koeffizient von CLBO ist zwar nur etwa halb so groß wie der von BBO, doch führt der deutlich geringere walk-off Winkel zu einer insgesamt höheren Konversionseffizienz bei besserem Strahlprofil [167]. Mit CLBO wurden bei 266 nm bereits Leistungen von 5 W demonstriert [168].

Eine weitere Möglichkeit zur Steigerung der Fundamentalleistungen, welche als eigenständiges Projekt in der Arbeitsgruppe verfolgt wird, ist die gleichzeitige Überhöhung der Strahlen in drei verschachtelten Resonatoren. Durch Prismen werden dabei die fokussierten Arme der drei Doppel-Z-Resonatoren in einer Quecksilberdampfzelle überlagert [169]. Wegen des hohen Justageaufwandes und der technischen Komplexität der Dampfzelle [170,171] konnte bisher kein VUV Licht mit diesem Aufbau erzeugt werden. Es wurden aber Messungen zur Zwei-Photonen Resonanz durchgeführt und das Anschwingen von TALISE beobachtet [172].

Vierwellenmischeffizienz

Neben der Steigerung der Fundamentalleistungen ist die Verbesserung der Mischeffizienz die zweite Möglichkeit zur Leistungssteigerung im VUV. Diese setzt sich aus vielen, oft gekoppelten Faktoren wie Dichte, Phasen Anpassung und nicht-linearer Suszeptibilität zusammen und bietet daher mannigfaltige Ansatzpunkte zur Optimierung.

In Abschnitt 2.3.3 wurde erörtert, dass unter der Berücksichtigung von Phasen Anpassung und effektiv nutzbarer Faserlänge, ein veränderter Kernradius a eine Leistungsskalierung von a^{-2} mit sich bringt. Die Verwendung von Fasern mit kleineren Kernradien ist daher eine naheliegende Modifikation. Da dies mit einer Erhöhung der Phasen Anpassungstemperaturen, sowie einer Verkürzung der Faser und einer stärkeren Divergenz aller beteiligten Strahlen einhergeht, ist abzuwägen in welchem Maße eine Reduktion des Radius technisch umsetzbar ist. Ebenso wurde gezeigt, dass das Vierwellenmischen mit unterschiedlichen transversalen Fasermode vorteilhaft sein kann.

Eine Alternative, um die Limitierung der nutzbaren Faserlänge auf Grund der hohen Propagationsverluste der kapillaren Wellenleiter zu umgehen, und damit die Wechselwirkungszone weiter zu vergrößern, könnten photonische Kristall Hohlfasern (HC-PCF²) bieten: In diesen wird das Licht ebenfalls vornehmlich im hohlen Kern geführt. Dieser ist von einer periodischen Struktur unterschiedlicher Dielektrika (typischerweise Luft und Glas) umgeben, welche ein zweidimensionales Bragg-Gitter bilden. Die mehrfache Reflexion und Interferenz führt zur Ausbildung photonischer Bandlücken, welche eine nahezu verlustfreie Führung des Lichtes gewährleisten [173]. Die Bragg-Bedingung ist dabei jedoch nur für schmale Transmissionsfenster erfüllt und die Bandbreite geführter Wellenlängen

²Hollow-core photonic crystal fiber

entsprechend eingeschränkt. Anders ist dies in sogenannten Kagome Fasern, bei welchen der hohle Kern von einem, aus einer Struktur dünner Glasstreben bestehendem Mantel im Kagome-Gitter umgeben ist. Deren lichtleitenden Eigenschaften sind auf den geringen transversalen Überlapp der Feldverteilung von Kernmoden und möglicher Moden der umgebenden Mantelstruktur zurückzuführen³, welcher sie zudem unanfällig gegenüber Biegeverlusten macht [174,175]. Dabei kommt es zu keiner Ausbildung von photonischen Bändern, was kontinuierliche Transmission vom IR bis ins VUV möglich macht [176]. Wegen des ähnlichen dispersiven Verhaltens und den geringeren Propagationsverlusten gegenüber kapillaren Hohlfasern [176,177] stellen Kagome Fasern eine interessante Alternative zur Verlängerung der effektiv nutzbaren Wechselwirkungslänge dar [178]. Fraglich ist hierbei nur, ob die kleinen geometrischen Strukturen im Bereich weniger Mikrometer zu Problemen mit Kondensation von Quecksilber führen können. Gleiches gilt aber auch für die Verwendung von kapillaren Hohlfasern mit kleineren Kernradien.

Wegen der natürlichen Häufigkeitsverteilung der Isotope nimmt beim resonanten Vierwellenmischen immer nur ein Isotop effektiv am Mischprozess teil, welches im Fall des häufigsten Isotops ^{202}Hg 29,9% der Gesamtdichte ausmacht. Da die Dichte quadratisch in die Effizienz eingeht, erlaubt die Verwendung isotopenreinen Quecksilbers eine Steigerung um einen Faktor 11, jedoch ist diese mit einem hohen Kostenaufwand verbunden. Unter diesem Gesichtspunkt ist die Hohlaser in zweifacher Weise interessant: Zum Einen ist das Dampfvolumen in der Faser sehr gering, so dass die Anschaffungskosten wirtschaftlich vertretbar bleiben. Zum Anderen steht mit dem Mechanismus der Licht-induzierten Drift eine Methode zur Verfügung in einer geeigneten Apparatur gegebenenfalls selbstständig Isotopentrennung vorzunehmen.

Bisher wurde der Vierwellenmischprozess nur mit UV Verstimmungen auf der langwelligen Seite der 6^3P_1 Resonanz aller Isotope durchgeführt. Die theoretischen Rechnungen sagen noch ein deutliches Potential beim Vierwellenmischen zwischen den Resonanzen voraus, welches in Zukunft erforscht werden soll. Da in der Theorie nahresonante Effekte wie LID und AC-Stark Verschiebung noch nicht enthalten sind, und in ersten Experimenten mit fokussierten Strahlen bereits eine bisher nicht verstandene Sättigung der VUV Leistung beobachtet wurde, sollte dieser Frequenzbereich Gegenstand weiterer Forschungsbemühungen sein.

Die Untersuchung des Einflusses der ultravioletten Ein-Photon Resonanz [53,81] hat gezeigt, dass die resonante Überhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität bei sinkender UV Verstimmung in erster Ordnung vollständig durch die sinkende Phasenanpassungstemperatur und damit geringere Dichte kompensiert wird. Eine Option diese beiden Größen zumindest teilweise zu entkoppeln, um die Dichte unabhängig von der Phasenanpassung zu erhöhen, ist Quasiphasenanpassung

³bekannt als: low density of states guidance

(QPM⁴). Diese schon 1962 von Armstrong vorgeschlagene Methode basiert auf der periodischen Modulation der nichtlinearen Suszeptibilität mit der Kohärenzlänge des nicht phasenangepassten Prozesses [179]. Dies kompensiert die Dephasierung von fundamentalen und erzeugtem Lichtfeld. Während bei fokussierten Strahlen die Wechselwirkungszone mit etwa 1 mm zu kurz ist, sind QPM Szenarien auf der Längenskala der Hohlleiter denkbar. Hier könnte zum Beispiel die starke Abhängigkeit der Mischeffizienz von der Erfüllung der Zwei-Photonen Resonanz Bedingung zur Variation von $\chi^{(3)}$ genutzt werden, indem ein periodisches Magnetfeld durch den Zeeman-Effekt das Zwei-Photonen Niveaus in oder von der Resonanz schiebt. Die mathematische Formulierung zur Berechnung der Mischeffizienz bei räumlich inhomogener linearer und nichtlinearer Suszeptibilitäten wurde im Zuge dieser Arbeit bereits erarbeitet.

Eine weitere interessante Option, welche häufig im Zusammenhang mit resonantem Vierwellenmischen diskutiert wird, ist die Reduktion der Ein-Photon Absorption durch elektromagnetisch induzierte Transparenz (EIT). Hierbei wird das Ein-Photon Niveau unter dem Einfluss eines starken Kopplungslasers aufgespalten, was zu einer destruktiven Interferenz möglicher Anregungspfade und einer reduzierten Absorption bis hin zur vollständigen Transparenz führt. Die nichtlineare Suszeptibilität verringert sich ebenfalls, bleibt aber wegen konstruktiver Interferenz endlich [180]. In [181] wurde das Potential von EIT für das Vierwellenmischen in Quecksilber detailliert untersucht und festgestellt, dass die geringe Wechselwirkungszeit der Atome mit dem Lichtfeld die Ausprägung von EIT limitiert. Der transversale Einschluss in einer Hohlleiter könnte hier eine Verbesserung zur Folge haben. Die mathematischen Grundlagen zur Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität in Quecksilber über die Lösung der optischen Bloch Gleichungen eines Vier-Niveau Systems wurden in [89] erarbeitet.

Zuletzt sei noch erwähnt, dass Überlegungen zu anderen Mischschemata angestellt wurden. So kommt in Quecksilber neben dem 7^1S_0 auch der 7^3S_1 Zustand als resonantes Zwei-Photonen Niveau in Frage [82]. Dadurch, dass dieser ein Triplett Zustand ist, werden Interkombinationsübergänge vermieden, was wegen der größeren Übergangsstärken höhere Effizienzen verspricht. Der Übergang vom 6^3P_1 Zustand ist über eine Wellenlänge von $\lambda_2 = 436,0$ nm erreichbar, welche im Wellenlängenbereich frequenzverdoppelter Ti:Sa Laser liegt. Für die Erzeugung von Lyman- α Licht ist als dritte Wellenlänge $\lambda_3 = 502,3$ nm notwendig. Eine potentielle leistungsstarke Lichtquelle bei der doppelten Wellenlänge könnte hier der vorgestellte kryogene Faserverstärker sein, da die Reabsorption thermisch besetzter Zustände durch die Kühlung bis unterhalb von 1000 nm unterdrückt wird. Über diese qualitative Argumentation hinaus wurde die Mischeffizienz für die Produktion von Lyman- α Licht berechnet. Die notwendigen Quecksilberdaten sind in Anhang 2.1 aufgeführt. Allerdings verschwindet wegen der Auswahlregeln das Dipolmatrixelement für den $6^3P_1 \rightarrow 7^3S_1$ Übergang mit π -Licht wegen

⁴engl. **quasi-phase**matching

$\Delta J = 0$ und $\Delta m_J = 0$ identisch, so dass zirkulares (σ^+ , σ^-) oder senkrecht zur π -Polarisation polarisiertes σ -Licht verwendet werden muss [182]. Hier wurde ein Schema mit π -Licht für λ_1 und λ_4 sowie σ -Licht für λ_2 und λ_3 gewählt. Die Berechnung der entsprechenden Dipolmatrixelemente für σ -Polarisation aus der Absorptionoszillatorstärke f_{ij} des Übergangs berechnen sich über die Formel [72,183]

$$|\langle J, m_J \pm 1 | d_\sigma | J, m_J \rangle| = ea_0 \sqrt{\frac{J(J+1) - m_J(m_J \pm 1)}{2J(J+1)(2J+1)} \frac{3}{2} \frac{f_{ij} c R_\infty g_i}{\frac{\omega_{ij}}{2\pi}}}. \quad (5.1)$$

Dabei bezeichnet e die Elementarladung, a_0 den Bohr'schen Radius, c die Vakuumlichtgeschwindigkeit, R_∞ die Rydbergkonstante und g_i den Entartungsgrad des unteren Niveaus. Entgegen der Erwartung liegen die theoretischen Mischefizienzen etwa einen Faktor 10 unter denen für das 7^1S_0 Niveau, was vermutlich mit dem höheren Entartungsgrad des Triplett Zustandes und der geänderten Polarisation erklärt werden kann.

Mischen mit unterschiedlichen fundamentalen Polarisation zur Erzeugung zirkular polarisierter VUV Strahlung [184] ist auch im Hinblick auf die Laserkühlung von Antiwasserstoff interessant. Hier wird für den geschlossenen Kühlübergang $|1S_{1/2}, F = 1, m_F = -1\rangle \rightarrow |2P_{3/2}, F' = 2, m_{F'} = -2\rangle$ σ^- -Licht benötigt. Wellenplatten mit hinreichender Präzision bei Lyman- α können aber wegen der Überschneidung von ordentlichem und außerordentlichem Brechungsindex von MgF_2 bei 119,4 nm technisch anspruchsvoll zu produzieren sein [185].

KONSTANTEN UND MATERIALDATEN

A.1 Konstanten

Liste der in dieser Arbeit verwendeten Naturkonstanten. Bis auf die Quecksilbermasse m_{Hg} [186] wurden alle Daten [187] entnommen.

Tabelle A.1: Relevante Naturkonstanten.

Name	Zeichen	Wert
Dielektrische Feldkonstante	ε_0	$8,854187817... \times 10^{-12} \text{ F/m}$
Elementarladung	e	$1,602176565(35) \times 10^{-19} \text{ C}$
Elektronenmasse	m_e	$9,10938291(40) \times 10^{-31} \text{ kg}$
Planckkonstante	h	$6,62606957(29) \times 10^{-34} \text{ Js}$
Bohr'scher Radius	a_0	$0,52917721092(17) \text{ \AA}$
Vakuumlichtgeschwindigkeit	c	299792458 m/s
Atomare Masseneinheit	u	$1,660538921(73) \times 10^{-27} \text{ kg}$
Boltzmann Konstante	k_B	$1,3806488(13) \times 10^{-23} \text{ J/K}$
Rydberg Konstante	R_∞	$10973731,568539(55) \text{ 1/m}$
Atomare Masse von Hg	m_{Hg}	$200,592(3) \text{ u}$

A.2 Quecksilberdaten

Im folgenden Abschnitt sind die für die in Kapitel 2.1 vorgestellten Berechnungen der linearen und nichtlinearen Suszeptibilität notwendigen Daten von Quecksilber zusammengefasst.

A.2.1 Dampfdruckkurve von Quecksilber

Die experimentell zugängliche Größe zur Variation der Teilchenzahldichte ist die Temperatur des Quecksilbers. Die Kenntnis der temperaturabhängigen Dampfdruckkurve ermöglicht es, mit Hilfe der idealen Gasgleichung, die Temperatur mit der Dichte zu verknüpfen. Eine entsprechende Kurve ist in [111] tabelliert und hier wiedergegeben. Für Zwischenwerte werden die Datenpunkte interpoliert.

Tabelle A.2: Dampfdruck von Quecksilber in Abhängigkeit von der Temperatur.

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

A.2.2 Übergangsfrequenzen und Oszillatorstärken

Zur Berechnung der Suszeptibilitäten $\chi^{(1)}$ und $\chi^{(3)}$ nach Kapitel 2.1 ist die Kenntnis der vom 6^1S_0 Grundzustand und vom 7^1S_0 Zwei-Photonen Niveau aus erlaubten Ein-Photon Übergänge erforderlich. Wegen der intermediären Kopplung in Quecksilber werden Singulett und Triplett Zustände berücksichtigt. Die energetische Lage der entsprechenden n^1P - und n^3P -Zustände bis $n = 13$ wurden [188] entnommen und in Tabelle A.3 zusammengefasst. Hierbei handelt es sich um Schwerpunktsenergien der Isotope und Hyperfein-Komponenten. Die entsprechenden Oszillatorstärken der Übergänge wurden in [73,74] vermessen und sind zusammen mit dem Vorzeichen, mit dem die Übergangsmatrixelementprodukte in die Berechnung eingehen, aufgeführt. Der Einfluss des Kontinuums wird durch den dominierenden, autoionisierenden Zustand $(^2D_{3/2})6p' ^1P$ oberhalb der Ionisationsschwelle von $\omega_{\text{ion}} = 15857,3$ THz erfasst. Für die Berechnung der Effizienz

des im Ausblick angesprochenen alternativen Mischschemas sind auch die Werte für das 7^3S_1 Niveau angegeben.

Tabelle A.3: Energien, Oszillatorstärken und relative Vorzeichen der Dipolmatrixelementprodukte relevanter Übergänge in Quecksilber. Die Lage der Energieniveaus ist relativ zum 6^1S_0 Grundzustand angegeben.

Zustand	Frequenz ω [THz]	$f_{6^1S \rightarrow n^2S+1P}$	$f_{7^1S \rightarrow n^2S+1P}$	$f_{7^3S \rightarrow n^2S+1P}$
6^1S	0			
6^3P	7423,8705	0,024	-0,0022	-0,12
6^1P	10184,6744	1,15	-0,15	+0,0051
7^3S	11932,9817			
7^1S	12041,8185			
7^3P	13121,873	$< 10^{-5}$	+0,11	+0,52
7^1P	13429,522	0,020	+1,24	-0,016
8^3P	14403,7311	0,0014	$+1,2 \times 10^{-4}$	-0,013
8^1P	14478,3608	0,010	-0,029	$-3,2 \times 10^{-4}$
$(^2D_{5/2})6p'^1P$	14845,6	0,15	+0,018	+0,0015
9^3P	14958,5942	0,0055	$-5,0 \times 10^{-5}$	+0,0016
9^1P	15062,45	0,070	+0,029	+0,0033
10^3P	15241,8842	0,0018	$+2,6 \times 10^{-7}$	$+6,6 \times 10^{-4}$
10^1P	15286,5132	0,0155	+0,0097	+0,0013
11^3P	15410,5068	0,0011	$+1,6 \times 10^{-6}$	$+3,0 \times 10^{-4}$
11^1P	15435,1013	0,0050	+0,0050	$+7,5 \times 10^{-4}$
12^3P	15517,33	0,0008	$+7,5 \times 10^{-6}$	$+2,0 \times 10^{-4}$
12^1P	15533,354	0,0023	+0,0025	$+3,8 \times 10^{-4}$
13^3P	15590,21	0,0005	$+1,7 \times 10^{-5}$	$+1,7 \times 10^{-4}$
13^1P	15601,144	0,0011	+0,0015	$+3,1 \times 10^{-4}$
$(^2D_{3/2})6p'^1P$	16719,3	0,53	+0,061	$+2,9 \times 10^{-4}$

A.2.3 Isotopieverschiebung und Hyperfeinstrukturaufspaltung

Auf Grund der Nähe zur Ein- und Zwei-Photonen Resonanz kann der Einfluss von Isotopieverschiebung und Hyperfeinstrukturaufspaltung für das 6^3P_1 und 7^1S_0 beziehungsweise 7^3S_1 Niveau nicht vernachlässigt werden. Für sechs der sieben stabilen Quecksilber Isotope ist in Tabelle A.4, die in einem natürlichen Isotopengemisch vorkommende Häufigkeit [189], zusammen mit den Isotopieverschiebungen für das 6^3P_1 [190] und die $7S$ Niveaus [191,192] aufgeführt. Die Verstär-

mung ist dabei relativ zum häufigsten Isotop ^{202}Hg angegeben. Das stabile Isotop ^{196}Hg wird wegen seiner geringen Häufigkeit von 0,15 % nicht berücksichtigt. Bei Übergängen zum 6^3P_1 und 7^3S_1 Zustand tritt bei den ungeraden Isotopen ^{199}Hg und ^{201}Hg wegen des nichtverschwindenden Kernspins von $I = 1/2$ beziehungsweise $I = 3/2$ zusätzlich eine Hyperfeinstrukturaufspaltung mit Entartungsgrad $g = 2F + 1$ auf [193].

In den Berechnungen der Suszeptibilitäten müssen die beitragenden Übergangsstärken entsprechend ihrer relativen Häufigkeit und des Verzweigungsverhältnisses berücksichtigt werden.

Tabelle A.4: Hyperfeinstruktur im Quecksilber. Relative Häufigkeit der stabilen Quecksilber Isotope und Isotopieverschiebung. Für den 6^3P_1 und 7^3S_1 Zustand sind für die ungeraden Isotope ferner die Hyperfeinkomponenten (HFK) mit Entartungsgrad g angegeben.

Isotop	Häufigkeit [%]	$\Delta_{6^1S_0 \rightarrow 7^1S_0}$ [GHz]	HFK	g	$\Delta_{6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1}$ [GHz]	$\Delta_{6^1S_0 \rightarrow 7^3S_1}$ [GHz]
^{198}Hg	9,968	8,314			10,102	8,375
^{199}Hg	16,873	7,791	$F = \frac{1}{2}$	2	-5,283	-13,644
			$F = \frac{3}{2}$	4	16,833	18,604
^{200}Hg	23,096	4,362			5,297	4,392
^{201}Hg	13,181	3,045	$F = \frac{1}{2}$	2	16,844	22,938
			$F = \frac{3}{2}$	4	9,292	11,013
			$F = \frac{5}{2}$	6	-4,694	-8,855
^{202}Hg	29,863	0			0	0
^{204}Hg	6,865	-4,297			-5,207	-4,326

A.3 Eigenschaften optischer Materialien

Für die in dieser Arbeit angestellten Berechnungen sind die optischen Eigenschaften, wie Brechungsindex und Absorptionskoeffizient, der verwendeten Gläser und Kristalle relevant. Die hierfür herangezogenen Daten sind in diesem Kapitel zusammengetragen.

A.3.1 Komplexer Brechungsindex von Quarzglas (SiO_2)

Für die Berechnung der Fasereigenschaften ist die Kenntnis des komplexen Brechungsindex $\nu = n + ik$ des Mantelmaterials erforderlich. Dabei bezeichnet n den realen Brechungsindex und k den Extinktionskoeffizienten. Die verwendeten Fasern (Polymicro TSU050375) bestehen aus Quarzglas, dessen Brechungsindex

zum Beispiel in [194] tabelliert ist. Ein Auszug aus dieser Tabelle für die relevanten Wellenlängenbereiche ist in Tabelle A.5 zusammengefasst. Zwischenwerte werden über eine Interpolation der Daten bestimmt.

Tabelle A.5: Komplexer Brechungsindex von Quarzglas (SiO₂).

λ [nm]	n	k	λ [nm]	n	k
120,4	2,048	0,925	239,938	1,51338	0
121,0	2,152	0,810	248,272	1,50841	0
121,5	2,240	0,715	265,204	1,50004	0
122,8	2,332	0,460	269,885	1,49805	0
124,0	2,330	0,323	275,278	1,49592	0
125,2	2,292	0,236	361,051	1,47512	0
130,5	2,092	0,0561	365,015	1,47453	0
136,2	1,935	0,0228	404,656	1,46961	0
142,5	1,825	$1,09 \times 10^{-2}$	435,835	1,46669	0
151,2	1,73	$4,63 \times 10^{-3}$	467,816	1,46429	0
163,1	1,653	0	486,133	1,46313	0
183,7	1,582	0	508,582	1,46187	0
198,4	1,554	0	546,074	1,46008	0
213,856	1,53429	0	576,959	1,45885	0
226,747	1,52276	0	579,065	1,45877	0
237,833	1,51474	0	587,561	1,45847	0

A.3.2 Brechungsindex von Magnesiumfluorid (MgF₂)

Zur dispersiven Trennung der Fundamentalstrahlen von dem erzeugten Lichtfeld im VUV-Bereich wird ein Magnesiumfluorid Prisma (MgF₂) verwendet. Die Berechnung des Ablenkungswinkels erfordert die Kenntnis des realen Brechungsindex n . Ordentlicher (o) und außerordentlicher (ao) Brechungsindex können im Wellenlängenbereich von 202,6 nm bis 7,04 μm durch die Sellmeier-Gleichungen

$$n_o(\lambda) = \left[1 + \frac{0.48755108\lambda^2}{\lambda^2 - (4.338408 \times 10^{-8} \text{ m})^2} + \frac{0.39875031\lambda^2}{\lambda^2 - (9.461442 \times 10^{-8} \text{ m})^2} + \frac{2.3120353\lambda^2}{\lambda^2 - (2.3793604 \times 10^{-5} \text{ m})^2} \right]^{1/2}, \quad (\text{A.1a})$$

$$n_{\text{ao}}(\lambda) = \left[1 + \frac{0.41344023\lambda^2}{\lambda^2 - (3.684262 \times 10^{-8} \text{ m})^2} + \frac{0.50497499\lambda^2}{\lambda^2 - (9.076162 \times 10^{-8} \text{ m})^2} + \frac{2.4904862\lambda^2}{\lambda^2 - (2.3771995 \times 10^{-5} \text{ m})^2} \right]^{1/2}, \quad (\text{A.1b})$$

beschrieben werden [195]. Messungen zum Brechungsindex unterhalb von 200 nm wurden in [165] durchgeführt und sind in Tabelle A.6 wiedergegeben. Für Zwischenwerte werden die Daten interpoliert.

Tabelle A.6: Ordentlicher (o) und außerordentlicher (ao) Brechungsindex von Magnesiumfluorid (MgF₂).

λ [nm]	n_{o}	n_{ao}	λ [nm]	n_{o}	n_{ao}
114,55	1,753	1,7295	150,00	1,48	1,4945
114,90	1,742	1,7215	155,00	1,4715	1,4855
115,65	1,7235	1,708	160,00	1,461	1,475
116,76	1,7	1,6905	165,00	1,4535	1,4675
117,85	1,68	1,675	170,00	1,4475	1,4615
119,80	1,651	1,652	175,00	1,4435	1,4575
121,53	1,6275	1,632	178,00	1,43975	1,45362
125,10	1,5915	1,6005	180,00	1,439	1,453
127,50	1,573	1,5835	185,00	1,43424	1,44795
130,15	1,5565	1,568	190,00	1,4305	1,444
135,00	1,5285	1,5415	195,00	1,426	1,4395
140,00	1,5095	1,523	200,00	1,422	1,4355
145,00	1,4945	1,5085			

Der Unterschied im Ablenkwinkel für ordentliche und außerordentliche Strahlen liegt, in der im Experiment gegebenen Geometrie, bei wenigen mrad und kann demnach vernachlässigt werden.

LINIENBREITEN

In der Literatur findet sich eine Vielzahl von Beschreibungen für Linienbreiten, mit der die spektralen Eigenschaften von Resonanzlinien charakterisiert werden, die aber nur selten einer einheitlichen Nomenklatur folgen. Beim Vergleich oder gleichzeitigem Auftreten mehrerer Verbreiterungsmechanismen muss entsprechend sorgfältig darauf geachtet werden, dass komparable Größen verwendet werden.

Im folgenden Abschnitt werden die typischerweise relevanten Verbreiterungsmechanismen und die assoziierten Breiten diskutiert, und eine einheitliche Nomenklatur definiert.

B.1 Nomenklatur

In der vorliegenden Arbeit wurde darauf geachtet eine einheitliche Nomenklatur bei der Bezeichnung von Frequenzbreiten zu verwenden. Die verwendeten Formelsymbole sind dabei eindeutig den verschiedenen Breiten zugeordnet. Weiterhin wird bei der Angabe von Zahlenwerten die Verwendung von Kreisfrequenzen mit dem Voranstellen von „ $2\pi \times \dots$ “ angedeutet.

Hier folgt eine Auflistung der für die Beschreibung von Breiten verwendeten Formelzeichen:

- Γ - beschreibt die volle Halbwertsbreite einer Resonanzlinie, ausgedrückt als Kreisfrequenz. Ein prominentes Beispiel ist die natürliche Linienbreite, wenn sie als Kehrwert der Lebensdauer des Niveaus definiert ist $\Gamma_n = \tau_n^{-1}$ [196].
- γ - entspricht der halben Halbwertsbreite als Kreisfrequenz, also $2\gamma = \Gamma$. Dieser Ausdruck wird zum Beispiel in der Berechnung der Suszeptibilität (Gleichung (2.3)) für die Dipol-Dephasierungsrate verwendet.
- Δ - bezeichnet die volle Halbwertsbreite, ausgedrückt als Frequenz.

- δ - steht für die halbe Halbwertsbreite als Frequenz. Diese Form wird zum Beispiel häufig in Zusammenhang mit der sogenannten *Lorentzbreite* verwendet, wenn die Linienform als $g_L(\nu, \mu, \delta) = (\delta/\pi)/[(\nu - \mu)^2 + \delta^2]$ definiert ist [197].
- σ - entspricht der gaußschen Standardabweichung, ausgedrückt als Frequenz. Sie ist als die halbe $e^{-1/2}$ -Breite einer Gaußkurve definiert und findet bei der Beschreibung der Dopplerverbreiterung Anwendung.

In der Umrechnungstabelle B.1 ist zusammengefasst, wie die unterschiedlichen Formulierungen der Breite in einander überführt werden können. Dabei ist zu beachten, dass die Standardabweichung σ nur für eine Gaußkurve definiert ist.

Tabelle B.1: Umrechnungsfaktoren für Linienbreiten. Den Ausdruck für den Zeileneintrag erhält man aus der Multiplikation des Spalteneintrags mit dem Faktor im Kreuzungspunkt.

	Γ	γ	Δ	δ	σ
Γ	1	2	2π	4π	$4\pi\sqrt{2\ln(2)}$
γ	$\frac{1}{2}$	1	π	2π	$2\pi\sqrt{2\ln(2)}$
Δ	$\frac{1}{2\pi}$	$\frac{1}{\pi}$	1	2	$2\sqrt{2\ln(2)}$
δ	$\frac{1}{4\pi}$	$\frac{1}{2\pi}$	$\frac{1}{2}$	1	$\sqrt{2\ln(2)}$
σ	$\frac{1}{4\pi\sqrt{2\ln(2)}}$	$\frac{1}{2\pi\sqrt{2\ln(2)}}$	$\frac{1}{2\sqrt{2\ln(2)}}$	$\frac{1}{\sqrt{2\ln(2)}}$	1

Dipol-Dephasierungsrate

Die homogenen Verbreiterungsmechanismen bei der Berechnung der linearen und nichtlinearen Suszeptibilität werden über die Dephasierungsrate γ_{nm} der Nebendiagonaleinträge der Dichtematrix eingeführt [71]. Diese setzt sich aus den natürlichen Linienbreiten $\Gamma_{n,m}$ der am Übergang beteiligten Niveaus n und m und der Dephasierungsrate $\gamma_{nm}^{\text{deph}}$ zusammen:

$$\gamma_{nm} = \frac{1}{2}(\Gamma_n + \Gamma_m) + \gamma_{nm}^{\text{deph}}. \quad (\text{B.1})$$

Die Größe $\gamma_{nm}^{\text{deph}}$ fasst dabei die Rate dephasierender Prozesse (wie zum Beispiel elastische Stoßverbreiterung) zusammen.

B.2 Druckverbreiterung in Quecksilber

Bei der Berechnung der Suszeptibilitäten ist im Falle von nahresonanter Einstrahlung der Fundamentallaser die Verbreiterung der atomaren Niveaus relevant. Die Eigendruckverbreiterung ist dabei der dominante homogene Verbreiterungsmechanismus.

Die Druckverbreiterung basiert auf stoßinduzierten Störungen der atomaren Zustände. Dabei wird zwischen inelastischen (löschenden) und elastischen Stößen unterschieden. Bei inelastischen Stößen ändert sich der innere Zustand des Atoms und es kommt zu einer Abregung. Diese kann über eine zusätzliche Zerfallsrate der atomaren Besetzung ausgedrückt werden, die für optische Übergänge in Atomen in der Regel aber klein ist [198]. Elastische Stöße führen zu einer Phasenstörung der Wellenfunktionen, was eine spektrale Verbreiterung bedingt. Abhängig von der Relativgeschwindigkeit der Atome kann dabei das Potential des Stoßpartners einen deutlichen Einfluss haben. Für den $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Übergang in Quecksilber wurde in [75] die Druckverbreiterung über einen weiten Druckbereich hin vermessen. Für die im vorliegenden Experiment auftretenden Dichten kann die Verbreiterung über eine semi-klassische Stoßnäherung approximiert werden

$$\Delta_{\text{Druck}} = \frac{4\pi}{\sqrt{3}} K C_3 N, \quad (\text{B.2a})$$

mit der Konstanten

$$C_3 = \frac{e^2 f_{nm}}{32\pi^3 \varepsilon_0 m_e \nu_{nm}}. \quad (\text{B.2b})$$

Dabei ist $K \sim 2,07$ eine dimensionslose Konstante, N die Dichte, e und m_e Ladung, beziehungsweise Masse des Elektrons und ε_0 die elektrische Feldkonstante. Die Frequenz des Übergangs wird mit ν_{nm} bezeichnet, f_{nm} entspricht der Oszillatorstärke. Die Formel (B.2) liefert für den $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Übergang eine gute Übereinstimmung, und wird daher für alle Ein-Photon Übergänge vom Grundzustand adaptiert.

Eine Linienverschiebung, welche von der Veränderung des effektiven Potentials durch die Eindringtiefe des Stoßpartners stammt, ist in dem vorliegenden Regime etwa zwei Größenordnungen kleiner als die Verbreiterung und kann demnach vernachlässigt werden [76].

Für die Druckverbreiterung des Zwei-Photonen Niveaus wird auf Messungen aus [81] zurückgegriffen. Dort wurde die homogene Verbreiterung des 7^1S_0 -Niveaus bei einer Temperatur von 130 °C aus der Linienform der Zwei-Photonen-Resonanz im Lyman- α -Signal auf $\gamma_{\text{hom},7^1S_0}(T = 130 \text{ °C}) = 2\pi \times 0,1 \text{ GHz}$ bestimmt. In einem einfachen Ansatz entspricht die Eigendruckverbreiterung der Stoßrate der Atome untereinander, und skaliert mit [77]

$$\Gamma_C = N \sigma_C \sqrt{\frac{16k_B T}{\pi m}}. \quad (\text{B.3})$$

Dabei bezeichnet σ_C den Stoßquerschnitt, k_B die Boltzmann Konstante, T die absolute Temperatur und m die Masse der Atome. Daraus lässt sich für den Fall des 7^1S_0 -Niveaus ein analoger Ausdruck aufstellen, der für die Abschätzung der Druckverbreiterung bei beliebigen Temperaturen herangezogen wird:

$$\Gamma_{C,7^1S_0} = 7,33 \times 10^{-17} \text{m}^2 N \sqrt{\frac{16k_B T}{\pi m_{\text{Hg}}}}. \quad (\text{B.4})$$

Dabei wurde berücksichtigt, dass der Anteil der natürlichen Linienbreite $\Gamma_{N,7^1S_0} = 2\pi \times 4,96 \text{ MHz}$ beträgt, welchen man aus der Lebensdauer $\tau_{7^1S_0} = 32,1 \text{ ns}$ erhält.

HERLEITUNGEN

C.1 Abhängigkeit der Mischeffizienz vom Faserkernradius

In diesem Abschnitt wird erläutert, wie die einzelnen Terme, die zur Vierwellenmischeffizienz (2.39b) beitragen, mit dem Faserkernradius a skalieren.

Phasenkonstante β

Die Phasenkonstante β_μ einer Hohlfasermode kann näherungsweise als

$$\beta_\mu \approx \frac{2\pi n_{\text{Hg}}(\omega_\mu)}{\lambda_\mu} - \frac{u_\mu^2 \lambda_\mu}{4\pi a^2}, \quad (\text{C.1})$$

geschrieben werden [63]. Der erste Term beschreibt dabei die Dispersion durch das Medium mit Brechungsindex n_{Hg} , der zweite die durch die Faser. Für $\lambda \ll a$ bleibt der Einfluss der Faserdispersion in $1/\beta_4^2$ klein und die Variation mit a kann vernachlässigt werden.

Teilchenzahldichte N

Durch Änderung des Faserradius, bei sonst konstant gehaltenen Parametern, beeinflusst man nur den Anteil der Faserdispersion zur Phasen Anpassung. Dieser muss entsprechend durch die Dispersion des Mediums kompensiert werden. Dies wird offensichtlich, wenn man die Phasenfehl Anpassung $\Delta\beta$ mit (C.1) und der Entwicklung

$$n_{\text{Hg}}(\omega_\mu) \approx 1 + \frac{1}{2} N \underbrace{\text{Re}(\chi_a^{(1)}(\omega_\mu))}_{\equiv \chi_\mu} \quad (\text{C.2})$$

notiert:

$$\begin{aligned}
 \Delta\beta &= 2\pi \left(\sum_{i=1}^3 \frac{1 + \frac{1}{2}N\chi_i}{\lambda_i} - \frac{1 + \frac{1}{2}N\chi_4}{\lambda_4} \right) - \frac{1}{4\pi a^2} \left(\sum_{i=1}^3 u_i^2 \lambda_i - u_4^2 \lambda_4 \right) \\
 &= 2\pi \underbrace{\left(\sum_{i=1}^3 \frac{1}{\lambda_i} - \frac{1}{\lambda_4} \right)}_{=0} + \pi N \left(\sum_{i=1}^3 \frac{\chi_i}{\lambda_i} - \frac{\chi_4}{\lambda_4} \right) - \frac{1}{4\pi a^2} \left(\sum_{i=1}^3 u_i^2 \lambda_i - u_4^2 \lambda_4 \right) \\
 &\stackrel{!}{=} \pi N \left(\sum_{i=1}^3 \frac{\chi_i}{\lambda_i} - \frac{\chi_4}{\lambda_4} \right) - \frac{1}{4\pi a^2} \left(\sum_{i=1}^3 u_i^2 \lambda_i - u_4^2 \lambda_4 \right)
 \end{aligned} \tag{C.3}$$

Hier wurde in der zweiten Zeile ausgenutzt, dass sich die reziproken Wellenlängen der Fundamentalen gerade zu der der Erzeugten addieren. Da die Klammer-Terme in der letzten Zeile von (C.3) konstant sind, muss die Teilchendichte mit $N \propto a^{-2}$ skalieren, um Phasenanpassung zu gewährleisten.

Modenüberlapp G

Für die Betrachtung von G wird vereinfachend angenommen, dass alle beteiligten Strahlen in der EH_{11} Grundmode geführt werden. Das Integral im Zähler des Ausdrucks

$$G = \frac{\iint_A \left(\prod_{\mu=1}^4 J_0 \left(u_{\mu} \frac{r}{a} \right) \right) dA}{\sqrt{\prod_{\mu=1}^4 \left(\iint_A J_0 \left(u_{\mu} \frac{r}{a} \right)^2 dA \right)}}, \tag{C.4}$$

ist nicht analytisch integrierbar. Nähert man jedoch das transversale Profil durch das einer Gaußmode an, erhält man bei Integration über die Radialkomponente einen Faktor a^2 aus den Exponenten. Für die Integrale im Nenner existiert ein analytischer Ausdruck:

$$\int_0^a J_0 \left(u_{11} \frac{r}{a} \right)^2 r dr = \frac{1}{2} a^2 J_1(u_{11})^2. \tag{C.5}$$

Somit skaliert G insgesamt mit a^{-2} und ist damit invers proportional zur Kernquerschnittsfläche.

C.2 Diffusive Drift mehrerer Isotope

Für die Beschreibung der in Abschnitt 4.1.2 erarbeiteten Transportgleichungen muss die Diffusion eines Gemisches mehrerer Isotope betrachtet werden. Unter Vernachlässigung von Masseneffekten, haben die Isotope identische chemische Eigenschaften und können somit als ununterscheidbar angesehen werden. Der

Gesamtfluss J aller Isotope muss demnach das erste Fick'sche Gesetz

$$J = -D \frac{\partial}{\partial z} N, \quad (\text{C.6})$$

erfüllen, mit der Diffusionskonstanten D und der Gesamtdichte N . Der Anteil J_i eines ausgezeichneten Isotops i mit der Dichte N_i an der Gesamtdrift setzt sich dabei aus zwei Beiträgen zusammen [164]. Zum einen erfährt das Isotop durch den kollektiven Dichtegradienten $\partial_z N$ eine Drift, welche in erster Ordnung proportional zum lokalen Anteil N_i/N des Isotops an der Gesamtdichte ist. Zum anderen findet ein Konzentrationsausgleich der eigenen Spezies statt, welcher von einer Ortsabhängigkeit von N_i herrührt. Die allgemeine Form lautet

$$J_i = -\tilde{D}_i \frac{\partial}{\partial z} N_i - D_i \frac{N_i}{N} \frac{\partial}{\partial z} N, \quad (\text{C.7})$$

mit den Diffusionskonstanten \tilde{D}_i und D_i , welche mit der Wechselwirkung mit den restlichen Isotopen beziehungsweise der gleichen Spezies assoziiert sind. Dies reduziert sich unter der vereinfachenden Annahme identischer Diffusivitäten zu

$$J_i = -\frac{D}{2} \frac{\partial}{\partial z} N_i - \frac{D}{2} \frac{N_i}{N} \frac{\partial}{\partial z} N, \quad (\text{C.8})$$

wobei sich $\tilde{D}_i = D_i = D/2$ aus der Bedingung ergibt, dass $J = \sum_i J_i$ die Gleichung (C.6) erfüllen muss.

Zur Veranschaulichung ist der einfache Fall zweier Isotope gleicher Häufigkeit in einer geschlossenen Zelle in Abbildung C.1 für unterschiedliche Anfangsbedingungen dargestellt. Es zeigt den zeitlichen Verlauf der Dichteverteilung der beiden Isotope (rote beziehungsweise blaue Kurven), sowie deren Summe (grün). Die Anfangsverteilungen sind dabei jeweils als gestrichelte Kurven dargestellt. Im Beispiel a) wird von einer homogenen Gesamtdichte ausgegangen, wobei die beiden Isotope zu Beginn getrennt in der linken beziehungsweise rechten Hälfte der Zelle konzentriert sind. Die Durchmischung der beiden Spezies ändert die Gesamtdichte nicht. Es findet nur ein Konzentrationsausgleich untereinander statt. Die eingebetteten Graphen zeigen die Dichte an einem Ort in der Zelle als Funktion der Zeit. Beim in Abbildung C.1 b) illustrierten Fall hat ein Isotop eine homogene Anfangsverteilung (blau), während die Dichte des zweiten wieder einen stufenförmigen Verlauf beschreibt. In der zeitlichen Entwicklung zeigt sich eine Störung der homogenen Ausgangssituation des einen Isotops auf Grund der kollektiven Diffusion.

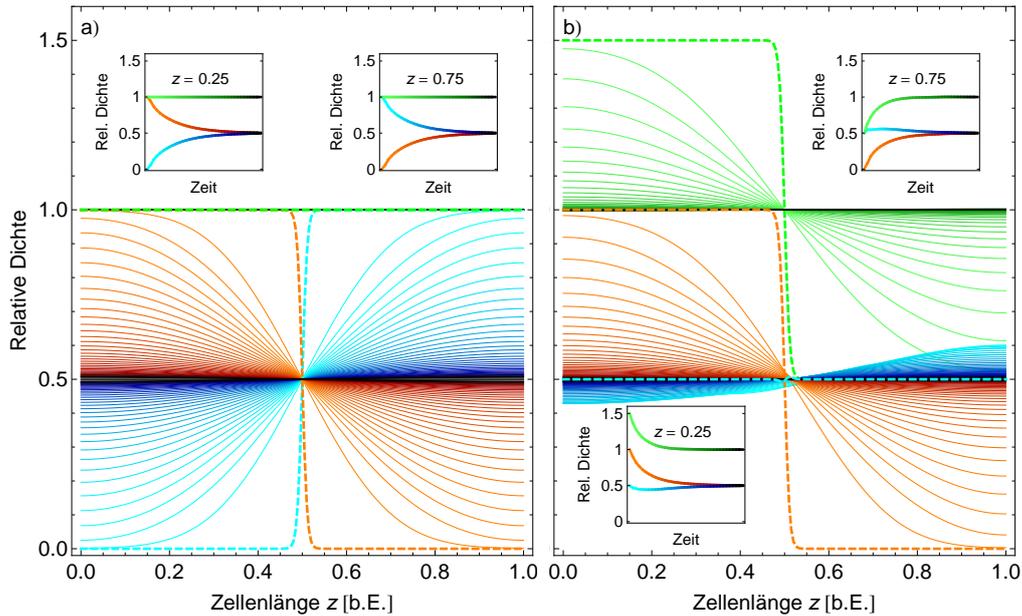


Abbildung C.1: Diffusive Mischung zweier Isotope. Zeitliche Entwicklung der Dichteverteilung der beiden Isotope (rote und blaue Kurven), sowie der Verteilung der Gesamtdichte (grün). Die Anfangsbedingungen a) homogene Gesamtdichte, b) kollektiver Dichtegradient sind als gestrichelte Kurven eingezeichnet. Die eingebetteten Graphen zeigen die zeitliche Entwicklung an ausgewählten Punkten in der Zelle.

C.3 Umrechnung von PMT Zählrate in VUV Leistung

Um von den in Kapitel 4.2 gemessenen Zählraten am Photomultiplier auf die erzeugte vakuumultraviolette Leistung zurückzurechnen, müssen mehrere Faktoren berücksichtigt werden: Diese umfassen die Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors, die Transmission der VUV Optiken sowie die reduzierte Belichtungszeit durch die Verwendung des Blendenrades für die Lock-in Detektion der Zwei-Photonen Fluoreszenz. Die unterschiedlichen Elemente sind in Tabelle C.1 aufgelistet. Zusammen mit der Photonenenergie von $10,22 \text{ eV} = 1,64 \times 10^{-18} \text{ J}$ bei $121,26 \text{ nm}$ erhält man einen Umrechnungsfaktor von

$$P_{\text{VUV}} = 4,3 \times 10^{-14} n_{\text{PMT}} \text{ Ws}, \quad (\text{C.9})$$

wobei n_{PMT} die Zählrate in s^{-1} bezeichnet.

Tabelle C.1: Faktoren zur Berechnung der VUV Leistung.

PMT Detektionseffizienz	53 %
Quanteneffizienz des PMT (@ 121,6 nm)	13,54 %
Transmission MgF ₂ Linse	62 %
Transmission MgF ₂ Prisma am Durchstoßpunkt	78 %
Transmission Lyman- α Filter (2 \times)	$(4,7\%)^2 = 0,22\%$
Blendenrad	50 %

MATHEMATICA QUELLCODE

Die Berechnung der linearen und nichtlinearen Suszeptibilität, sowie Faserpropagationskonstanten und die daraus berechenbaren Phasenanpassungsbedingungen und theoretisch erreichbaren VUV Leistungen lassen sich mit dem hier aufgeführten *Mathematica* Programm durchführen.

Bei den Eigenschaften des nichtlinearen Mediums werden wie in Kapitel 2.1.1 und 2.1.2 beschrieben, Druck- und Dopplerverbreiterung der betrachteten Niveaus bis $n = 13$ berücksichtigt. Wegen der Nähe der Fundamentalwellenlängen zu Übergängen in das 6^3P_1 und 7^1S_0 Niveau enthalten deren Frequenzen Isotopieverschiebung und Hyperfeinstrukturaufspaltung.

Bei der Propagation der Lichtfelder in der Hohlleiter sind Leitungsverluste, sowie Dispersion und Absorption in Kern- und Mantelmaterial implementiert (vergleiche Abschnitt 2.2.2).

Bei der Berechnung der nichtlinearen Mischeffizienz sind die Parameter Temperatur (T), Ein- (Δ) und Zwei-Photonen Verstimmung (δ), Faserlänge (L) und -radius (a) frei wählbar. Das Programm unterstützt Rechnungen zur Erzeugung verschiedener VUV Wellenlängen (definiert über $fVUV$ und ΔVUV) und Mischen mit höheren Fasermode. Im letzten Abschnitt ist die numerische Lösung der gekoppelten Amplitudengleichungen für inhomogene Dichteverteilungen oder QPM Szenarien gegeben.

Das Programm verwendet SI Einheiten und ist hier inklusive aller Materialdaten in der Form aufgeführt, dass es (abgesehen von etwaigen Zeilenumbrüchen) direkt in ein *Mathematica* Notebook kopiert und ausgeführt werden kann.

```
(* --- HEADER --- *)
```

```
(*Definition einiger Hilfsfunktionen zum komfortableren Arbeiten*)
Needs["NonlinearRegression`"]
T[x_] := Transpose[x]
Off [NIntegrate::"slwcon"]
```

D. MATHEMATICA QUELLCODE

```

Off[NIntegrate::"ncvb"]
Off[Reduce::"ratnz"]
Off[NIntegrate::"inumr"]
Off[N::"preclg"]
GHz=10^9;
n=1; (*Zähligkeit der azimuthalen Rotationssymmetrie Subscript[EH, nm]*)
\[CapitalDelta]VUV = 0; (*Verstimmung zur VUV Ein-Photon Resonanz*)
\[Delta]2\[Gamma]=0: (*Verstimmung zur Zwei-Photonen Resonanz*)

(*Erzeugt Auswahlfenster mit oberem Quecksilberniveau, Verstimmungen und
Hohlfasernmoden*)
Module[{},
\[CapitalDelta]VUV=0 GHz;
\[Delta]2\[Gamma]=0GHz;
a=25. 10^-6;
Subscript[m, UV]=1;
Subscript[m, blau]=1;
Subscript[m, grün]=1;
Subscript[m, Ly\[Alpha]]=1;
CreatePalette[

{
Slider[Dynamic[a],{10. 10^-6,100. 10^-6,5. 10^-6}],
TextCell[Row[{"a= ",Dynamic[a/10.^-6], "\[Mu]m \n"}]],
PopupMenu[Dynamic[fVUV],{8225928.5001249 c->"Ly\[Alpha]",8246405. c ->"
12^1P"}],Slider[Dynamic[\[CapitalDelta]VUV],{-200. GHz,200. GHz,5.
GHz}],
TextCell[Row[{"\[CapitalDelta]VUV= ",Dynamic[ \[CapitalDelta]VUV/(1
10^9)],"GHz \n"}]],
Slider[Dynamic[\[Delta]2\[Gamma]],{-10. GHz,10. GHz,.1 GHz}],
TextCell[Row[{"\[Delta]2\[Gamma]= ",Dynamic[ \[Delta]2\[Gamma]/(1 10^9)
],"GHz \n"}]],
Slider[Dynamic[Subscript[m, UV]],{1,5,1}],
TextCell[Row[{"m_UV= ",Dynamic[Subscript[m, UV]], "\n"}]],
Slider[Dynamic[Subscript[m, blau]],{1,5,1}],
TextCell[Row[{"m_blaue= ",Dynamic[Subscript[m, blau]], "\n"}]],
Slider[Dynamic[Subscript[m, grün]],{1,5,1}],
TextCell[Row[{"m_grün= ",Dynamic[Subscript[m, grün]], "\n"}]],
Slider[Dynamic[Subscript[m, Ly\[Alpha]],{1,5,1}],
TextCell[Row[{"m_Ly\[Alpha]= ",Dynamic[Subscript[m, Ly\[Alpha]]], "\n"
}]]],

WindowTitle->"Parameter",

WindowSize->{All,All}];

(*Erzeugt Auswahlfenster zum Einfügen häufig benötigter Funktionen*)
CreatePalette[{
Style["Hg Dichte:",Italic] ,PasteButton[Defer[NHg[T]]],

Style["\nBrechungsindizes:",Italic],PasteButton[Defer[nHg[T,f]]],
PasteButton[Defer[\[Alpha]Hg[T,f]]],PasteButton[Defer[\[Epsilon]Hg[T,
f]]],PasteButton[Defer[\[Epsilon]UVFS[f]]],
PasteButton[Defer[\[Chi]3\[CapitalDelta],\[Delta],T]],

Style["\nFrequenzen & Co:",Italic],PasteButton[Defer[Subscript[f, Farbe
][\[CapitalDelta]]],PasteButton[Defer[Subscript[\[Omega], Farbe][\[

```

```

CapitalDelta]]]], PasteButton[Defer[Subscript[\[Lambda], Farbe][\[
CapitalDelta]]]],

Style["\nFaser Definitionen:", Italic], PasteButton[Defer[Subscript[\[
Gamma], Farbe][T, \[CapitalDelta]]]], PasteButton[Defer[Subscript[\[
Alpha], Farbe][T, \[CapitalDelta]]]], PasteButton[Defer[Subscript[\[
Beta], Farbe][T, \[CapitalDelta]]]],

Style["\nLyman \[Alpha]:", Italic], PasteButton[Defer[P4[T, \[CapitalDelta
], L]]],

Style["\nAbsorption quer zur Faser:", Italic], PasteButton[Defer[Trans[T
, \[CapitalDelta]]]], PasteButton[Defer[FindN[frac, \[CapitalDelta]]]],
PasteButton[Defer[FindT[frac, \[CapitalDelta]]]]
}
, WindowTitle -> "Funktionen"];

(*Funktion zum schnellen Speichern und Laden von Mathematica-Ausdrücken
*)
SAVE[what_, name_] := Put[what, ToFileName[{NotebookDirectory[]} (*, ToString[
nbdata*]), ToString[name]]]
LOAD := Get[SystemDialogInput["FileOpen", ToFileName[{NotebookDirectory[]} , "
nbdata"]], WindowTitle -> "Bitte Datensatz auswählen ..."]

(*Normierung der Eingangsleistungen*)
Subscript[P, 1] := 1
Subscript[P, 2] := 1
Subscript[P, 3] := 1

(* --- Suszeptibilitäten \[Chi]^(1) und \[Chi]^(3) --- *)

(* - Bemerkungen und Konstanten: - *)

(*- Temperaturen in °C
- \[CapitalDelta]: Verstimmung zur 6^3 P Resonanz
- \[Delta]: Verstimmung zu 2\[Gamma] Resonanz*)
c=299792458; (*Lichtgeschwindigkeit in m/s*)
kb=1.3806504 10^-23; (*Boltzmann-Konstante [J/K]*)
e=1.602176487 10^-19; (*Elementarladung [C]*)
me=9.109 10^-31; (*Ruhemasse Elektron [kg]*)
Da= 1.66054 10^-27; (*Dalton [kg]*)
mHg=200.59 Da; (*Mittlere Masse von Quecksilber [kg]*)
\[CurlyEpsilon]0=8.854 10^-12; (*elektrische Permittivität des Vakuums [
F/m]*)
a0=5.2917721086 10^-11; (*Bohrscher Radius in m*)
Ry = 3.289841960 10^15; (* Rydbergenergie als Frequenz [s^-1] (
Rydbergfrequenz) (nicht Kreisfrequenz) --- ACHTUNG: Missverständliche
Bezeichnung: Eigentlich ist R die Rydbergfrequenz, Ry die
Rydbergenergie und R\[Infinity] die Rydbergkonstante*)
\[HBar]=1/(2\[Pi]) 6.62606896 10^-34; (*in [Js]*)

(* - Atomdichte Hg - *)

```

D. MATHEMATICA QUELLCODE

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

(* Interpolation der obigen Liste *)
pvonT = Interpolation[pliste] ;

(* Hg-Dichte in m^-3 in Abhängigkeit von der Temperatur in °C , 10^2
kommt von Umrechnung mbar -> Pa*)
NHg[T_]:=pvonT[T]*10^2/(kb*(T+273.15))

(* - Frequenzen und Übergänge im Quecksilber - *)
FARBE={UV,blau,grün,ly\[\Alpha]}; (*indiziert die einzelnen Farben*)

Frequenzen werden aus Energieniveaus des ^202 Hg in m^-1 berechnet.
Subscript[f, UV][\[CapitalDelta]_]:=c 3941212.2+\[CapitalDelta]
Subscript[f, blau][\[CapitalDelta]_]:=c(6392805.7-3941212.2)-\[
CapitalDelta]+\[Delta]2\[Gamma]
Subscript[f, Ly\[\Alpha]][\[CapitalDelta]_]:=fVUV+\[CapitalDelta]VUV
Subscript[f, grün][\[CapitalDelta]_]:=Subscript[f, Ly\[\Alpha]][\[
CapitalDelta]-(Subscript[f, UV][\[CapitalDelta]]+Subscript[f, blau
][\[CapitalDelta]))-\[Delta]2\[Gamma]
Subscript[\[Omega], i_][\[CapitalDelta]_]:=2\[Pi] Subscript[f, i][\[
CapitalDelta] (*Kreisfrequenz*)
Subscript[\[Lambda], i_][\[CapitalDelta]_]:= (c/Subscript[f, i][\[
CapitalDelta] (*Wellenlänge*)

(* - Homogene Verbreiterungen - *)

(*Breiten für Rechnung in Kreisfrequenz ausgedrückt*)
\[Gamma]63Pn=(125. 10^-9)^-1; (*natürliche Linienbreite aus [Benck Dakin
JOSA B 6 11 (1989)]*)
\[Gamma]71Sn=(32.1 10^-9)^-1; (*natürliche Linienbreite aus [Benck Dakin
JOSA B 6 11 (1989)] *)
(*Abschätzung der Temperaturabhängigkeit der 7^1 S Druckverbreiterung
aus der gemessenen Verbreiterung von Subscript[\[CapitalDelta], C
]=2\[Pi][\[Cross]0.1 GHz @ T=130°C in Diss. M. Scheid - dabei ist
natürliche Linienbreite mit eingerechnet*)
coll71S=konst/.FindRoot[2\[Pi] .1 GHz -\[Gamma]71Sn==konst NHg[130] Sqrt
[(16 kb (130+273.15))/(\[Pi] mHg)] ,{konst,10^-22}];
\[Gamma]71SDruck[T_]:=coll71S NHg[T] Sqrt[((16 kb (T+273.15))/(\[Pi] mHg)
)](*Druckverbreiterung 7^1 S*)
PB63P[T_]:=4 (\[Pi]/Sqrt[3]) 2.07 ((e^2 0.024^)/ (32 (\[Pi]^3) \[
CurlyEpsilon]0 me Subscript[f, UV][0] )) NHg[T] (*Druckverbreiterung
6^3 P*)
isolist={198,199,200,201,202,204}; (*Liste der Isotope*)

(*Tabelle mit den 6^3 P Daten, inkl. Hyperfeinstrukturaufspaltung*)
Hg63Plevels={{{"6^3P:^198Hg"

```

```

,39412.45896644897',0.024',0.0022',0.09968',1,\[Gamma]63Pn
,-1,3}}},{{{{"6^3P:^199Hg, F=1/2"
,39411.94577808851',0.024',0.0022',0.16873',1/3,\[Gamma]63Pn
,-1,3}}},{{{{"6^3P:^199Hg F=3/2"
,39412.68348844145',0.024',0.0022',0.16873',2/3,\[Gamma]63Pn
,-1,3}}}}},{{{{"6^3P:^200Hg"
,39412.29868890123',0.024',0.0022',0.23096',1,\[Gamma]63Pn
,-1,3}}},{{{{"6^3P:^201Hg, F=1/2"
,39412.68385536195',0.024',0.0022',0.13181',1/6,\[Gamma]63Pn
,-1,3}}},{{{{"6^3P:^201Hg, F=3/2"
,39412.431947757264',0.024',0.0022',0.13181',1/3,\[Gamma]63Pn
,-1,3}}},{{{{"6^3P:^201Hg, F=5/2"
,39411.96542501372',0.024',0.0022',0.13181',1/2,\[Gamma]63Pn
,-1,3}}}}},{{{{"6^3P:^202Hg, ",39412.122',0.024',0.0022',0.29863',1,\[
Gamma]63Pn,-1,3}}},{{{{"6^3P:^204Hg, "
,39411.948313175635',0.024',0.0022',0.06865',1,\[Gamma]63Pn,-1,3}}}}};

```

(*Tabelle mit den 7^1 S Daten*)

```

Hg71Slevels:={{"7^1S:^198Hg",63928.3343',0,0,0.09968',1,\[Gamma]71Sn
,1,1},{ "7^1S:^199Hg",63928.3169',0,0,0.16873',1,\[Gamma]71Sn,1,1},{ "
7^1S:^200Hg",63928.2025',0,0,0.23096',1,\[Gamma]71Sn,1,1},{ "7^1S:^201
Hg",63928.1586',0,0,0.13181',1,\[Gamma]71Sn,1,1},{ "7^1S:^202Hg"
,63928.057',0,0,0.29863',1,\[Gamma]71Sn,1,1},{ "7^1S:^204Hg"
,63927.9137',0,0,0.06865',1,\[Gamma]71Sn,1,1}};

```

(*Tabelle mit den von S-Zuständen erreichbaren Niveaus.

```

Zerfallskonstante Subscript[A, 21] aus f-value Subscript[f, 12]=
Subscript[g, 2]/Subscript[g, 1] (2\[Pi] Subscript[\[Epsilon], 0]
Subscript[m, e] c^3)/(Subscript[\[Omega], 21]^2 e^2) Subscript[A, 12]
("Einstein coefficients, crosssections, ... ") abgeschätzt.*)

```

```

Hglevels:={{"6^1P"
,54068.781',1.15',0.15',1,1,2.242645610815232'*^9,-1,3},{ "7^3P"
,69661.89',1/100000,0.11',1,1,32371.30142987044',1,1},{ "7^1P"
,71295.15',0.02',1.24',1,1,6.781404081226404'*^7,1,1},{ "8^3P"
,76467.067',0.0014',0.00012',1,1,5.460677824250252'*^6,1,1},{ "8^1P"
,76863.264',0.01',0.029',1,1,3.941007843182835'*^7,-1,1},{ "(^2
Subscript[D, 5/2])6p'^1P"
,78813.',0.15',0.018',1,1,6.21522178712602'*^8,1,1},{ "9^3P"
,79412.745',0.0055',1/20000,1,1,2.3137304351828746'*^7,-1,1},{ "9^1P"
,79964.1',0.07',0.029',1,1,2.985779973054198'*^8,1,1},{ "10^3P"
,80916.686',0.0018',2.6'*^-7,1,1,7.861733789424396'*^6,1,1},{ "10^1P"
,81153.614',0.0155',0.0097',1,1,6.809529122332989'*^7,1,1},{ "11^3P"
,81811.876',0.0011',1.6'*^-6,1,1,4.911283922361052'*^6,1,1},{ "11^1P"
,81942.444',0.005',0.005',1,1,2.2395330905888006'*^7,1,1},{ "12^3P"
,82379.',0.0008',7.499999999999999'*^-6,1,1,3.6215348766957843'*^6,
1,1},{ "12^1P"
,82464.05',0.0023',0.0025',1,1,1.0433422871464968'*^7,1,1},{ "13^3P"
,82765.9',0.0005',0.000017',1,1,2.284770284432214'*^6,1,1},{ "13^1P"
,82823.94',0.0011',0.0015',1,1,5.033546806403864'*^6,1,1},{ "(^2
Subscript[D, 3/2])6p'^1P"
,88760.',0.53',0.061',1,1,2.7853521480793166'*^9,1,1}}

```

(*Funktion zum darstellen einer Niveautabelle mit Erklärung der Spalten *)

```

ShowTable[tab_]:=TableForm[tab/.t->100 ,TableHeadings->{None,{"Niveau",
Energie/cm^-1","f: 6^1S -> n^(2S+1)P","f: 7^1S -> n^(2S+1)P",
Häufigkeit","Verzw.verh.", "\[Gamma] nat/Hz","Sign(Subscript[p, nm]
Subscript[p, mg])","Subscript[g, u]","Subscript[\[CapitalGamma],

```

D. MATHEMATICA QUELLCODE

```

Druck] von 6^1S (T=100°C)"]}]

(*Zusammenfassen der Tabellen, indiziert nach den unterschiedlichen
  Isotopen*)
MergeTables[org_, tabs_]:=Partition[Flatten[Prepend[org, {tabs}]], 9]
For[i=198, i<204, i++,
  If[i== 203,
    Subscript[Hg\[Chi]3levels, i+1]=MergeTables[Hglevels, Hg71Slevels[[i
      -197]], Hg63Plevels[[i-197]]];,
    Subscript[Hg\[Chi]3levels, i]=MergeTables[Hglevels, Hg71Slevels[[i-197]],
      Hg63Plevels[[i-197]]];]
]

For[i=198, i<204, i++,
  If[i== 203,
    Subscript[Hg\[Chi]3levels, i+1]=Table[Subscript[Hg\[Chi]3levels, i+1][[j
      ]~Join~{Subscript[Hg\[Chi]3levels, i+1][[j,7]]+2 \[Pi] 4 \[Pi]/Sqrt
      [3] 2.07 (e^2 Subscript[Hg\[Chi]3levels, i+1][[j,3]])/(32 \[Pi]^3 \[
      CurlyEpsilon]0 me (c 100Subscript[Hg\[Chi]3levels, i+1][[j,2]])) NHg[t
      ]}, {j, 1, Length[Subscript[Hg\[Chi]3levels, i+1]}];

    ,
    Subscript[Hg\[Chi]3levels, i]=Table[Subscript[Hg\[Chi]3levels, i][[j]]~
      Join~{Subscript[Hg\[Chi]3levels, i][[j,7]]+2 \[Pi] 4 \[Pi]/Sqrt[3]
      2.07 (e^2 Subscript[Hg\[Chi]3levels, i][[j,3]])/(32 \[Pi]^3 \[
      CurlyEpsilon]0 me (c 100Subscript[Hg\[Chi]3levels, i][[j,2]])) NHg[t
      ]}, {j, 1, Length[Subscript[Hg\[Chi]3levels, i]}];
  ]
]

(* - Berechnung von Subscript[\[Chi], a]^(1) und komplexem
  Brechungsindex - *)
vw[T_]:=Sqrt[(2 kb)/mHg (T+ 273.15)](*1D Maxwell Boltzmann:
  wahrscheinlichste Geschwindigkeit in m/s*)

(*Summe über alle erreichbaren Dipolübergänge:*)
\[Chi]1levels=MergeTables[Hglevels, Hg63Plevels];
\[Chi]1levels=Module[{lst},
  lst=Table[\[Chi]1levels[[i]]~Join~{\[Chi]1levels[[i,7]]+2 \[Pi] 4 \[Pi]/
    Sqrt[3] 2.07 (e^2 \[Chi]1levels[[i,3]])/(32 \[Pi]^3 \[CurlyEpsilon]0
    me (c 100\[Chi]1levels[[i,2]])} NHg[t]}, {i, 1, Length[\[Chi]1levels]}];
  lst];
levelsum[f_, v_, T_]:=Evaluate[\(\(\
  \*UnderoverscriptBox[\(\[Sum]), \((n = 1\)), \((Length[\[Chi]1levels)\)
  ]\(\(\(\(\[Chi]1levels[\(\[Chi]1levels[[n, 3])\])\]) \[Chi]1levels[\(\[Chi]1levels[[n, 5])
  \])\]) \[Chi]1levels[\(\[Chi]1levels[[n, 6])\])\])\)\)/\(\(\
  \*SuperscriptBox[\(\((2 \[Pi] c 100 \[Chi]1levels[\(\[Chi]1levels[[n, 2])\])\])
  \), \((2\)) -
  \*SuperscriptBox[\(\((2 \[Pi] f \((1 +
  \*FractionBox[\(v), \((c))\])\)) + I\
  \*FractionBox[\(\(\[Chi]1levels[\(\[Chi]1levels[[n, 10])\])\]) /. t -> T\), \((2\))\)
  \), \((2\))\)\)\)\)\)
\[Chi]1a[T_, f_]:=e^2/(\[CurlyEpsilon]0 me) 1/(Sqrt[\[Pi]vw[T])
  NIntegrate[(E^-(v/vw[T])^2 levelsum[f, v, T]), {v, -5 vw[T], 0, 5 vw[T]}]

(*Berechnung von Brechungsindex und Dielektrizitätskonstante aus der

```

```

linearen Suszeptibilität*)
nHg[T_,f_]:=Sqrt[1+NHg[T]\[Chi]1a[T,f]]
\[Epsilon]Hg[T_,f_]:=nHg[T,f]^2

(* - Berechnung von \[Chi]^(3)- *)

(*partielle Suszeptibilitäten*)

p61s[iso_,m_]:=e a0 Sqrt[(Ry Subscript[Hg\[Chi]3levels, iso][[m,6]]
  Subscript[Hg\[Chi]3levels, iso][[m,3]]/(c 100 Subscript[Hg\[Chi]3
  levels, iso][[m,2]])]
p71s[iso_,m_]:=e a0 Sqrt[(Ry Subscript[Hg\[Chi]3levels, iso][[m,6]]
  Subscript[Hg\[Chi]3levels, iso][[m,4]] Subscript[Hg\[Chi]3levels, iso
  ][[m,9]])/(c 100 Abs[Subscript[Hg\[Chi]3levels, iso][[1,2]]-
  Subscript[Hg\[Chi]3levels, iso][[m,2]])] Subscript[Hg\[Chi]3levels,
  iso][[m,8]]
Subscript[\[Chi]12, iso_][\[CapitalDelta]_,\[Delta]_,v_,T_]:=!\[
  \*UnderoverscriptBox[\(\[Sum]\), \(\m = 2\), \(\Length[
  \*SubscriptBox[\(Hg\[Chi]3levels\), \(\iso\)]\)]\(\(\((p61s[iso, m] p71s[
  iso, m])\)/\(\(\((2 \[Pi]\ c\ 100
  \(\*SubscriptBox[\(Hg\[Chi]3levels\), \(\iso\)]\)\)\(\(\)\(\m, 2\)\(\)\)\)\)
  \(\(1 +
  \*FractionBox[\(v\), \(\c\)]\)\) - I\ \(\
  \*FractionBox[\(1\), \(\2\)] \(\(\
  \(\*SubscriptBox[\(Hg\[Chi]3levels\), \(\iso\)]\)\)\(\(\)\(\m, 10\)\(\)\) /.
  t -> T)\)\) - 2 \[Pi]\
  \(\*SubscriptBox[\(f\), \(\UV\)]\)\[\[CapitalDelta]]\)\) + \(\((p61s[iso, m]
  p71s[iso, m])\)/\(\(\((2 \[Pi]\ c\ 100
  \(\*SubscriptBox[\(Hg\[Chi]3levels\), \(\iso\)]\)\)\(\(\)\(\m, 2\)\(\)\)\)\)
  \(\(1 +
  \*FractionBox[\(v\), \(\c\)]\)\) - I\ \(\
  \*FractionBox[\(1\), \(\2\)] \(\(\
  \(\*SubscriptBox[\(Hg\[Chi]3levels\), \(\iso\)]\)\)\(\(\)\(\m, 10\)\(\)\) /.
  t -> T)\)\) - 2 \[Pi]\
  \(\*SubscriptBox[\(f\), \(\blau\)]\)\[\[CapitalDelta] - \[Delta]]\)\)\)\)\)
Subscript[\[Chi]34, iso_][\[CapitalDelta]_,\[Delta]_,v_,T_]:=!\[
  \*UnderoverscriptBox[\(\[Sum]\), \(\[Nu] = 2\), \(\Length[
  \*SubscriptBox[\(Hg\[Chi]3levels\), \(\iso\)]\)]\)\(\(\((p61s[iso, \[Nu]]
  p71s[iso, \[Nu]])\)/\(\(\((2 \[Pi]\ c\ 100
  \(\*SubscriptBox[\(Hg\[Chi]3levels\), \(\iso\)]\)\)\(\(\)\(\[Nu], 2\)\(\)\)
  )\)\) \(\(1 +
  \*FractionBox[\(v\), \(\c\)]\)\) - I\ \(\
  \*FractionBox[\(1\), \(\2\)] \(\(\
  \(\*SubscriptBox[\(Hg\[Chi]3levels\), \(\iso\)]\)\)\(\(\)\(\[Nu], 10\)\(\)\)
  ] /. t -> T)\)\) - 2 \[Pi]\
  \(\*SubscriptBox[\(f\), \(\Ly\[\Alpha]\)]\)\[\[CapitalDelta]]\)\) + \(\((p61s[
  iso, \[Nu]] p71s[iso, \[Nu]])\)/\(\(\((2 \[Pi]\ c\ 100
  \(\*SubscriptBox[\(Hg\[Chi]3levels\), \(\iso\)]\)\)\(\(\)\(\[Nu], 2\)\(\)\)
  )\)\) \(\(1 +
  \*FractionBox[\(v\), \(\c\)]\)\) - I\ \(\
  \*FractionBox[\(1\), \(\2\)] \(\(\
  \(\*SubscriptBox[\(Hg\[Chi]3levels\), \(\iso\)]\)\)\(\(\)\(\[Nu], 10\)\(\)\)
  ] /. t -> T)\)\) + 2 \[Pi]\ \(\(\
  \(\*SubscriptBox[\(f\), \(\grün\)]\)\[\[CapitalDelta] - \[Delta]]\)\)\)\)\)
  \)

```

D. MATHEMATICA QUELLCODE

```
(*Berechnung von | S(Subscript[\[Omega], 1] + Subscript[\[Omega], 2])
  (l^2) *)

Subscript[Sdv, iso_][\[CapitalDelta]_,\[Delta]_,v_,T_]:=1/(Sqrt[\[Pi]vw
  [T]) E^-(v/vw[T])^2/((2 \[Pi] c 100 Subscript[Hg\[Chi]3levels, iso
  ][[1,2]]) (1+ v/c)-I (\[Gamma]71Sn +\[Gamma]71SDruck[T])/2-2\[Pi](
  Subscript[f, UV][\[CapitalDelta]]+Subscript[f, blau][\[CapitalDelta]
  ]-\[Delta]))

(*\[Chi]^(3)*)

Subscript[\[Chi]3a, iso_][\[CapitalDelta]_,\[Delta]_,T_]:=NIntegrate
  [1/(6 \[CurlyEpsilon]0 \[HBar]^3) Subscript[\[Chi]12, iso][\[
  CapitalDelta],\[Delta],v,T] Subscript[\[Chi]34, iso][\[CapitalDelta]
  ],\[Delta],v,T] Subscript[Sdv, iso][\[CapitalDelta],\[Delta],v,T],{v
  ,-1000,1000}]
\[Chi]3a[\[CapitalDelta]_,\[Delta]_,T_]:=!\[
  \*UnderoverscriptBox[\(\[Sum]\), \{n = 1\}, \{Length[isolist]\}]\[
  Hg71Slevels[\(\[Chi]3a\), \{isolist[\(\[Chi]3a\), \{isolist[\(\[Chi]3a\), \{
  CapitalDelta], \[Delta], T\}]\}]\}]\[
  CapitalDelta], \[Delta], T]\)\)
\[Chi]3[\[CapitalDelta]_,\[Delta]_,T_]:=NHg[T]\[Chi]3a[\[CapitalDelta]
  ],\[Delta],T]

(*Berechnung des Zwei-Photonen Absorptionswirkungsquerschnittes aus der
  nichtlinearen Suszeptibilität*)
Subscript[\[Sigma]2\[Gamma], iso_][\[CapitalDelta]_,\[Delta]_,T_]:=1/\[
  HBar]^4 1/(4 \[CurlyEpsilon]0^2 c^2) Re[NIntegrate[Abs[ Subscript[\[
  Chi]12, iso][\[CapitalDelta],\[Delta],v,T] ]^2 Im[ Subscript[Sdv,
  iso][\[CapitalDelta],\[Delta],v,T]],{v,-1000,1000}]]
\[Sigma]2\[Gamma][\[CapitalDelta]_,\[Delta]_,T_]:=!\[
  \*UnderoverscriptBox[\(\[Sum]\), \{n = 1\}, \{Length[isolist]\}]\[
  Hg71Slevels[\(\[Chi]3a\), \{isolist[\(\[Chi]3a\), \{isolist[\(\[Chi]3a\), \{
  CapitalDelta], \[Delta], T\}]\}]\}]\[
  CapitalDelta], \[Delta], T]\)\)
Subscript[\[Alpha]2\[Gamma], iso_][\[CapitalDelta]_,\[Delta]_,T_]:=NHg[T]
  Subscript[\[Sigma]2\[Gamma], iso][\[CapitalDelta],\[Delta],T]
\[Alpha]2\[Gamma][\[CapitalDelta]_,\[Delta]_,T_]:=NHg[T]\[Sigma]2\[Gamma]
  ][\[CapitalDelta],\[Delta],T]

(* --- Faser --- *)

(* - komplexer Brechungsindex von UVFS - *)

\[Lambda]nk
  ={{1.204*^-7,2.048',0.925'},{1.21*^-7,2.152',0.81'},{1.215*^-7,
  2.24',0.715'},{1.228*^-7,2.332',0.46'},{1.24*^-7,2.33',0.323'},
  {1.252*^-7,2.292',0.236'},{1.305*^-7,2.092',0.0561'},{1.362*^-7,
  1.935',0.0228'},{1.425*^-7,1.825',0.0109'},{1.512*^-7,1.73',
  0.00463'},{1.631*^-7,1.653',0},{1.837*^-7,1.582',0},{1.984*^-7,
  1.554',0},{2.13856*^-7,1.53429',0},{2.26747*^-7,1.52276',0},
  {2.37833*^-7,1.51474',0},{2.39938*^-7,1.51338',0},{2.48272*^-7,
  1.50841',0},{2.65204*^-7,1.50004',0},{2.69885*^-7,1.49805',0},
  {2.75278*^-7,1.49592',0},{3.61051*^-7,1.47512',0},{3.65015*^-7,
```

```

1.47453',0},{4.04656'*^-7,1.46961',0},{4.35835'*^-7,1.46669',0},
{4.67816'*^-7,1.46429',0},{4.86133'*^-7,1.46313',0},{5.08582'*^-7,
1.46187',0},{5.46074'*^-7,1.46008',0},{5.76959'*^-7,1.45885',0},
{5.79065'*^-7,1.45877',0},{5.87561'*^-7,1.45847',0}};
(*Interpolation hat nur in der Nähe der Fundamentalwellenlängen und bei
  Lyman-\[Alpha] Gültigkeit.*)
\[Epsilon]UVFS[f_]:=Module[{n,k},
n=Interpolation[Table[{\[Lambda]nk[[i,1]],\[Lambda]nk[[i,2]]},{i,1,
  Length[\[Lambda]nk]}]];
k=Interpolation[Table[{\[Lambda]nk[[i,1]],\[Lambda]nk[[i,3]]},{i,1,
  Length[\[Lambda]nk]}]];
(n[c/f]+I k[c/f])^2
]

(* - Definitionen für Fasermoden - *)
Subscript[u, n_, m_]:=N[BesselJZero[n-1,m]]
\[Nu][T_, f_]:=Sqrt[\[Epsilon]UVFS[f]/\[Epsilon]Hg[T,f]]
Subscript[\[Lambda], Farbe_][\[CapitalDelta]_]:=c/Subscript[f, Farbe][\[
  CapitalDelta]]
Subscript[\[Nu], Farbe_][T_,\[CapitalDelta]_]:=1/2 ((\[Nu][T,Subscript[f
  , Farbe][\[CapitalDelta]]])^2+1)/Sqrt[(\[Nu][T,Subscript[f, Farbe][\[
  CapitalDelta]]])^2-1]
Subscript[\[Gamma], Farbe_][T_,\[CapitalDelta]_]:=
(2\[Pi] nHg[T, Subscript[f, Farbe][\[CapitalDelta]])/Subscript[\[Lambda],
  Farbe][\[CapitalDelta]] (1-1/2 ((Subscript[u, n, Subscript[m, Farbe]]
  Subscript[\[Lambda], Farbe][\[CapitalDelta]])/(2 \[Pi] a))^2 (1-I (Subscript
  [\[Nu], Farbe][T,\[CapitalDelta]] Subscript[\[Lambda], Farbe][\[
  CapitalDelta]])/(\[Pi] a)))

(*Propagationskonstante *)
Subscript[\[Beta], Farbe_][T_,\[CapitalDelta]_]:=Re[Subscript[\[Gamma],
  Farbe][T,\[CapitalDelta]]]
Subscript[\[Alpha], Farbe_][T_,\[CapitalDelta]_]:=2 Im[Subscript[\[Gamma]
  ], Farbe][T,\[CapitalDelta]]

(* - Phasenanpassung - *)
\[CapitalDelta][\[Beta][T_,\[CapitalDelta]_]:=!\!(
\*UnderoverscriptBox[\(\[Sum]\), \{i = 1\}, \{3\}]\(
\(\*SubscriptBox[\(\[Beta]\), \{FARBE[\(\[CapitalDelta]\)\(i)\]\(]\)\)}[T, \[
  CapitalDelta]]\)\)-Subscript[\[Beta], Ly\[Alpha]][T,\[CapitalDelta]]
\[CapitalDelta][\[Gamma][T_,\[CapitalDelta]_]:=!\!(
\*UnderoverscriptBox[\(\[Sum]\), \{i = 1\}, \{3\}]\(
\(\*SubscriptBox[\(\[Gamma]\), \{FARBE[\(\[CapitalDelta]\)\(i)\]\(]\)\)}[T, \[
  CapitalDelta]]\)\)-Subscript[\[Gamma], Ly\[Alpha]][T,\[CapitalDelta]]
(* --- Lyman \[Alpha] Produktion in Faser --- *)

(*\[CapitalDelta] - Verstimmung zum 6^3 P
\[Delta] - Verstimmung zum 7^1 S
T - Temperatur
L - Faserlänge *)

(* - Definitionen - *)
Subscript[J, 1]:=BesselJ[0,(BesselJZero[n-1,Subscript[m, UV]]\[Rho])/a
]
Subscript[J, 2]:=BesselJ[0,(BesselJZero[n-1,Subscript[m, blau]]\[Rho])
/a]

```

```

Temperaturverteilung - *)

(*Bestimmung der optimalen Phasen Anpassungstemperatur*)
Topt=FindRoot[\[CapitalDelta]\[Beta][T,-50 GHz ]==0,{T,100}][[1,2]];//
Quiet

(*Beispiele für inhomogene Dichteverteilungen in der Nähe der optimalen
Temperatur*)

(*Tinhom[z_]:= -(0.05/2).25Topt+25 .05 Topt (z-.1)^2+1Topt*)
(*Tinhom[z_]:= .5 .025 Topt-.025 Topt z+1Topt*)
Tinhom[z_]:= -.5 .025 Topt+.5 .025 Topt z+1Topt
(*Tinhom[z_]:=Topt*)
(*arbdatt=Table[{i,RandomVariate[NormalDistribution[Topt,1]]},{i
,0,1,.02}];
Tarb=Interpolation[Table[BSplineFunction[arbdatt][i],{i,0,1,.01}]];
Tinhom[z_]:=Tarb[z]*)

(*Modul zur Berechnung der Effizienz bei inhomogener Dichteverteilung
mit direkter Speicherung der numerischen Daten in der Datei "
filename".*)
Pnorm[n_,T_,\[CapitalDelta]_]:=\[Sqrt](Subscript[P,n](1/2 Re[nHg[T,
Subscript[f,FARBE[[n]]][\[CapitalDelta]]]c \[CurlyEpsilon]0
NIntegrate[\[Rho] Subscript[J,n] Subscript[J,n],{\[Rho],0,a}]
Integrate[1,{\[Theta],0,2 \[Pi]})^-1)
P4inhom[\[CapitalDelta]_]:=Module[{HEADER={},filename,NHginhom,\[Chi]3
inhom,\[Alpha]1,\[Alpha]2,\[Alpha]3,\[Alpha]4,\[Beta]1,\[Beta]2,\[
Beta]3,\[Beta]4,d\[Beta]1,d\[Beta]2,d\[Beta]3,d\[Beta]4,\[
CapitalDelta]\[Beta]inhom,nHg1,nHg2,nHg3,nHg4},
HEADER={"a=" "<>ToString[a/10^-6]<>" "\[Mu]m", "\[CapitalDelta]UV=" "<>
ToString[\[CapitalDelta]/GHz]<>" GHz", "\[Lambda]VUV=" "<>ToString[(c /
fVUV)/10^-9]<>" nm", "\[CapitalDelta]VUV=" "<>ToString[\[CapitalDelta]
VUV/GHz]<>" GHz", "Subscript[m, UV]=" "<>ToString[Subscript[m, UV]], "
Subscript[m, blau]=" "<>ToString[Subscript[m, blau]], "Subscript[m,
grün]=" "<>ToString[Subscript[m, grün]], "Subscript[m, Ly\[Alpha]]=" "<>
ToString[Subscript[m, Ly\[Alpha]]]};
filename=DateString[{"InhomogeneDichte_", "Year", "_", "Month", "_", "Day", "
--", "Hour", "-", "Minute", ".dat"}];
F=N[Evaluate[(NIntegrate[\[Rho] Subscript[J,1] Subscript[J,2]
Subscript[J,3] Subscript[J,4],{\[Rho],0,a}] Integrate[1,{\[Theta]
,0,2 \[Pi]})]/((NIntegrate[\[Rho] Subscript[J,4] Subscript[J,
4],{\[Rho],0,a}] Integrate[1,{\[Theta],0,2 \[Pi]})))]];

NHginhom=Evaluate[pvonT[Tinhom[z]]*10^2/(kb*(Tinhom[z]+273.15))];
\[Chi]3inhom=Evaluate[NHginhom \[Chi]3a[\[CapitalDelta],0,Tinhom[z]]];

\[Alpha]1=Evaluate[Subscript[\[Alpha], FARBE[[1]]][Tinhom[z],\[
CapitalDelta]]];
\[Alpha]2=Evaluate[Subscript[\[Alpha], FARBE[[2]]][Tinhom[z],\[
CapitalDelta]]];
\[Alpha]3=Evaluate[Subscript[\[Alpha], FARBE[[3]]][Tinhom[z],\[
CapitalDelta]]];
\[Alpha]4=Evaluate[Subscript[\[Alpha], FARBE[[4]]][Tinhom[z],\[
CapitalDelta]]];

\[Beta]1=Interpolation[Table[{z,Subscript[\[Beta], FARBE[[1]]][Tinhom[z]
],\[CapitalDelta]},{z,0,0.2,0.001}]];

```

D. MATHEMATICA QUELLCODE

```

\[Beta]2=Interpolation[Table[{z,Subscript[\[Beta], FARBE[[2]]][Tinhom[z
],\[CapitalDelta]}],{z,0,0.2,0.001}]];
\[Beta]3=Interpolation[Table[{z,Subscript[\[Beta], FARBE[[3]]][Tinhom[z
],\[CapitalDelta]}],{z,0,0.2,0.001}]];
\[Beta]4=Interpolation[Table[{z,Subscript[\[Beta], FARBE[[4]]][Tinhom[z
],\[CapitalDelta]}],{z,0,0.2,0.001}]];

\[CapitalDelta]\[Beta] inhom[x_]:=\[Beta]1[x]+\[Beta]2[x]+\[Beta]3[x]-\[
Beta]4[x];

nHg1=Evaluate[Re[nHg[Tinhom[0],Subscript[f, FARBE[[1]]][\[CapitalDelta
]]]];
nHg2=Evaluate[Re[nHg[Tinhom[0],Subscript[f, FARBE[[2]]][\[CapitalDelta
]]]];
nHg3=Evaluate[Re[nHg[Tinhom[0],Subscript[f, FARBE[[3]]][\[CapitalDelta
]]]];
nHg4=Evaluate[Re[nHg[Tinhom[0],Subscript[f, FARBE[[4]]][\[CapitalDelta
]]]];

s=NDSolve[
{A4'[z]-(2\[Beta]4'[z](z\[Beta]4[z]-I)-I\[Beta]4[z]\[Alpha]4)/(2I
(\[Beta]4[z]+z\[Beta]4'[z]))A4[z]==6 I\[Chi]3 inhom (Subscript[\[
Omega], FARBE[[4]]][\[CapitalDelta]^2)/(8c^2 (\[Beta]4[z]+z\[Beta
]4'[z])) A1[z] A2[z] A3[z] F E^(I\[CapitalDelta]\[Beta] inhom[z] z),
A1'[z]-(2\[Beta]1'[z](z\[Beta]1[z]-I)-I\[Beta]1[z]\[Alpha]1)/(2I (\[
Beta]1[z]+z\[Beta]1'[z]))A1[z]==0,
A2'[z]-(2\[Beta]2'[z](z\[Beta]2[z]-I)-I\[Beta]2[z]\[Alpha]2)/(2I (\[
Beta]2[z]+z\[Beta]2'[z]))A2[z]==0,
A3'[z]-(2\[Beta]3'[z](z\[Beta]3[z]-I)-I\[Beta]3[z]\[Alpha]3)/(2I (\[
Beta]3[z]+z\[Beta]3'[z]))A3[z]==0,

A4[0]==0,
A1[0]==Pnorm[1,Tinhom[0],\[CapitalDelta]],
A2[0]==Pnorm[2,Tinhom[0],\[CapitalDelta]],
A3[0]==Pnorm[3,Tinhom[0],\[CapitalDelta]],
{A1[z],A2[z],A3[z],A4[z]},{z,0,.2}
];

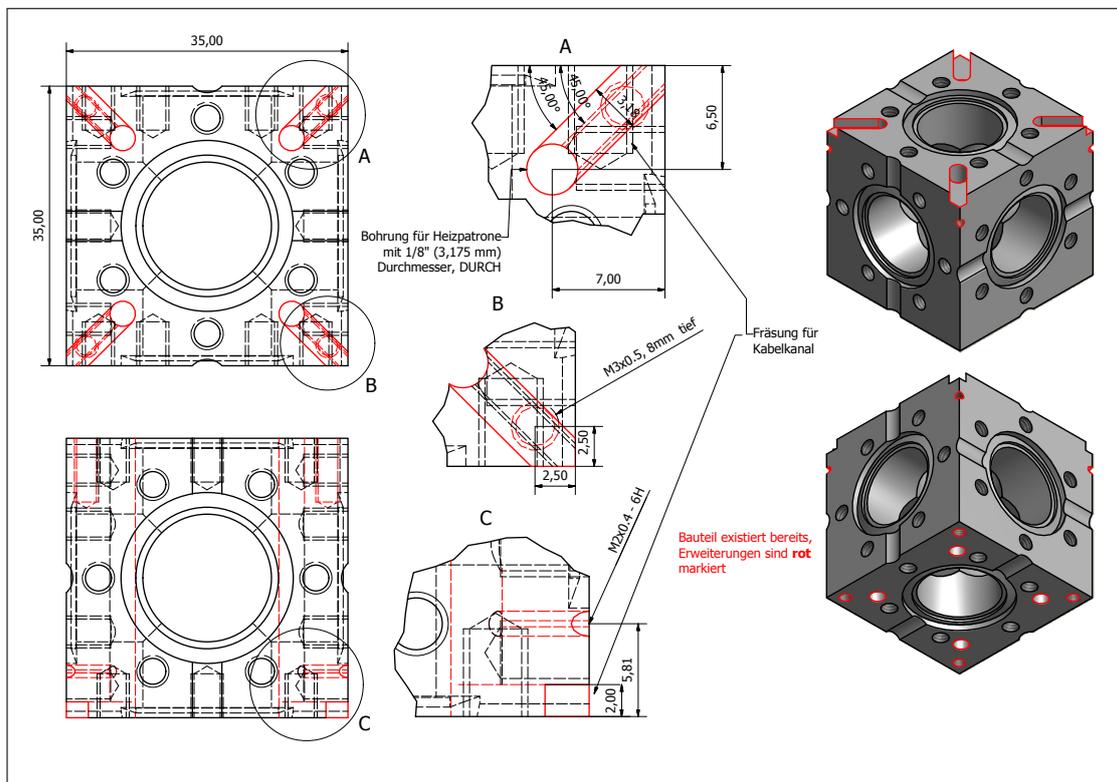
Pinhom1[x_]:=Evaluate[1 (nHg1 c \[CurlyEpsilon]0)/2 NIntegrate[\[Rho]
Subscript[J, 1] Subscript[J, 1],{\[Rho],0,a}] Integrate[1,{\[Theta
],0,2 \[Pi]}] Abs[A1[z]]^2/.s[[1]]/.z->x;
Pinhom2[x_]:=Evaluate[1 (nHg2 c \[CurlyEpsilon]0)/2 NIntegrate[\[Rho]
Subscript[J, 2] Subscript[J, 2],{\[Rho],0,a}] Integrate[1,{\[Theta
],0,2 \[Pi]}] Abs[A2[z]]^2/.s[[1]]/.z->x;
Pinhom3[x_]:=Evaluate[1 (nHg3 c \[CurlyEpsilon]0)/2 NIntegrate[\[Rho]
Subscript[J, 3] Subscript[J, 3],{\[Rho],0,a}] Integrate[1,{\[Theta
],0,2 \[Pi]}] Abs[A3[z]]^2/.s[[1]]/.z->x;
Pinhom4[x_]:=Evaluate[1 (nHg4 c \[CurlyEpsilon]0)/2 NIntegrate[\[Rho]
Subscript[J, 4] Subscript[J, 4],{\[Rho],0,a}] Integrate[1,{\[Theta
],0,2 \[Pi]}] Abs[A4[z]]^2/.s[[1]]/.z->x;
SAVE[{HEADER,Tinhom[z],Pinhom1[z],Pinhom2[z],Pinhom3[z],Pinhom4[z]},
filename];]

```

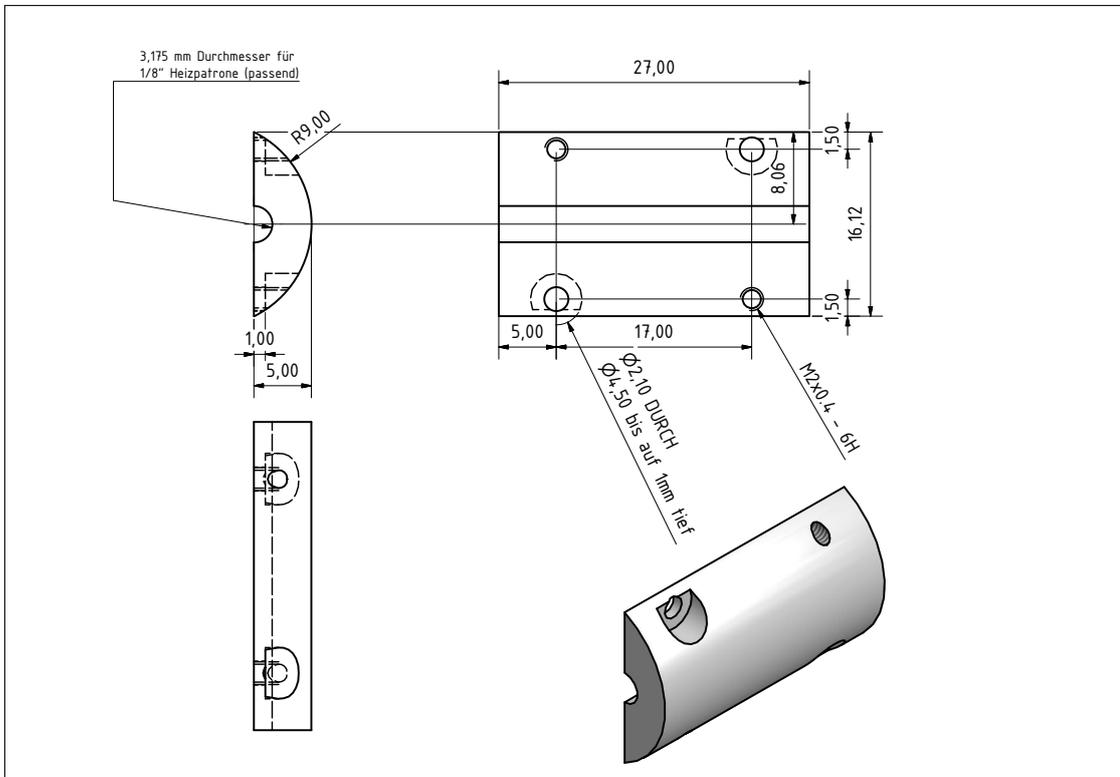
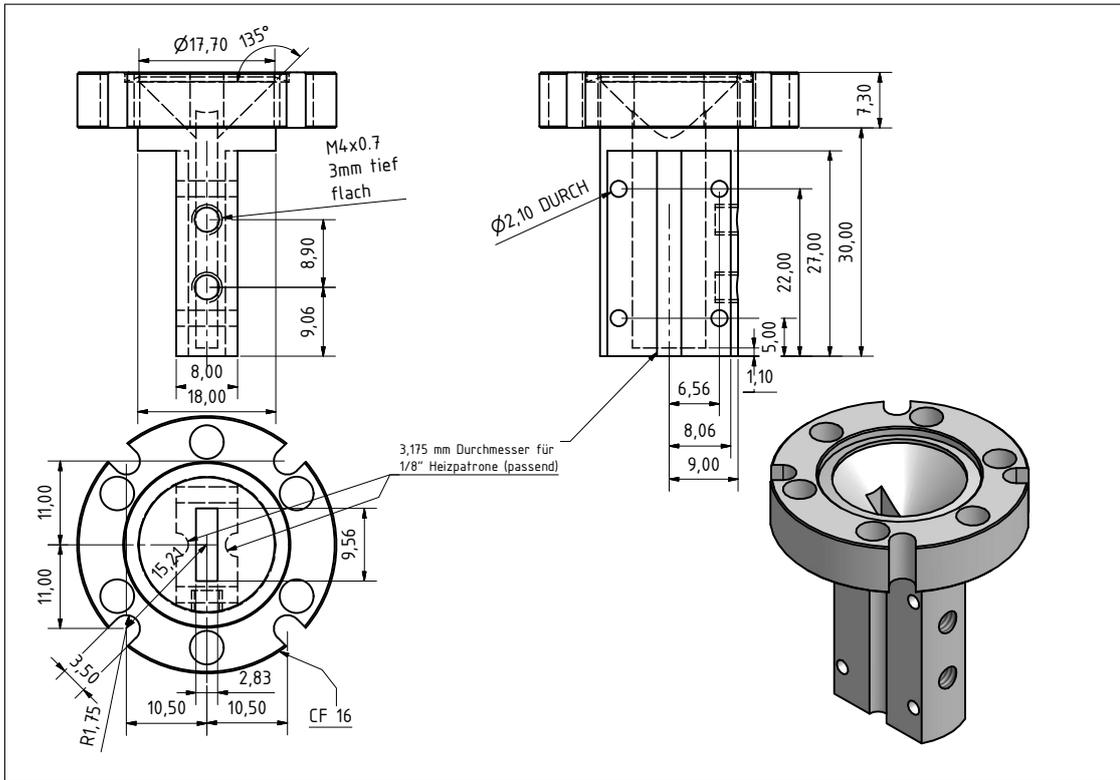
TECHNISCHE ZEICHNUNGEN

Hier finden sich die technischen Zeichnungen für die Vakuumbauteile und Halterungen der Vierwellenmisch- und Detektionskammer.

Quecksilberkammer mit Heizung

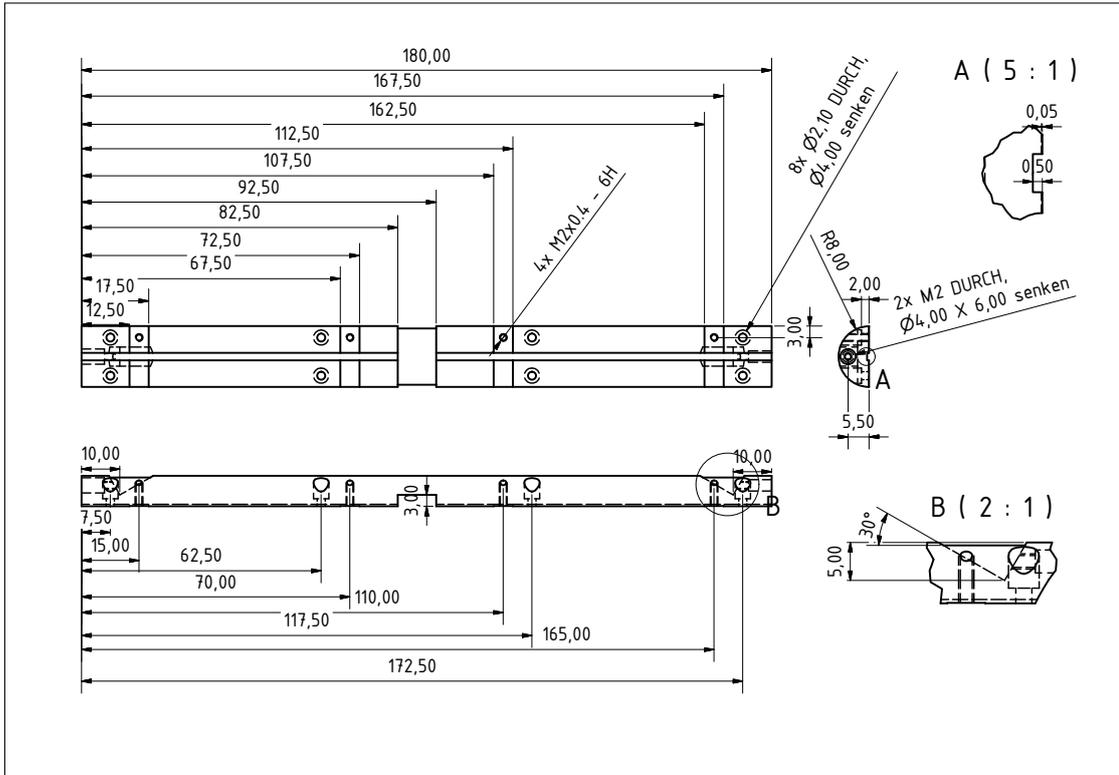


Quecksilberreservoir mit Heizung

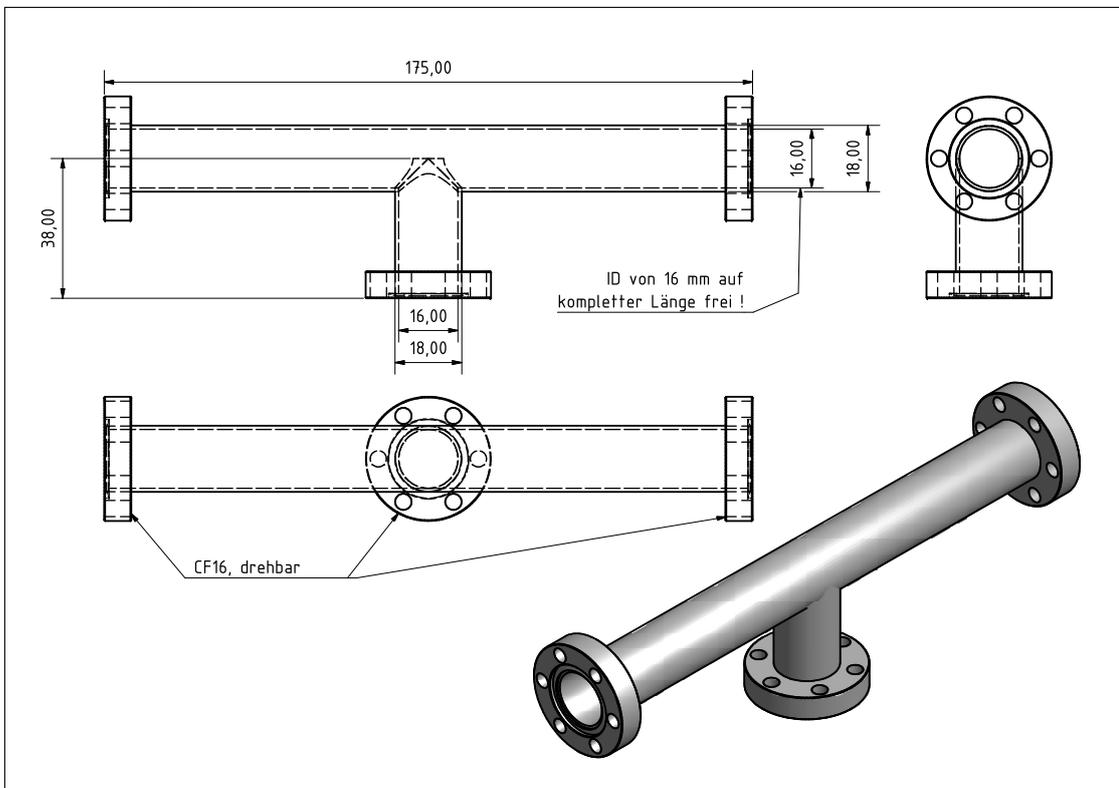


E. TECHNISCHE ZEICHNUNGEN

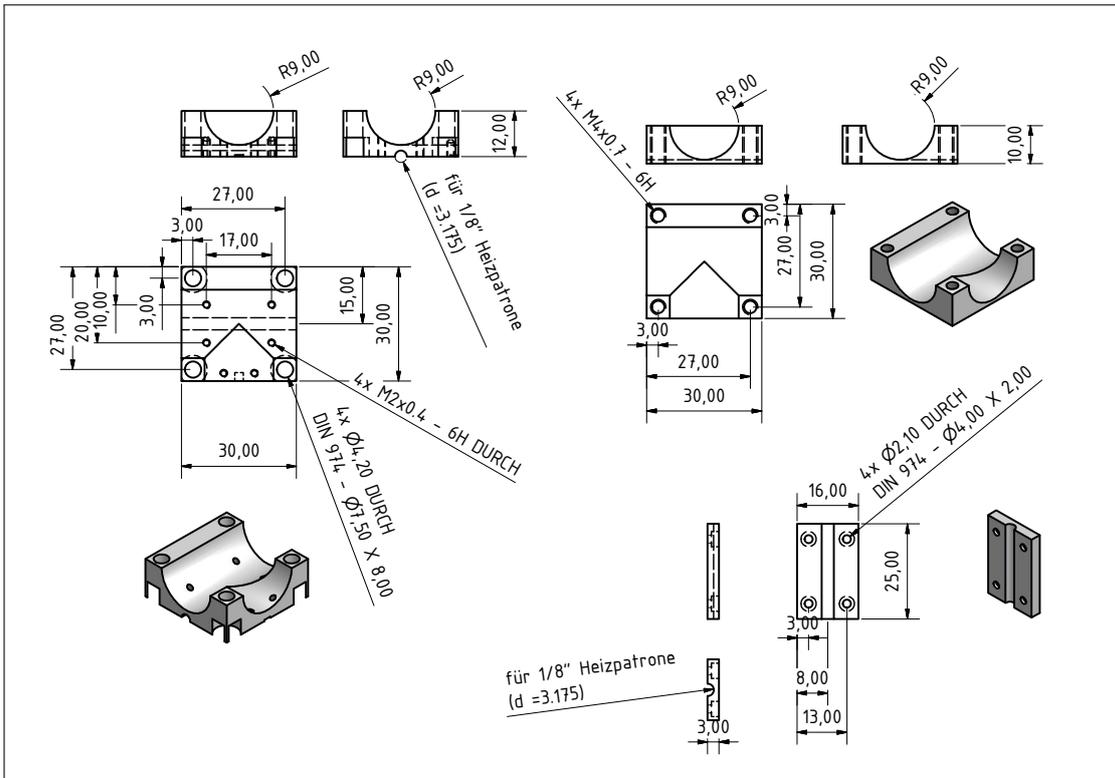
Faseraufnahme - Oberseite



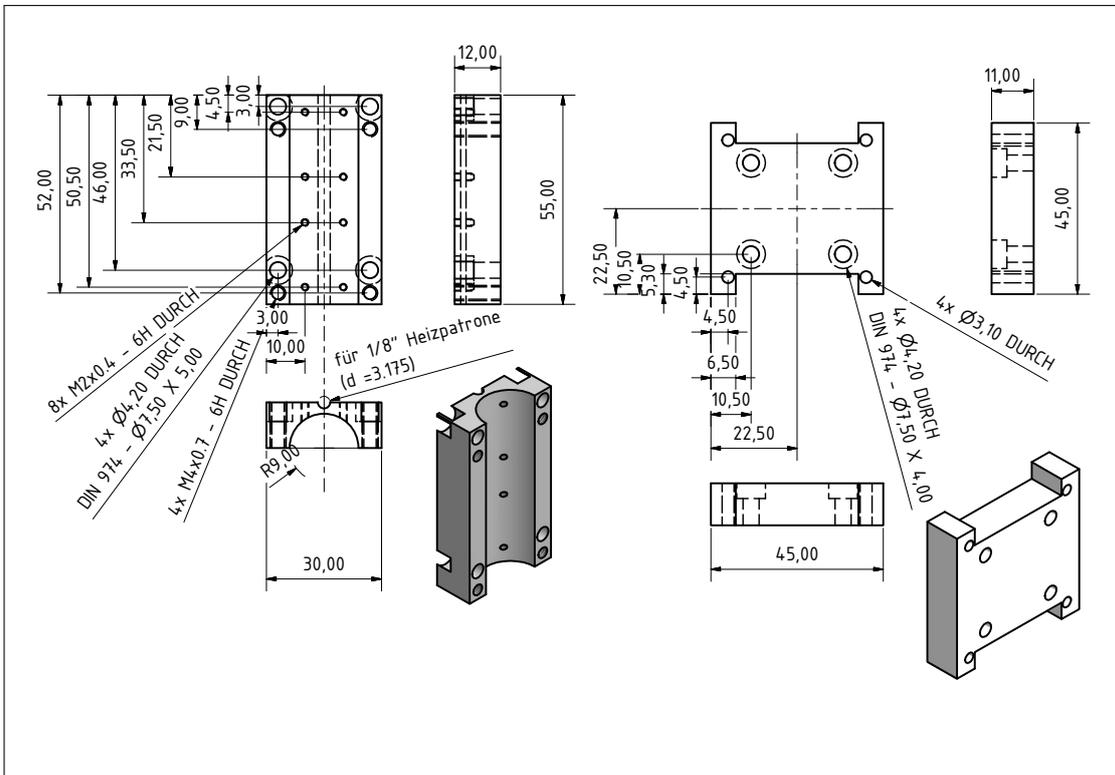
Verbindungsstück der Vierwellenmischkammer



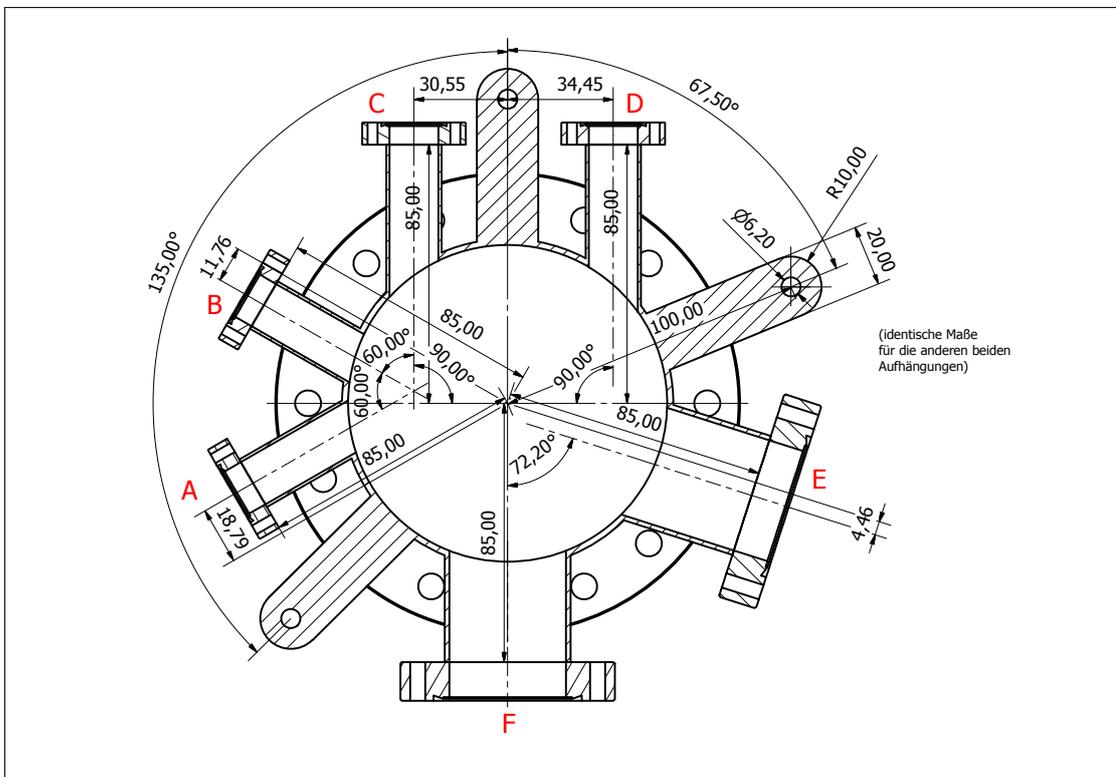
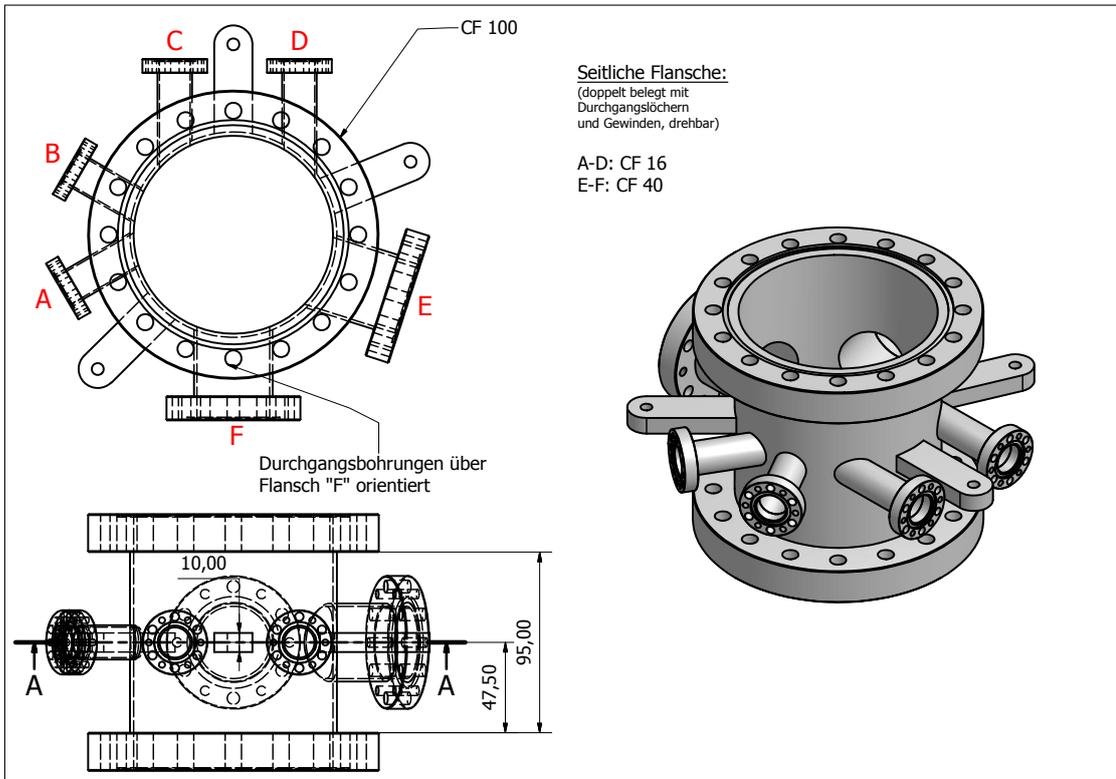
Kammerheizung - Mittelteil



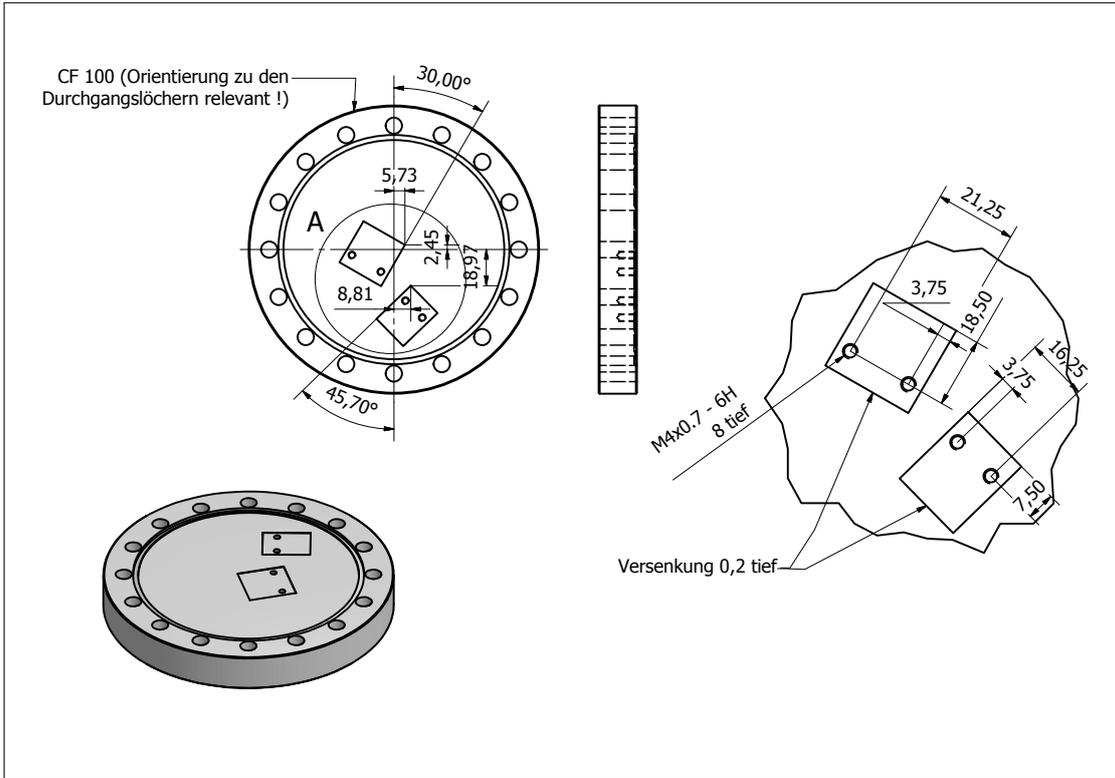
Kammerheizung - Seitenteile und Montageplatte



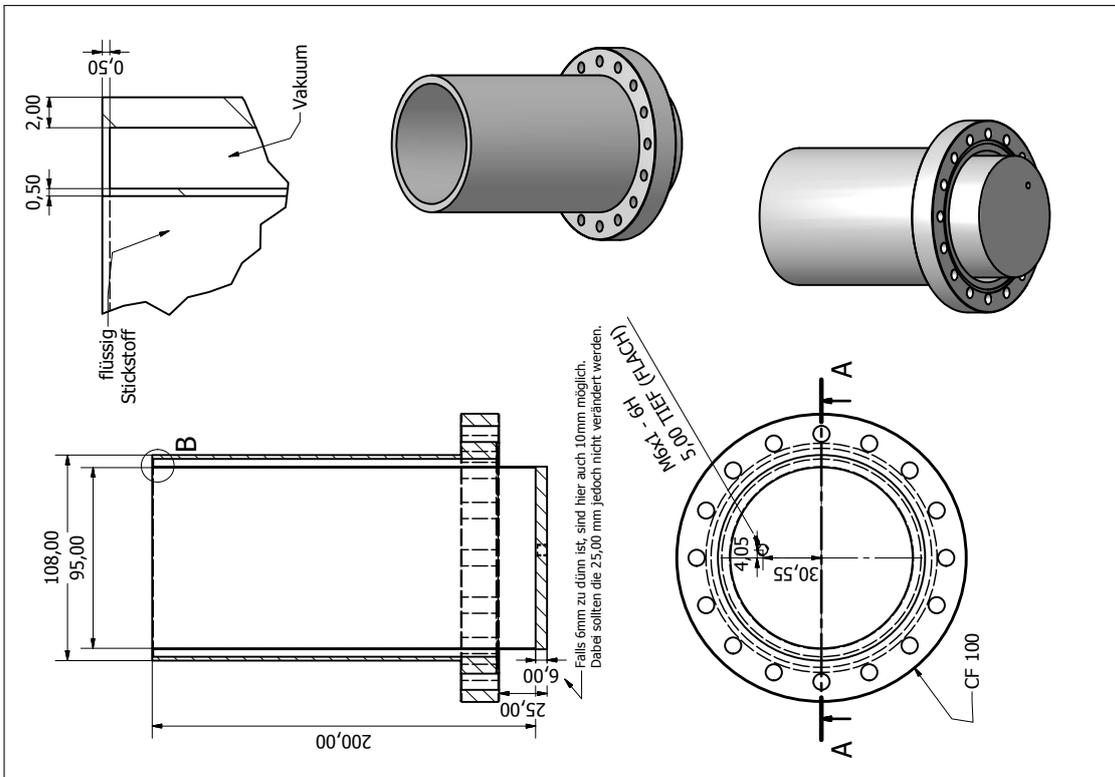
Detektionskammer



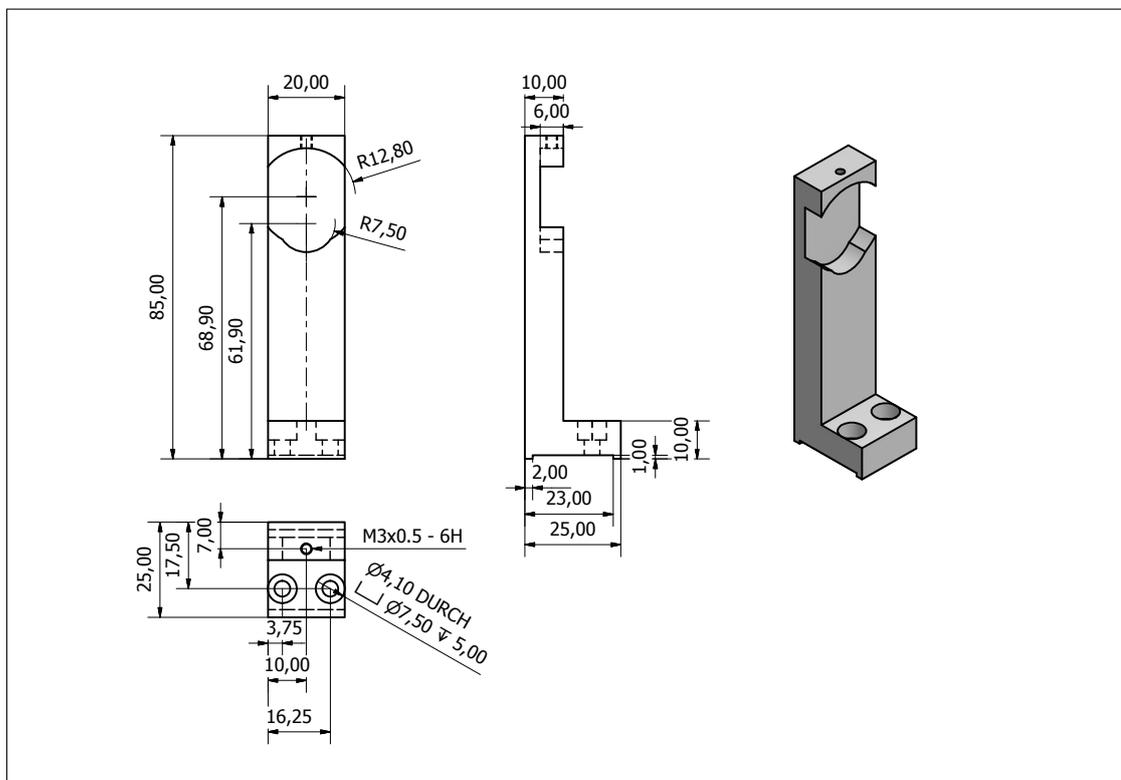
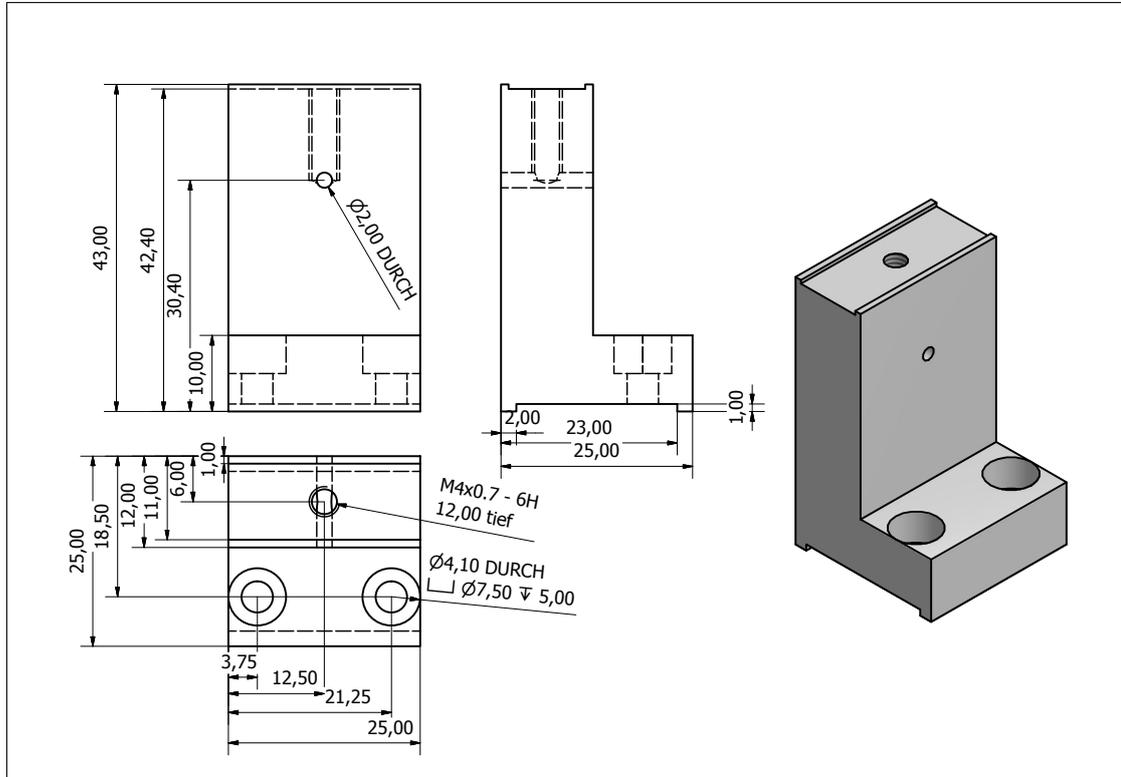
Detektionskammer - Boden



Detektionskammer - Deckel



Optikhalter in Detektionskammer



LITERATURVERZEICHNIS

- [1] International Organization for Standardization - Committee ISO/TC 20/SC 14. Definitions of solar irradiance spectral categories. ISO 21348, 2007.
- [2] T. Lyman. Victor Schumann. *Astrophys. J.*, 39:1, 1914.
- [3] T. Lyman. The spectrum of hydrogen in the region of extremely short wave-lengths. *Astrophys. J.*, 23:181, 1906.
- [4] T. Lyman. An extension of the spectrum in the extreme ultra-violet. *Nature*, 93:241, 1914.
- [5] N. de Oliveira, M. Roudjane, D. Joyeux, D. Phalippou, J.-C. Rodier, and L. Nahon. High-resolution broad-bandwidth Fourier-transform absorption spectroscopy in the VUV range down to 40 nm. *Nat. Photonics*, 5:149–153, 2011.
- [6] B. A. Wallace and R. W. Janes. *Modern Techniques for Circular Dichroism and Synchrotron Radiation Circular Dichroism Spectroscopy*. Advances in biomedical spectroscopy. IOS Press, 2009.
- [7] G. Liu, G. Wang, Y. Zhu, H. Zhang, G. Zhang, X. Wang, Y. Zhou, W. Zhang, H. Liu, L. Zhao, J. Meng, X. Dong, C. Chen, Z. Xu, and X. J. Zhou. Development of a vacuum ultraviolet laser-based angle-resolved photoemission system with a superhigh energy resolution better than 1meV. *Rev. Sci. Instrum.*, 79(2):023105, 2008.
- [8] R. P. Seisyan. Extreme ultraviolet nanolithography for ULSI: A review. *Tech. Phys.*, 50(5):535–545, 2005.
- [9] The ATLAS collaboration. Observation of a new particle in the search for the Standard Model Higgs boson with the *ATLAS* detector at the *LHC*. *Phys. Lett. B*, 716(1):1 – 29, 2012.
- [10] The CMS collaboration. Observation of a new boson at a mass of 125 GeV with the *CMS* experiment at the *LHC*. *Phys. Lett. B*, 716(1):30 – 61, 2012.

- [11] P. W. Higgs. Broken symmetries and the masses of gauge bosons. *Phys. Rev. Lett.*, 13:508–509, 1964.
- [12] F. Englert and R. Brout. Broken symmetry and the mass of gauge vector mesons. *Phys. Rev. Lett.*, 13:321–323, 1964.
- [13] AMS collaboration. The Alpha Magnetic Spectrometer (AMS) on the International Space Station: Part I - results from the test flight on the space shuttle. *Phys. Rep.*, 366(6):331 – 405, 2002.
- [14] R. Bluhm, V. A. Kostelecký, and N. Russell. *CPT* and Lorentz tests in hydrogen and antihydrogen. *Phys. Rev. Lett.*, 82:2254–2257, 1999.
- [15] R. Carosi, P. Clarke, D. Coward, D. Cundy, N. Doble, L. Gatignon, V. Gibson, P. Grafström, R. Hagelberg, G. Kessler, J. van der Lans, H. N. Nelson, H. Wahl, R. Black, D. J. Candlin, J. Muir, K. J. Peach, H. Blümer, R. Heinz, M. Kasemann, K. Kleinknecht, P. Mayer, B. Panzer, B. Renk, S. Roehn, H. Rohrer, E. Augé, R. L. Chase, D. Fournier, P. Heusse, L. Iconomidou-Fayard, I. Harrus, A. M. Lutz, A. C. Schaffer, L. Bertanza, A. Bigi, P. Calafiura, M. Calvetti, R. Casali, C. Cerri, R. Fantechi, G. Gargani, I. Mannelli, A. Nappi, G. M. Pierazzini, C. Becker, H. Burkhardt, M. Holder, G. Quast, M. Rost, H. G. Sander, W. Weihs, and G. Zech. A measurement of the phases of the *CP*-violating amplitudes in $K^0 \rightarrow 2\pi$ decays and a test of *CPT* invariance. *Phys. Lett. B*, 237(2):303 – 312, 1990.
- [16] The KTeV Collaboration. Measurements of direct *CP* violation, *CPT* symmetry, and other parameters in the neutral kaon system. *Phys. Rev. D*, 67:012005, 2003.
- [17] C. G. Parthey, A. Matveev, J. Alnis, B. Bernhardt, A. Beyer, R. Holzwarth, A. Maistrou, R. Pohl, K. Predehl, T. Udem, T. Wilken, N. Kolachevsky, M. Abgrall, D. Rovera, C. Salomon, P. Laurent, and T. W. Hänsch. Improved measurement of the hydrogen $1S - 2S$ transition frequency. *Phys. Rev. Lett.*, 107:203001, 2011.
- [18] R. J. Hughes. Antihydrogen and fundamental symmetries. *Hyperfine Interact.*, 76(1):1–16, 1993.
- [19] P. Pérez and Y. Sacquin. The GBAR experiment: gravitational behaviour of antihydrogen at rest. *Classical Quant. Grav.*, 29(18):184008, 2012.
- [20] G. Baur, G. Boero, A. Brauksiepe, A. Buzzo, W. Eyrich, R. Geyer, D. Grzonka, J. Hauffe, K. Kilian, M. LoVetere, M. Macri, M. Moosburger, R. Nellen, W. Oelert, S. Passaggio, A. Pozzo, K. Röhrich, K. Sachs, G. Schepers, T. Sefzick, R. S. Simon, R. Stratmann, F. Stinzinger, and M. Wolke. Production of antihydrogen. *Phys. Lett. B*, 368(3):251 – 258, 1996.

-
- [21] The ALPHA collaboration. Confinement of antihydrogen for 1,000 seconds. *Nat. Phys.*, 7:558–564, 2011.
- [22] G. B. Andresen, M. D. Ashkezari, M. Baquero-Ruiz, W. Bertsche, P. D. Bowe, E. Butler, C. L. Cesar, S. Chapman, M. Charlton, A. Deller, S. Eriksson, J. Fajans, T. Friesen, M. C. Fujiwara, D. R. Gill, A. Gutierrez, J. S. Hangst, W. N. Hardy, M. E. Hayden, A. J. Humphries, R. Hydromako, M. J. Jenkins, S. Jonsell, L. V. Jørgensen, L. Kurchaninov, N. Madsen, S. Menary, P. Nolan, K. Olchanski, A. Olin, A. Povilus, P. Pusa, F. Robicheaux, E. Sarid, S. Seif el Nasr, D. M. Silveira, C. So, J. W. Storey, R. I. Thompson, D. P. van der Werf, J. S. Wurtele, and Y. Yamazaki. Trapped antihydrogen. *Nature*, 468:673–676, 2010.
- [23] G. Gabrielse, R. Kalra, W. S. Kolthammer, R. McConnell, P. Richerme, D. Grzonka, W. Oelert, T. Seifick, M. Zielinski, D. W. Fitzakerley, M. C. George, E. A. Hessels, C. H. Storry, M. Weel, A. Müllers, and J. Walz. Trapped antihydrogen in its ground state. *Phys. Rev. Lett.*, 108:113002, 2012.
- [24] C. Amole, M. D. Ashkezari, M. Baquero-Ruiz, W. Bertsche, P. D. Bowe, E. Butler, A. Capra, C. L. Cesar, M. Charlton, A. Deller, P. H. Donnan, S. Eriksson, J. Fajans, T. Friesen, M. C. Fujiwara, D. R. Gill, A. Gutierrez, J. S. Hangst, W. N. Hardy, M. E. Hayden, A. J. Humphries, C. A. Isaac, S. Jonsell, L. Kurchaninov, A. Little, N. Madsen, J. T. K. McKenna, S. Menary, S. C. Napoli, P. Nolan, K. Olchanski, A. Olin, P. Pusa, C. Ø. Rasmussen, F. Robicheaux, E. Sarid, C. R. Shields, D. M. Silveira, S. Stracka, C. So, R. I. Thompson, D. P. van der Werf, and J. S. Wurtele. Resonant quantum transitions in trapped antihydrogen atoms. *Nature*, 483:439–443, 2012.
- [25] T. W. Hänsch and C. Zimmermann. Laser spectroscopy of hydrogen and antihydrogen. *Hyperfine Interact.*, 76(1):47–57, 1993.
- [26] C. L. Cesar. Zeeman effect on the $1S - 2S$ transition in trapped hydrogen and antihydrogen. *Phys. Rev. A*, 64:023418, 2001.
- [27] I. D. Setija, H. G. C. Werij, O. J. Luiten, M. W. Reynolds, T. W. Hijmans, and J. T. M. Walraven. Optical cooling of atomic hydrogen in a magnetic trap. *Phys. Rev. Lett.*, 70:2257–2260, 1993.
- [28] J. Walz, A. Pahl, K. S. E. Eikema, and T. W. Hänsch. The first continuous coherent Lyman- α source. *Nucl. Phys. A*, 692(1-2):163–167, 2001.
- [29] B. Mayer. *Simulation zur Laserkühlung von Antiwasserstoff*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2013.

- [30] M. Saffman, T. G. Walker, and K. Mølmer. Quantum information with Rydberg atoms. *Rev. Mod. Phys.*, 82:2313–2363, 2010.
- [31] T. F. Gallagher. *Rydberg Atoms*. Cambridge University Press, Cambridge, 1994.
- [32] 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.
- [33] M. Müller, L. Liang, I. Lesanovsky, and P. Zoller. Trapped Rydberg ions: from spin chains to fast quantum gates. *New J. Phys.*, 10(9):093009, 2008.
- [34] H. Häffner, C. F. Roos, and R. Blatt. Quantum computing with trapped ions. *Phys. Rep.*, 469(4):155 – 203, 2008.
- [35] J. I. Cirac and P. Zoller. Quantum computations with cold trapped ions. *Phys. Rev. Lett.*, 74:4091–4094, 1995.
- [36] W. Li and I. Lesanovsky. Electronically excited cold ion crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 108:023003, 2012.
- [37] 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 J. Phys.*, 13(7):075014, 2011.
- [38] 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. *J. Phys. B: At. Mol. Opt.*, 31(24):5355, 1998.
- [39] M. Hennrich. Private Kommunikation, 2014. Universität Innsbruck, Institut für Experimentalphysik.
- [40] A. V. Vinogradov, I. I. Sobelman, and E. A. Yukov. On the problem of shortwave lasers. *J. Phys. Colloques*, 39:C4–61–C4–68, 1978.
- [41] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich. Generation of optical harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 7:118–119, 1961.
- [42] G. H. C. New and J. F. Ward. Optical third-harmonic generation in gases. *Phys. Rev. Lett.*, 19:556–559, 1967.
- [43] N. H. Burnett, H. A. Baldis, M. C. Richardson, and G. D. Enright. Harmonic generation in CO₂ laser target interaction. *Appl. Phys. Lett.*, 31(3):172–174, 1977.
- [44] M. Bass, P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich. Optical mixing. *Phys. Rev. Lett.*, 8:18–18, 1962.

-
- [45] A. H. Kung, J. F. Young, G. C. Bjorklund, and S. E. Harris. Generation of vacuum ultraviolet radiation in phase-matched Cd vapor. *Phys. Rev. Lett.*, 29:985–988, 1972.
- [46] R. Hilbig, G. Hilber, A. Lago, A. Timmermann, and R. Wallenstein. Broadly tunable coherent VUV radiation generated by frequency mixing in gases. In T. W. Hänsch and Y. R. Shen, editors, *Laser Spectroscopy VII*, volume 49 of *Springer Series in Optical Sciences*, pages 181–182. Springer Berlin Heidelberg, 1985.
- [47] R. R. Freeman, G. C. Bjorklund, N. P. Economou, P. F. Liao, and J. E. Bjorkholm. Generation of cw VUV coherent radiation by four-wave sum frequency mixing in Sr vapor. *Appl. Phys. Lett.*, 33(8):739–742, 1978.
- [48] F. S. Tomkins and R. Mahon. High-efficiency four-wave sum and difference mixing in Hg vapor. *Opt. Lett.*, 6(4):179–181, 1981.
- [49] F. S. Tomkins and R. Mahon. Generation of continuously tunable narrow-band radiation from 1220 to 1174 Å in Hg vapor. *Opt. Lett.*, 7(7):304–306, 1982.
- [50] R. Hilbig and R. Wallenstein. Resonant sum and difference frequency mixing in Hg. *IEEE J. Quantum Elect.*, 19(12):1759–1770, 1983.
- [51] K. S. E. Eikema, J. Walz, and T. W. Hänsch. Continuous wave coherent Lyman- α radiation. *Phys. Rev. Lett.*, 83:3828–3831, 1999.
- [52] D. Kolbe, A. Beczkowiak, T. Diehl, A. Koglbauer, A. Müllers, M. Scheid, M. Stappel, R. Steinborn, and J. Walz. Continuous Lyman-alpha generation by four-wave mixing in mercury for laser cooling of antihydrogen. *Can. J. Phys.*, 89(1):25–28, 2011.
- [53] D. Kolbe, M. Scheid, and J. Walz. Influence of the 6^1S_0 - 6^3P_1 resonance on continuous Lyman- α generation in mercury. *Appl. Phys. B*, 113(4):559–566, 2013.
- [54] 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.
- [55] 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 $^{40}\text{Ca}^+$. *Appl. Phys. B*, 114:11–16, 2014.
- [56] R. B. Miles, G. Laufer, and G. C. Bjorklund. Coherent anti-Stokes Raman scattering in a hollow dielectric waveguide. *Appl. Phys. Lett.*, 30(8):417–419, 1977.

- [57] L. Mannik and S.K. Brown. Tunable infrared generation using third Stokes output from a waveguide Raman shifter. *Opt. Commun.*, 57(5):360 – 364, 1986.
- [58] D. M. Pepper. Nonlinear optical phase conjugation. *Optical Engineering*, 21(2):212156, 1982.
- [59] Y. Tamaki, K. Midorikawa, and M. Obara. Phase-matched third-harmonic generation by nonlinear phase shift in a hollow fiber. *Appl. Phys. B*, 67(1):59–63, 1998.
- [60] M. Nisoli, S. De Silvestri, and O. Svelto. Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique. *Appl. Phys. Lett.*, 68(20):2793–2795, 1996.
- [61] V. G. Arkhipkin, Yu. I. Heller, A. K. Popov, and A. S. Provorov. Frequency mixing in a gas-filled waveguide for VUV light generation. *Appl. Phys. B*, 37(2):93–97, 1985.
- [62] M. Castillejo, J. Y. Zhou, and M. H. R. Hutchinson. Coherent vacuum ultraviolet generation by frequency mixing in glass hollow waveguides. *Appl. Phys. B*, 45(4):293–299, 1988.
- [63] L. Misoguti, S. Backus, C. G. Durfee, R. Bartels, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Generation of broadband VUV light using third-order cascaded processes. *Phys. Rev. Lett.*, 87:013601, 2001.
- [64] A. N. Naumov, D. A. Sidorov-Biryukov, A. B. Fedotov, O. A. Kolevatova, A. M. Zheltikov, P. Marsili, A. Ruffini, and F. Giammanco. Four-wave mixing of picosecond pulses in hollow fibers: Phase matching and the influence of high-order waveguide modes. *J. Exp. Theor. Phys.*, 93(2):247–255, 2001.
- [65] A. B. Fedotov, F. Giammanco, A. N. Naumov, P. Marsili, A. Ruffini, D. A. Sidorov-Biryukov, and A. M. Zheltikov. Four-wave mixing of picosecond pulses in hollow fibers: expanding the possibilities of gas-phase analysis. *Appl. Phys. B*, 72(5):575–582, 2001.
- [66] S. O. Konorov, A. B. Fedotov, and A. M. Zheltikov. Enhanced four-wave mixing in a hollow-core photonic-crystal fiber. *Opt. Lett.*, 28(16):1448–1450, 2003.
- [67] P. Londero, V. Venkataraman, A. R. Bhagwat, A. D. Slepikov, and A. L. Gaeta. Ultralow-power four-wave mixing with Rb in a hollow-core photonic band-gap fiber. *Phys. Rev. Lett.*, 103:043602, 2009.
- [68] Y.-M. Yiu, K. D. Bonin, and T. J. McIlrath. Two-photon resonant upconversion in xenon. *Opt. Lett.*, 7(6):268–270, 1982.

-
- [69] S. Chénais, S. Forget, L. Philippet, and M.-C. Castex. Enhanced generation of vacuum-ultraviolet radiation by four-wave mixing in mercury using pulsed laser vaporization. *Appl. Phys. B*, 89(2-3):223–229, 2007.
- [70] E. C. Benck, J. E. Lawler, and J. T. Dakin. Lifetimes, branching ratios, and absolute transition probabilities in Hg I. *J. Opt. Soc. Am. B*, 6(1):11–22, 1989.
- [71] R. W. Boyd. *Nonlinear optics*. Academic Press, 3. edition, April 2008.
- [72] R. C. Hilborn. Einstein coefficients, cross sections, f values, dipole moments, and all that. *Am. J. Phys.*, 50(11):982–986, 1982.
- [73] A. V. Smith and W. J. Alford. Vacuum ultraviolet oscillator strengths of Hg measured by sum-frequency mixing. *Phys. Rev. A*, 33(5):3172–3180, 1986.
- [74] W. J. Alford and A. V. Smith. Measured third-order susceptibility and excited-state oscillator strengths for atomic mercury. *Phys. Rev. A*, 36(2), 1987.
- [75] P. Laporte and H. Damany. High density self-broadening of the 253.65 nm mercury resonance line. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 22(5):447–466, 1979.
- [76] D. Perrin-Lagarde and R. Lennuier. Étude expérimentale de l’influence des interactions Hg-Hg sur le profil spectral de la radiation Hg 2 537 Å. *J. Phys. France*, 36(5):357–366, 1975.
- [77] W. Demtröder. *Laserspektroskopie, Grundlagen und Techniken*. Springer, 5. edition, 2007.
- [78] A. D. Slepko, A. R. Bhagwat, V. Venkataraman, P. Londero, and A. L. Gaeta. Spectroscopy of Rb atoms in hollow-core fibers. *Phys. Rev. A*, 81:053825, 2010.
- [79] S. Ghosh, A. R. Bhagwat, C. K. Renshaw, S. Goh, A. L. Gaeta, and B. J. Kirby. Low-light-level optical interactions with rubidium vapor in a photonic band-gap fiber. *Phys. Rev. Lett.*, 97:023603, 2006.
- [80] A. D. Slepko, A. R. Bhagwat, V. Venkataraman, P. Londero, and A. L. Gaeta. Generation of large alkali vapor densities inside bare hollow-core photonic band-gap fibers. *Opt. Express*, 16(23):18976–18983, 2008.
- [81] M. Scheid. *Einfluss der 6^1S-6^3P Resonanz auf die Lyman- α Erzeugung in Quecksilber*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2009.

- [82] A. V. Smith and W. J. Alford. Practical guide for 7S resonant frequency mixing in mercury: generation of light in the 230–185 and 140–120 nm ranges. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4(11):1765–1770, 1987.
- [83] J. F. Reintjes. *Nonlinear optical parametric processes in liquids and gases*. Academic Press, 1984.
- [84] M. Scheid, D. Kolbe, F. Markert, T. W. Hänsch, and J. Walz. Continuous-wave Lyman- α generation with solid-state lasers. *Opt. Express*, 17(14):11274–11280, 2009.
- [85] A. V. Smith, W. J. Alford, and G. R. Hadley. Optimization of two-photon-resonant four-wave mixing: Application to 130.2 nm generation in mercury vapor. *J. Opt. Soc. Am. B*, 5(7):1503–1519, 1988.
- [86] N. Bras, J. C. Jeannet, and D. Perrin. Energy transfer in mercury vapour following laser excitation of the 7^1S_0 state by two-photon absorption. *J. Phys. B: At. Mol. Opt.*, 26(15):2289, 1993.
- [87] Y. R. Shen. *The principles of nonlinear optics*. Wiley, New York, 1984.
- [88] T. Beyer, D. Kolbe, M. Scheid, F. Markert, and J. Walz. Two-photon spectroscopy of mercury and velocity-selective double resonances. *Phys. Rev. A*, 80:053414, 2009.
- [89] D. Kolbe. *Effizientes Vierwellenmischen durch Ausnutzen von Resonanzen in Quecksilber*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2010.
- [90] F. R. S. Lord Rayleigh. On the passage of electric waves through tubes, or the vibrations of dielectric cylinders. *Phil. Mag. S. 5*, 43(261):125–132, 1897.
- [91] E. A. J. Marcatili and R. A. Schmeltzer. Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers. *Bell Syst. Tech. J.*, 43:1783–1809, 1964.
- [92] J. A. Stratton. *Electromagnetic theory*. McGraw-Hill Book Co., New York, 1941.
- [93] R. K. Nubling and J. A. Harrington. Launch conditions and mode coupling in hollow-glass waveguides. *Opt. Eng.*, 37(9):2454–2458, 1998.
- [94] C. G. Durfee III, S. Backus, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Ultra-broadband phase-matched optical parametric generation in the ultraviolet by use of guided waves. *Opt. Lett.*, 22(20):1565–1567, 1997.
- [95] T. H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187(4736):493–494, 1960.

-
- [96] K. Hussain and P. Kumbhakar. Nonlinear optical properties of some newly developed crystals for measurement of ultrafast laser pulses. *Braz. J. Phys.*, 36:1281 – 1284, 2006.
- [97] J. F. Young, G. C. Bjorklund, A. H. Kung, R. B. Miles, and S. E. Harris. Third-harmonic generation in phase-matched Rb vapor. *Phys. Rev. Lett.*, 27:1551–1553, 1971.
- [98] G. C. Bjorklund. Effects of focusing on third-order nonlinear processes in isotropic media. *IEEE J. Quantum Elect.*, 11(6):287–296, 1975.
- [99] T. Diehl. *Vierwellenmischen in einer dampfgefüllten Hohlaser*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2011.
- [100] D. Kolbe. Private Kommunikation, 2013. Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR), Institut für Technische Physik.
- [101] R. Grimm, M. Weidemüller, and Y. B. Ovchinnikov. Optical dipole traps for neutral atoms. *Adv. At. Mol. Opt. Phys.*, 42:95 – 170, 2000.
- [102] G. Nienhuis. Impressed by light: Mechanical action of radiation on atomic motion. *Phys. Rep.*, 138(3):151 – 192, 1986.
- [103] F. K. Gel'Mukhanov and A. M. Shalagin. Light-induced diffusion of gases. *JETP Lett.*, 29(12):711–713, 1979.
- [104] S. N. Atutov and A. M. Shalagin. Prospects for light-induced drift in astrophysical objects. *Sov. Astron. Lett.*, 14(4):284–287, 1988.
- [105] A. Aret and A. Sapar. Light-induced drift for Hg isotopes in chemically peculiar stars. *Astron. Nachr.*, 323(1):21–30, 2002.
- [106] H. G. C. Werij, J. P. Woerdman, J. J. M. Beenakker, and I. Kuščer. Demonstration of a semipermeable optical piston. *Phys. Rev. Lett.*, 52:2237–2240, 1984.
- [107] S. N. Atutov, P. V. Kolinko, and A. M. Shalagin. Separation of Lithium isotopes by light-induced drift. *Laser Phys.*, 4(3):855, 1993.
- [108] H. G. C. Werij, J. E. M. Haverkort, and J. P. Woerdman. Study of the optical piston. *Phys. Rev. A*, 33:3270–3281, 1986.
- [109] A. V. Ghiner, M. I. Stockmann, and M. A. Vaksman. Surface light-induced drift of a rarefied gas. *Phys. Lett. A*, 96(2):79–82, 1983.
- [110] R. W. M. Hoogeveen, R. J. C. Spreeuw, and L. J. F. Hermans. Observation of surface light-induced drift. *Phys. Rev. Lett.*, 59:447–449, 1987.

- [111] M. Wutz, H. Adam, and W. Walcher. *Handbuch Vakuumtechnik, Theorie und Praxis*. Vieweg, 6. edition, 1997.
- [112] H. G. C. Werij, G. Nienhuis, and J. P. Woerdman. The optical piston in a capillary cell with open ends. *J. Phys. B: At. Mol. Opt.*, 21(18):3141, 1988.
- [113] H. G. C. Werij and J. P. Woerdman. Light-induced drift of Na atoms. *Phys. Rep.*, 169(3):145 – 208, 1988.
- [114] J. C. Maxwell. On stresses in rarified gases arising from inequalities of temperature. *Phil. Trans. R. Soc. Lond.*, 170:231–256, 1879.
- [115] A. E. Bazelyan. Method for determining the difference between the accommodation coefficients for excited and ground-state molecules in experiments with a light-induced free-molecular drift. *J. Exp. Theor. Phys.*, 73(5):827–830, 1991.
- [116] E. J. van Duijn, R. Nokhai, L. J. F. Hermans, A. Yu. Pankov, and S. Yu. Krylov. Rotational- and vibrational-state resolved HF-surface interactions investigated by surface light-induced drift. *J. Chem. Phys.*, 107(10):3999–4005, 1997.
- [117] G. J. van der Meer, B. Broers, R. W. M. Hoogeveen, and L. J. F. Hermans. Experiments on surface light-induced drift for various systems. *Physica A*, 182(1-2):47 – 58, 1992.
- [118] W. G. Pollard and R. D. Present. On gaseous self-diffusion in long capillary tubes. *Phys. Rev.*, 73:762–774, 1948.
- [119] A. K. Popov. Private Kommunikation, 2013. University of Wisconsin-Stevens Point, Department of Physics and Astronomy.
- [120] P. Bachor. *Frequenzstabilisierung von Lasersystemen zur Rydberganregung von Calciumionen*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2013.
- [121] 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.
- [122] F. Markert, M. Scheid, D. Kolbe, and J. Walz. 4W continuous-wave narrow-linewidth tunable solid-state laser source at 546nm by externally frequency doubling a ytterbium-doped single-mode fiber laser system. *Opt. Express*, 15(22):14476–14481, 2007.
- [123] R. Steinborn. *Ein leistungsstarker Ytterbium-Faserverstärker bei 1091 nm für eine kontinuierliche Lyman- α -Quelle*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2009.

-
- [124] M. Stappel. *Hochleistungslasersystem bei 545,5nm durch Frequenzverdopplung eines Ytterbium-Faserverstärkersystems*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2011.
- [125] M. Sattler. *Aufbau und Charakterisierung eines Yb:Lu₂O₃-Scheibenlasers*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2011.
- [126] 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 Phys.*, 23(7):075103, 2013.
- [127] 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.
- [128] M. Scheid. *Frequenzvervierfachung eines Yb:YAG-Scheibenlasers - ein UV Lasersystem bei 253,7 nm, der 6¹S–6³P Linie in Quecksilber*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2006.
- [129] H. M. Pask, R. J. Carman, D. C. Hanna, A. C. Tropper, C. J. Mackechnie, P. R. Barber, and J. M. Dawes. Ytterbium-doped silica fiber lasers: versatile sources for the 1-1.2 μm region. *IEEE J. Sel. Top. Quant.*, 1(1):2–13, 1995.
- [130] Y. Jeong, J. Nilsson, J. K. Sahu, D. B. S. Soh, C. Alegria, P. Dupriez, C. A. Codemard, D. N. Payne, R. Horley, L. M. B. Hickey, L. Wanzcyk, C. E. Chryssou, J. A. Alvarez-Chavez, and P. W. Turner. Single-frequency, single-mode, plane-polarized ytterbium-doped fiber master oscillator power amplifier source with 264W of output power. *Opt. Lett.*, 30(5):459–461, 2005.
- [131] A. Seifert, M. Sinther, T. Walther, and E. S. Fry. Narrow-linewidth, multi-Watt Yb-doped fiber amplifier at 1014.8 nm. *Appl. Opt.*, 45(30):7908–7911, 2006.
- [132] T. C. Newell, P. Peterson, A. Gavrielides, and M. P. Sharma. Temperature effects on the emission properties of Yb-doped optical fibers. *Opt. Commun.*, 273(1):256 – 259, 2007.
- [133] L. Ricci, M. Weidemüller, T. Esslinger, A. Hemmerich, C. Zimmermann, V. Vuletic, W. König, and T. W. Hänsch. A compact grating-stabilized diode laser system for atomic physics. *Opt. Commun.*, 117(5-6):541–549, 1995.
- [134] B. Köhler, T. Brand, M. Haag, and J. Biesenbach. Wavelength stabilized high-power diode laser modules. *Proc. SPIE*, 7198:10–1–10–12, 2009.

- [135] T. W. Hänsch and B. Couillaud. Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity. *Opt. Commun.*, 35(3):441–444, 1980.
- [136] D. Meschede. *Optik, Licht und Laser*. Teubner Studienbücher. Vieweg + Teubner Verlag, 3. edition, 2008.
- [137] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, and Y. Sugimoto. InGaN-based multi-quantum-well-structure laser diodes. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 35(Part 2, No. 1B):L74–L76, 1996.
- [138] M. Faraday. On the magnetization of light and the illumination of magnetic lines of force. *Phil. Trans. Roy. Soc. Lond.*, 136:1, 1846.
- [139] M. Berry. The geometric phase. *Sci. Am.*, 259(6):26–32, 1988.
- [140] R. V. Pound. Electronic frequency stabilization of microwave oscillators. *Rev. Sci. Instrum.*, 17(11):490–505, 1946.
- [141] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. Ward. Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator. *Appl. Phys. B*, 31(2):97–105, 1983.
- [142] E. Zanger, R. Mueller, B. Liu, and W. Gries. Diode-pumped industrial high-power cw all-solid state laser at 266 nm. *Proc. SPIE*, 3862:255–261, 1999.
- [143] J. M. Kriesel, N. Gat, B. E. Bernacki, R. L. Erikson, B. D. Cannon, T. L. Myers, C. M. Bledt, and J. A. Harrington. Hollow core fiber optics for mid-wave and long-wave infrared spectroscopy. *Proc. SPIE*, 8018:80180V–80180V–10, 2011.
- [144] A. E. Siegman. How to (maybe) measure laser beam quality. In *DPSS (Diode Pumped Solid State) Lasers: Applications and Issues*, page MQ1. Optical Society of America, 1998.
- [145] D. R. Skinner and R. E. Whitcher. Measurement of the radius of a high-power laser beam near the focus of a lens. *J. Phys. E: Sci. Instrum.*, 5(3):237, 1972.
- [146] Y. Matsuura and M. Miyagi. Hollow optical fibers for ultraviolet and vacuum ultraviolet light. *IEEE J. Sel. Top. Quant.*, 10(6):1430–1434, 2004.
- [147] E. R. I. Abraham and E. A. Cornell. Teflon feedthrough for coupling optical fibers into ultrahigh vacuum systems. *Appl. Opt.*, 37(10):1762–1763, 1998.

-
- [148] A. D. Rakić. Algorithm for the determination of intrinsic optical constants of metal films: application to aluminum. *Appl. Opt.*, 34(22):4755–4767, 1995.
- [149] P. B. Johnson and R. W. Christy. Optical constants of the noble metals. *Phys. Rev. B*, 6:4370–4379, 1972.
- [150] F. Markert. *Eine kontinuierliche Lyman- α -Quelle basierend auf Festkörperlasersystemen*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2009.
- [151] T. Ida, M. Ando, and H. Toraya. Extended pseudo-Voigt function for approximating the Voigt profile. *J. Appl. Cryst.*, 33(6):1311–1316, 2000.
- [152] J. J. Olivero and R. L. Longbothum. Empirical fits to the Voigt line width: A brief review. *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 17(2):233 – 236, 1977.
- [153] K. D. Carlson, P. W. Gilles, and R. J. Thorn. Molecular and hydrodynamical effusion of mercury vapor from Knudsen cells. *J. Chem. Phys.*, 38(11):2725–2735, 1963.
- [154] W. Steckelmacher. The effect of cross-sectional shape on the molecular flow in long tubes. *Vacuum*, 28(6-7):269–275, 1978.
- [155] R. C. Mason. Condensation and adsorption of mercury vapor. *J. Appl. Phys.*, 9(2):131–134, 1938.
- [156] M. Hansen and K. Anderko. *Constitution of binary alloys*. Number 1 in Metallurgy and metallurgical engineering series. McGraw-Hill, 2. edition, 1965.
- [157] K. S. E. Eikema, J. Walz, and T. W. Hänsch. Continuous coherent Lyman- α excitation of atomic hydrogen. *Phys. Rev. Lett.*, 86:5679–5682, 2001.
- [158] D. Kolbe, M. Scheid, A. Koglbauer, and J. Walz. Continuous-wave spontaneous lasing in mercury pumped by resonant two-photon absorption. *Opt. Lett.*, 35(16):2690–2692, 2010.
- [159] K. L. Menningen and J. E. Lawler. Radiation trapping of the Hg 185 nm resonance line. *J. Appl. Phys.*, 88(6):3190–3197, 2000.
- [160] J. E. M. Goldsmith. Two-photon-excited stimulated emission from atomic hydrogen in flames. *J. Opt. Soc. Am. B*, 6(11):1979–1985, 1989.
- [161] A. I. Parkhomenko and A. M. Shalagin. Light-induced drift in cascade excitation of levels. *Sov. J. Quantum Electron.*, 12(8):1061, 1982.

- [162] A. G. Bakhtadze, V. M. Vetsko, A. N. Starostin, and T. R. Khukhunashvili. Isotopically selective light-induced drift of atoms in a field of counterpropagating waves. *Sov. J. Quantum Electron.*, 14(10):1430–1432, 1984.
- [163] A. K. Popov, V. M. Shalaev, and V. Z. Yakhnin. On two-photon excited gas drift under a train of ultrashort laser pulses. *Z. Phys. D*, 8(4):367–369, 1988.
- [164] E. Comparini, R. Dal Passo, C. Pescatore, and M. Ughi. On a model for the propagation of isotopic disequilibrium by diffusion. *Math. Mod. Meth. Appl. S.*, 19(08):1277–1294, 2009.
- [165] P. Laporte, J. L. Subtil, M. Courbon, M. Bon, and L. Vincent. Vacuum-ultraviolet refractive index of LiF and MgF₂ in the temperature range 80–300 K. *J. Opt. Soc. Am.*, 73(8):1062–1069, 1983.
- [166] M. Pizzocaro, D. Calonico, P. Cancio Pastor, J. Catani, G. A. Costanzo, F. Levi, and L. Lorini. Efficient Frequency Doubling at 399 nm. *ArXiv e-prints*, 2014, 1401.1623.
- [167] Y. Mori, I. Kuroda, S. Nakajima, T. Sasaki, and S. Nakai. New nonlinear optical crystal: Cesium lithium borate. *Appl. Phys. Lett.*, 67(13):1818–1820, 1995.
- [168] J. Sakuma, Y. Asakawa, and M. Obara. Generation of 5-W deep-UV continuous-wave radiation at 266nm by an external cavity with a CsLiB₆O₁₀ crystal. *Opt. Lett.*, 29(1):92–94, 2004.
- [169] T. Weber. *Drei-Farben-Überhöhungsresonator zur Erzeugung von kohärenter, kontinuierlicher Strahlung im VUV*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2009.
- [170] S. Richter. *Eine Quecksilberdampfzelle zur Lyman- α -Erzeugung in einem Überhöhungsresonator*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2010.
- [171] P. Micke. *Zur Erzeugung von kontinuierlicher VUV Strahlung durch Vierwellenmischen in einem Dreifarbenresonator*. Masterarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2013.
- [172] A. Beczkowiak. *Arbeiten an einem Drei-Farben-Resonator zur Erzeugung von Strahlung bei Lyman- α* . Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2011.
- [173] R. F. Cregan, B. J. Mangan, J. C. Knight, T. A. Birks, P. St. J. Russell, P. J. Roberts, and D. C. Allan. Single-mode photonic band gap guidance of light in air. *Science*, 285(5433):1537–1539, 1999.

-
- [174] F. Benabid. Hollow-core photonic bandgap fibre: new light guidance for new science and technology. *Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. A*, 364(1849):3439–3462, 2006.
- [175] F. Couny, F. Benabid, P. J. Roberts, P. S. Light, and M. G. Raymer. Generation and photonic guidance of multi-octave optical-frequency combs. *Science*, 318(5853):1118–1121, 2007.
- [176] S.-J. Im, A. Husakou, and J. Herrmann. Guiding properties and dispersion control of kagome lattice hollow-core photonic crystal fibers. *Opt. Express*, 17(15):13050–13058, 2009.
- [177] J. C. Travers, W. Chang, J. Nold, N. Y. Joly, and P. St. J. Russell. Ultrafast nonlinear optics in gas-filled hollow-core photonic crystal fibers. *J. Opt. Soc. Am. B*, 28(12):A11–A26, 2011.
- [178] S.-J. Im. Micro-joule sub-10-fs VUV pulse generation by MW pump pulse using highly efficient chirped-four-wave mixing in hollow-core photonic crystal fibers. *ArXiv e-prints*, 2013, 1306.5067.
- [179] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric. *Phys. Rev.*, 127(6):1918–1939, 1962.
- [180] S. E. Harris, J. E. Field, and A. Imamoglu. Nonlinear optical processes using electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, 64:1107–1110, 1990.
- [181] B. Henrich. *Untersuchung elektromagnetisch induzierter Transparenz für das kontinuierliche Vier-Wellen-Mischen*. Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2005.
- [182] K. D. Bonin and T. J. McIlrath. Two-photon electric-dipole selection rules. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1(1):52–55, 1984.
- [183] M. Auzinsh, D. Budker, and S. Rochester. *Optically Polarized Atoms: Understanding Light-atom Interactions*. OUP Oxford, 2010.
- [184] R. Irrgang, M. Drescher, F. Gierschner, M. Spieweck, and U. Heinzmann. A laser light source for circularly polarized VUV radiation. *Meas. Sci. Technol.*, 9(3):422, 1998.
- [185] V. Chandrasekharan and H. Damany. Anomalous dispersion of birefringence of sapphire and magnesium fluoride in the vacuum ultraviolet. *Appl. Opt.*, 8(3):671–675, 1969.

- [186] M. E. Wieser, N. Holden, T. B. Coplen, J. K. Böhlke, M. Berglund, W. A. Brand, P. De Bièvre, M. Gröning, R. D. Loss, J. Meija, T. Hirata, T. Prohaska, R. Schoenberg, G. O'Connor, T. Walczyk, S. Yoneda, and X.-K. Zhu. Atomic weights of the elements 2011 (IUPAC Technical Report). *Pure Appl. Chem.*, 85:1047–1078, 2013.
- [187] P. J. Mohr, B. N. Taylor, and D. B. Newell. CODATA recommended values of the fundamental physical constants: 2010. *Rev. Mod. Phys.*, 84:1527–1605, 2012.
- [188] C. E. Moore. *Atomic energy levels as derived from the analyses of optical spectra volume III*. NSRDS national standard reference data system, 1971.
- [189] M. G. Zadnik, S. Specht, and F. Begemann. Revised isotopic composition of terrestrial mercury. *Int. J. Mass Spectrom.*, 89(1):103–110, 1989.
- [190] Jr. W. G. Schweitzer. Hyperfine structure and isotope shifts in the 2537 Å line of mercury by a new interferometric method. *J. Opt. Soc. Am.*, 53(9):1055–1072, 1963.
- [191] S. Gerstenkorn and J. Vergès. Interprétation des déplacements isotopiques pairs-impairs anormaux dans le spectre d'arc du mercure. *J. Phys.*, 36(6):481–486, 1975.
- [192] S. Gerstenkorn, J. J. Labarthe, and J. Vergès. Fine and hyperfine structures and isotope shifts in the arc spectrum of mercury. *Phys. Scripta*, 15(3):167–172, 1977.
- [193] E. B. Saloman. A resonance ionization spectroscopy/resonance ionization mass spectrometry data service. II-data sheets for Al, Ca, Cs, Cr, Co, Cu, Kr, Mg, Hg and Ni. *Spectrochim. Acta B*, 46(3):319 – 378, 1991.
- [194] E. D. Palik. *Handbook of optical constants of solids*. Academic Press handbook series. Elsevier Science, 1998.
- [195] M. J. Dodge. Refractive properties of magnesium fluoride. *Appl. Opt.*, 23(12):1980–1985, 1984.
- [196] V. Weisskopf and E. Wigner. Berechnung der natürlichen Linienbreite auf Grund der Diracschen Lichttheorie. *Z. Phys. A*, 63(1-2):54–73, 1930.
- [197] F. Schreier. Comments on „A Common Misunderstanding about the Voigt Line Profile“. *J. Atmos. Sci.*, 66:1860–1864, 2009.
- [198] K. Shimoda and N. Bloembergen. *High-resolution laser spectroscopy*. Topics in applied physics. Springer-Verlag, 1976.

DANKSAGUNG

Abschließend möchte ich hier allen danken, die mich während dieser Arbeit 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 26. Februar 2014

Andreas Koglbauer

