

Erzeugung vakuumultravioletter Strahlung für die Rydberganregung von Calciumionen

Dissertation zur Erlangung des Grades
„Doktor der Naturwissenschaften“

am Fachbereich Physik, Mathematik und Informatik
der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz



von
Patrick Bachor
geboren in Mülheim a.d. Ruhr

Mainz, den 18.12.2017

1. Gutachter:

2. Gutachter:

Tag der mündlichen Prüfung: 11.12.2018

ZUSAMMENFASSUNG

Im Rahmen der vorliegenden Dissertation gelang es erstmalig ein gespeichertes $^{40}\text{Ca}^+$ -Ion in einen Rydberg-Zustand ($n > 50$) anzuregen. Um diesen Übergang mit einem Photon aus einem der metastabilen $3D$ -Zustände des Calcium treiben zu können, wird ein kohärentes Lichtfeld mit einer Wellenlänge aus dem ultravioletten-Spektrum (122 nm - 123 nm) benötigt.

Ein Hauptteil dieser Arbeit befasst sich mit der Verbesserung des VUV-Lasersystems zur Erzeugung eben dieser kurzwelligen Strahlung. So wurde für die drei fundamentalen Lichtfelder, aus denen sich das VUV-Lasersystem zusammensetzt, eine aktive Frequenzstabilisierung implementiert. Außerdem konnte die VUV-Leistung zu vorherigen experimentellen Ergebnissen deutlich gesteigert werden.

Es wurde zudem ein neues Lasersystem mit einer Emissionswellenlänge um 580 nm entwickelt und in das VUV-Lasersystem integriert. Somit ist es nun möglich, auch kohärente Lichtfelder bei einer Wellenlänge um 123 nm zu erzeugen.

Um überdies die VUV-Strahlformung zu verbessern, wurde ein neues Teleskop entwickelt. So ist es nun zum Einen möglich, den VUV-Fokus am Ort der Ionen auf $\approx 10\text{ }\mu\text{m}$ zu verringern und damit eine deutlich höhere Anregungsrate zu erreichen. Zum Anderen wurde das Überlagern des VUV-Strahls mit den gefangenen Ionen verbessert.

In der Zeit der Dissertation wurden drei verschiedene Paul-Fallen für den Einschluss der $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen verwendet. In dieser Arbeit wird die erste in der dritten Falle detektierte Rydberganregung gezeigt. Die erfolgreiche Verbesserung am VUV-Lasersystem wird bei dieser Rydberganregung durch die um einen Faktor 75 höhere Anregungsrate deutlich.

Als Ergebnis dieser Arbeit konnten die Rydberg-Resonanzen $22F$, $52F$, $53F$ und $66F$ nachgewiesen werden. Die Anregungswellenlängen dieser Resonanzen wurden zu $(3D_{5/2} \rightarrow 22F) : 123,256119(5)\text{ nm}$, $(3D_{3/2} \rightarrow 52F) : 122,041913(5)\text{ nm}$, $(3D_{3/2} \rightarrow 53F) : 122,032384(10)\text{ nm}$ und $(3D_{5/2} \rightarrow 66F) : 122,04050(5)\text{ nm}$ bestimmt. Darüber hinaus wurde die Auswirkung des elektrischen Fallenfeldes auf die Rydberg-Ionen untersucht und es konnten komplexere Techniken wie die Anregung einzelner Ionen aus einer Ionenkette realisiert werden.

SUMMARY

In the context of this dissertation, Rydberg excitation ($n > 50$) of $^{40}\text{Ca}^+$ -ions were detected for the first time. For the excitation of the calcium ion with one photon starting from a $3D$ metastable state, a coherent light field with a wavelength in the vacuum-ultraviolet spectrum (122 nm - 123 nm) is needed.

The main part of my work was the improvement of the VUV-lightsource, which generates the required high energy photons. This VUV-lightsource is composed of three individual laser systems. One improvement was the implementation of an active frequency stabilization in each of these laser systems. Furthermore, the power of the generated VUV-light could be enhanced.

In addition, a new lasersystem with an emission wavelength of 580 nm was developed and implemented in the VUV-laser system. Thus, the generation of coherent light with a wavelength near 123 nm is now feasible.

As an improvement in the VUV-beam shaping, a new telescope was implemented in the setup. Thus, a smaller focal size ($\approx 10 \mu\text{m}$) of the VUV-beam at the position of the ion is achieved. This leads to more accurate beam adjustment. During the time of my dissertation, three different traps were used for the execution of the experiment. In this thesis, the first measurement of Rydberg excitation performed in the latest trap has also been shown. By comparing this measurement with the previous measurements, we get a factor of 75 higher excitation rate. We conclude that the improvement of the VUV-laser system was successful.

As result of this thesis, we could establish Rydberg excitation to the $22F$, $52F$, $53F$ and $66F$ states. The wavelengths of these transitions are ($3D_{5/2} \rightarrow 22F$) : 123.256119(5) nm, ($3D_{3/2} \rightarrow 52F$) : 122.041913(5) nm, ($3D_{3/2} \rightarrow 53F$) : 122.032384(10) nm and ($3D_{5/2} \rightarrow 66F$) : 122.04050(5) nm. Also, we investigated the interaction of the Rydberg ion with the trapping field and we implemented more complex techniques like Rydberg excitation of an single ion out of an ion string.

INHALTSVERZEICHNIS

Inhaltsverzeichnis	ix
1 Einleitung	1
2 Theoretische Grundlagen	9
2.1 Rydberg-Atome und -Ionen	9
2.1.1 Ionen in einer Paul-Falle	11
2.1.2 Rydberg-Ionen in einer Paul-Falle	14
2.2 Eigenschaften von $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen	17
2.3 Erzeugung kohärenter VUV-Strahlung	20
2.3.1 Vierwellen-Summenfrequenzmischen in Quecksilber	20
2.3.2 Frequenzverdopplung	33
3 Experimenteller Aufbau der VUV-Laserquelle	39
3.1 Lasersystem für Strahlung bei 254 nm Wellenlänge	41
3.1.1 Laserdiode mit einer Wellenlänge um 1015 nm	43
3.1.2 Trapezverstärker für Licht einer Wellenlänge um 1015 nm	47
3.1.3 Kryogener Faserverstärker für Licht mit einer Wellenlänge um 1015 nm	47
3.1.4 Erste Stufe der Frequenzverdopplung (1015 nm $\rightarrow$ 508 nm)	50
3.1.5 Zweite Stufe der Frequenzverdopplung (508 nm $\rightarrow$ 254 nm)	51
3.2 Lasersystem für Strahlung bei 408 nm Wellenlänge	52
3.2.1 Ti:Sa-Laser bei einer Wellenlänge um 815 nm	53
3.2.2 Frequenzverdopplung (815 nm $\rightarrow$ 408 nm)	54
3.3 Lasersystem für Strahlung bei 555 nm Wellenlänge	54
3.3.1 Laserdiode mit einer Wellenlänge von 1110 nm	55
3.3.2 Faserverstärkersystem für Licht mit einer Wellenlänge um 1110 nm	57
3.3.3 Frequenzverdopplung (1110 nm $\rightarrow$ 555 nm)	57
3.4 Lasersystem für Strahlung bei 580 nm Wellenlänge	58
3.4.1 Aufbau High-Powerdioden	59
3.4.2 Verstärkung in einem Trapezverstärker	61
3.4.3 Frequenzverdopplung im Resonator	62
3.5 Frequenzstabilisierung der Lasersysteme	66
3.5.1 Aufbau der aktiven Stabilisierung	66
3.5.2 Linienbreitenmessung mit self-heterodyner Messung . . .	69
3.5.3 Frequenzverstimmung des VUV-Lasersystems	77

3.6	Vierwellen-Mischen in Quecksilberdampf	78
3.6.1	Strahlformung der fundamentalen Lichtfelder	80
3.6.2	Effizienzmessung	84
3.7	Fokussierung der kohärenten VUV-Strahlung	92
3.7.1	Sphärische Aberration	92
3.7.2	Kantenmessung des VUV-Strahls	95
4	Experimenteller Aufbau der Ionenfallen	99
4.1	Vakuumkammer für Paul-Falle	100
4.2	Verwendete Fallen	102
4.2.1	Lineare Stabfalle (F1)	103
4.2.2	Lineare segmentierte Mikrofalle (F2)	104
4.2.3	Lineare segmentierte Mikrofalle mit mehreren Zonen (F3)	105
4.3	Lasersysteme für die Ionenkontrolle	108
4.3.1	Lasersystem für Ionisation	108
4.3.2	Lasersystem für Ionen-Kühlung	109
4.3.3	Lasersystem für Initialisierung der Ionen	111
5	Rydberganregung gespeicherter $^{40}\text{Ca}^+$-Ionen	113
5.1	Rydberg-Zustände 52F, 53F und 66F	113
5.2	Rydberg-Zustand 22F	117
5.2.1	Rydberganregung aus einzelnen Zeeman-Niveaus	117
5.2.2	Selektive Einzelionen-Anregung	121
5.3	Quantendefekt und Hauptquantenzahlen	125
5.3.1	Zuordnung der Rydberg-Niveaus	126
5.4	Anregungsraten	128
5.5	Linienmodell	130
5.6	Rydberganregung in der neuen Falle (F3)	134
6	Ausblick	137
6.1	Kohärente Rydberganregung mit VUV-Licht	137
6.1.1	Verringerung der Linienbreiten	138
6.1.2	Verringerung der VUV-Fokusgröße	138
6.1.3	Überlagerung der fundamentalen Lichtfelder	140
6.1.4	Das VUV-Lichtfeld schalten	140
6.1.5	Optimierung der self-heterodyne Messmethode	141
6.2	Spektroskopie der Rydberg <i>P</i> -Linien	142
6.3	Digitaler Fallenantrieb	143
6.4	Zwei-Photon Rydberganregung	144
A	Leistungssteigerung der fundamentalen Lichtfelder	147
B	Revidierung der zugeordneten Hauptquantenzahlen	149
C	Materialdaten	151
C.1	Weitere Details über $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen	151
C.1.1	Energieniveaus $^{40}\text{Ca}^+$	151
C.1.2	Lebensauer von $^{40}\text{Ca}^+$	151

C.1.3	Quantendefekte von $^{40}\text{Ca}^+$	151
C.2	Weitere Details zu Quecksilber	152
C.2.1	Übergangsfrequenzen und Oszillatorstärken	152
C.2.2	Hyperfeinstruktur- und Isotopieverschiebung	152
C.2.3	Dampfdruck von Quecksilber	154
C.3	Brechungsindizes für MgF_2	155
D	Konstruktionszeichnungen	157
	Literaturverzeichnis	167

EINLEITUNG

In den vergangenen Jahren hat sich das Forschungsgebiet der Rydbergphysik stark entwickelt und es erhält vor allem in der Quanteninformationstechnik immer mehr Aufmerksamkeit [1,2]. Dieses große Interesse liegt vor allem an den einzigartigen Eigenschaften von Rydberg-Atomen, bei denen ein Elektron einen Zustand mit einer hohen Hauptquantenzahl einnimmt. Zu erwähnen wären die langen Lebensdauern ($\tau \propto n^3$) sowie die große Polarisierbarkeit ($\alpha \propto n^7$) und damit Sensitivität gegenüber elektrischen Feldern [3].

Dabei liegt der Fokus heutiger Forschung besonders auf der starken Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen mehreren Rydberg-Atomen sowie die daraus resultierende Möglichkeit der Durchführung von Verschränkungen [4,5] und die Realisierung von Quantengattern [6].

Um die außergewöhnliche Wechselwirkung zu verdeutlichen, ist in Abbildung 1.1 die Wechselwirkungsenergie zwischen zwei Atomen gegenüber deren Abstand ausgeführt. Betrachtet man zwei Atome im Grundzustand, dann überwiegt in dem hier betrachteten Abstand ($R > 1 \mu\text{m}$), die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung ($1/R^3$ -Abhängigkeit, blaue Kurve) gegenüber der Van-

der-Waals-Wechselwirkung ($1/R^6$ -Abhängigkeit, violette Kurve). Allerdings sind hierbei die Wechselwirkungsenergien vernachlässigbar ($\ll \text{Hz}$). Werden beide Atome nun in einen Rydberg-Zustand angeregt, dann erhöht sich die Wechselwirkungsenergie um bis zu 12 Größenordnungen. Bei sehr geringem Abstand R beider Atome weist die Wechselwirkungsenergie dann einen Dipol-Dipol-Charakter ($1/R^3$) auf, wobei sie bei einem großen Abstand nur noch wie die Van-der-Waals-Wechselwirkung ($1/R^6$) skaliert (rote Kurve). Somit werden extrem große Wechselwirkungsenergien erreicht.

Die Einzigartigkeit hierbei liegt aber an der Möglichkeit, diese starke Wechselwirkung schalten zu können. Ein prominentes Beispiel bei dem diese zustandsabhängige Wechselwirkung eine Anwendung findet, ist die Rydberg- oder Dipolblockade [7,8]. Dabei verhindert die von einem Rydberg-Atom induzierte Energieverschiebung bei einem im Blockaderadius befindlichen Atom, eine Rydberganregung unter Verwendung eines Lichtfeldes das zum ursprünglichen Rydberg-Übergang resonant ist (siehe Abbildung 1.2). Dieser Mechanismus findet bei der Implementierung des CNOT-Gatters (controlled-not) Anwendung [9], wel-

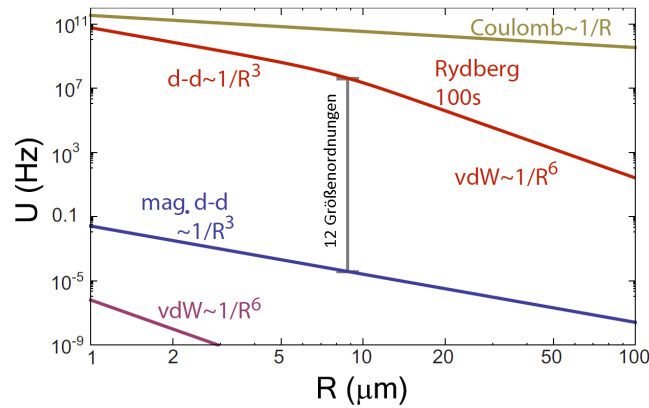


Abbildung 1.1: Wechselwirkungsenergie eines Zweikörpersystems. Hierbei wurde die Wechselwirkungsenergie verschiedenen Systeme, gegenüber dem Abstand der beteiligten Teilchen aufgetragen. Dabei ist die Wechselwirkungsenergie zwischen zwei Ionen durch die Coulomb-Wechselwirkung gegeben (braun), die Wechselwirkung zweier Rubidium-Atome im Rydberg-Zustand ($n = 100$) durch die Dipol-Dipol-Wechselwirkung (rot) und bei zwei Rubidium-Atomen im Grundzustand durch die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung (blau) sowie die Van-der-Waals-Wechselwirkung (violett). Bild aus [1].

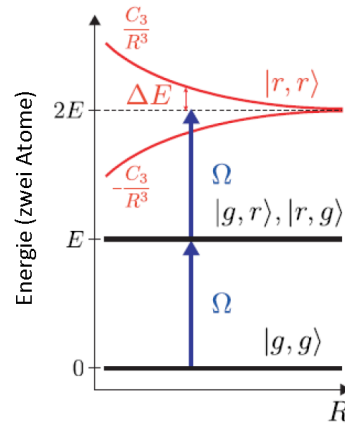


Abbildung 1.2: Prinzip des Rydbergblockademechanismus. In der Abbildung a) ist die Energie des zwei Atom-Systems, gegenüber des Abstands R der beiden Atome aufgetragen. Hier wird deutlich, dass die Energie des Systems in dem Fall, dass beide Atome im Rydbergzustand sind $|r, r\rangle$, eine Verschiebung erfährt wenn der Abstand verringert wird. Die Rabi-Frequenz ist durch Ω gegeben. Bild aus [8] (übersetzt).

ches zusammen mit Einzelqubit-Operationen wie beispielsweise dem Hadamard-Gatter, ein universellen Satz an Quantengatter bildet. Der universelle Satz an Quantengatter ist wiederum die Grundlage für die Entwicklung eines universellen Quantencomputers, da es somit möglich wird jede Quantenoperationen auszuführen.

Ein anderes sehr interessantes Quantensystem kann mit kalten gespeicherten

Ionenkristallen realisiert werden. Schon im Jahre 1995 haben Cirac und Zoller vorgeschlagen, dass sich gespeicherte Ionen für die Realisierung eines Quantencomputer eignen [10]. In den folgenden Jahren konnte mit dem System aus kalten Ionen, Quanten-Gatter wie das CNOT-Gatter erfolgreich umgesetzt werden [11,12].

Dabei wird die Quanteninformation in langlebigen elektronischen Zuständen des Ions gespeichert. Diese Zustände bilden das benötigte Qubit und können durch Laserstrahlung sowohl sehr effizient initialisiert als auch ausgelesen werden. Dabei wird es durch die gute Lokalisierung der Ionen sowie deren Abstand von einigen μm möglich, einzelne Ionen mit der Laserstrahlung zu adressieren. Durch die zwischen den Ionen auftretende Coulomb-Wechselwirkung, schwingen die Ionen nicht unabhängig voneinander in der Falle. Die Ionen im Ionenkristall besitzen eine gemeinsame Bewegungsmode. Diese kann ebenfalls durch Laserstrahlung angeregt werden, und so können gezielte Wechselwirkungen zwischen den Qubits implementiert werden.

Rydberg-Ionen

Ein neuer und vielversprechender Ansatz ist die Verknüpfung der erwähnten Eigenschaften von Rydberg-Atomen, mit dem gut kontrollierbaren Quantensystem von gespeicherten Ionen. Werden gespeicherte kalte Ionen in ein Rydberg-Zustand angeregt, erhält man ein System, bei dem die Ionen eine langreichweitige Dipol-Wechselwirkung und eine große Polarisierbarkeit aufweisen, kombiniert mit der guten Kontrollierbarkeit einzelner Ionen. Im Jahr 2008 zeigte Müller et al., dass es theoretisch möglich ist, Rydberg-Ionen in einer linearen Paul-Falle einzuschließen. Zudem stellten sie ein theoretisches Modell auf, mit dem das Verhalten von Rydberg-Ionen in einer Paul-Falle beschrieben werden kann [13]. Dabei wird das Rydberg-Ion nicht mehr als einzelnes Teilchen, sondern als ein zusammengesetztes System aus einem zweifach positiv geladenem Kern sowie einem Elektron betrachtet. So entsteht in dem elektrischen Feld der Falle eine Kopplung zwischen den elektronischen und externen Freiheitsgraden und damit letztendlich zu zustandsabhängigen Fallen-Frequenzen. Eine für weiterführende Experimente sehr vielversprechende Konsequenz ist das durch ein Rydberg-Ion veränderte Fallen-Potential. Zudem unterscheiden sich die Rydberg-Ionen von neutralen Atomen durch die auftretende Wechselwirkung. Bei gespeicherten Rydberg-Ionen setzt sich diese aus Ladungs-Ladungs-, Quadrupol-Ladungs- sowie der Dipol-Dipol-Wechselwirkung zusammen.

Im folgenden sollen weiterführende Motivationen unseres Experimentes sowie die experimentelle Umsetzung der ersten Rydberganregung von Ionen beschrieben werden.

Dipol-Dipol-Wechselwirkung für die Rydbergblockade

Bedingt durch die komplexer werdende Modenstruktur in einem großen Ionenkristalle gestaltet sich die Skalierbarkeit der herkömmlichen Gatter auf viele Ionen als sehr schwierig. Zudem sind diese Gatter vergleichsweise langsam, da die Geschwindigkeit mit der Fallenfrequenz zusammenhängt. Unter Verwendung

der Rydbergblockade sollte die Realisierung von schnelleren Quanten-Gatter als auch größeren Systemen möglich sein [14].

Da Rydberg-Ionen allerdings kein permanentes Dipol aufweisen und zudem im Vergleich zu neutralen Rydberg-Atomen eine deutlich schwächere Van-der-Waals-Wechselwirkung ($\propto 1/Z^6$, $Z=+2$ für Ionen) zeigen, ist die Wechselwirkungsenergie bei Abständen um $5\text{ }\mu\text{m}$ zu klein $V/2\pi < 20\text{ kHz}$, um damit eine Rydbergblockade für praktisch erreichbare Hauptquantenzahlen n realisieren zu können.

Um trotzdem eine starke Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen einzelnen Ionen realisieren zu können, kann ein Rydberg nP -Zustand durch ein Mikrowellenfeld an ein nS -Zustand gekoppelt werden [14]. Die somit erzeugten gekoppelten Zustände besitzen einen rotierenden permanenten Dipol, und führen so zu Wechselwirkungsenergien im Bereich von $> \text{MHz}$. Dies eröffnet die Möglichkeit Mehr-Ionen Quantengatter mit gespeicherten Rydberg-Ionen, und somit schnelle und skalierbare Quantenprozesse zu realisieren. Die ebenfalls für Quantenprozesse benötigte kohärente Rydberganregung sowie Einzel-Ionen Phasen-Gatter wurden bereits experimentell realisiert [15].

Eine weitere Möglichkeit der Mikrowellenkopplung kommt aus der Tatsache, dass die Polarisierbarkeit des S -Zustandes ein zum P -Zustand verschiedenes Vorzeichen besitzt. So kann durch anpassen der Mikrowelle eine verschwindende Polarisierbarkeit eingestellt werden. Da die Polarisierung P_G des gekoppelten Systems durch $P_G \propto C^2 P_{nP} + P_{nS}$ gegeben ist, wird die Polarisierbarkeit durch Wahl von $C \approx 0,68$ verschwinden [14]. Somit wird das Fallenpotential des Rydberg-Ion identisch zu einem Ion im Grundzustand. Zudem können Linienverbreiterungen durch den Stark-Effekt vernachlässigt werden. Dies wurde bereits von Hennrich et al. experimentell nachgewiesen [16].

Modentrennung durch Rydberg-Ionen

Wie schon im vorherigen Abschnitt erwähnt wurde, werden die gekoppelten Bewegungsmoden bei vielen Ionen in der Paul-Falle sehr komplex und können nicht mehr aufgelöst werden. Dies hat zur Folge, dass die für einen Quantencomputer benötigte Skalierbarkeit der Qubits schwierig ist.

Eine Idee dieses Problem zu umgehen wäre die Modenstruktur durch Störstellen zu vereinfachen. Dafür wurde von Li et al. 2013 vorgeschlagen, Rydberg-Ionen als Störstellen in die Ionenkette einzubringen [17]. Sie zeigen, dass sich durch das zustandsabhängige Potential der Rydberg-Ionen lokale Moden zwischen zwei Rydberg-Ionen einstellen (siehe Abbildung 1.3). Die Ionen in den Subkristallen sehen vollständig unabhängige Potentiale. Da mehrere Subkristalle ebenfalls unabhängig voneinander sind wird eine parallel Durchführung verschiedener Quantenprozesse auf den jeweiligen Subkristallen ermöglicht. Zudem ist es durch die kontrollierbare Rydberganregung möglich, die Subkristalle beliebig zu erzeugen und zu verändern.

Diese Idee kann auch auf 2-dimensionale Ionenkristalle erweitert werden [18]. Das in einem 2-dimensionalen Ionenkristall angeregte Rydberg-Ion erzeugt jeweils lokalisierte Moden für die 6 in einem Hexagon um das Rydberg-Ionen angeordneten Ionen.

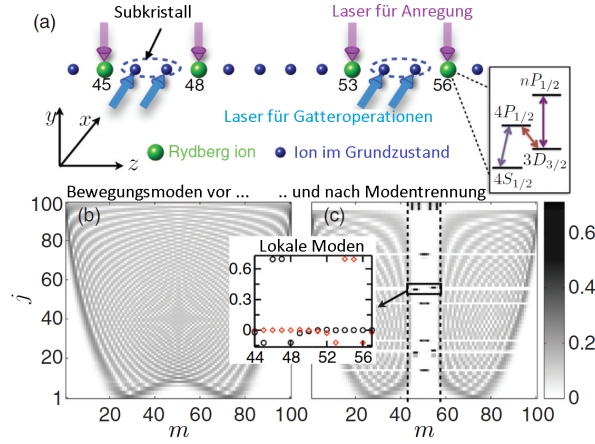


Abbildung 1.3: Modentrennung in einer langen Ionenkette. a) Es wird eine Ionenkette, bestehend aus 100 Ionen betrachtet. Durch die Rydberg-Ionen werden einzelne Subkristalle erzeugt. b+c) Hier ist das Ion m , gegenüber dem Modenindex j aufgetragen. In b) wird deutlich dass ohne die Rydberg-Ionen die berechnete Modenstruktur sehr komplex wird. Durch die Rydberg-Ionen wird in c) die Modenstruktur drastisch verändert, und es bilden sich unabhängige Moden zwischen den Rydberg-Ionen aus. Bild aus [17] (übersetzt).

Phasenübergänge in Ionen-Kristallen

Durch Rydberg-Ionen erhält man zudem die neue Möglichkeit, strukturelle Phasenübergänge gezielt zu untersuchen [19]. Betrachtet man einen Ionenkristall bestehend aus 3 Ionen, der nahe an dem Punkt für einen Phasenübergang gespeichert wird, dann führt das von einem Rydberg-Ion erzeugte zustandsabhängige Potential zu einem Übergang von einem linearen zu einem Zig-Zag Kristall und umgekehrt.

Rydberganregung von Calcium-Ionen

Der erste Vorschlag für eine experimentelle Realisierung von Rydberg-Ionen in einer Paul-Falle wurde im Jahre 2011 von Schmidt-Kaler et al. gemacht [20]. Somit wurde das Experiment entwickelt welches in dieser Arbeit behandelt wird. Dabei verwenden wir in einer linearen Paul-Falle eingeschlossene Calcium-Ionen, die wir in Rydberg-Zustände $n > 50$ anregen. Der von uns dabei verfolgte Ansatz ist eine Ein-Photon-Anregung aus einem der metastabilen $3D$ -Zustände in Calcium. Wegen des zweifach-positiv geladenen Kerns ist die Bindungsenergie des Valenzelektron in einem Rydberg-Ion größer als bei einem neutralen Rydberg-Atom, und so wird für die Ein-Photon Anregung ein kohärentes Lichtfeld aus dem vakuum-ultravioletten Spektrum (VUV) mit einer Wellenlänge um 122 nm - 123 nm benötigt.

In der Gruppe um M. Hennrich wurde 2015 ein weiteres Experiment entwickelt bei dem an gespeicherten Rydberg-Strontiumionen geforscht wird [21,22]. In diesem Experiment wird der alternative Ansatz mit einer Zwei-Photonen An-

regung verfolgt. Die benötigten Lichtfelder besitzen hierbei Wellenlängen um 243 nm und 305 nm-310 nm.

Erzeugung kohärenter VUV-Strahlung

Die Erzeugung von kohärenter Strahlung im vakuum-ultravioletten Bereich des elektromagnetischen Spektrums ist durch konventionellen Methoden nicht möglich, da keine geeigneten Lasermedien für diese Wellenlängen existieren. Auch die weit verbreitete Methode der Frequenzverdopplung scheitert an der Verfügbarkeit von Kristallen, die eine starke Absorption bei Licht im vakuum-ultravioletten Spektralbereich aufweisen und bei denen Phasenanpassung möglich ist.

Aus diesen Gründen werden für die Erzeugung von VUV-Strahlung nichtlineare Prozesse verwendet. Eine etablierte Methode dafür ist die nichtlineare Frequenzkonversion dritter Ordnung in Edelgasen und Metalledämpfen. So wurden bereits gepulste Lasersysteme entwickelt, mit denen kohärente Lichtfelder mit Wellenlängen um 120 nm-123 nm, und Leistungen im Kilowatt-Bereich bei Pulsdauern im Nanosekundenbereich erzeugt wurden [23–25]. Bei gepulsten Lichtfeldern ist jedoch die spektrale Linienbreite durch das Fourierlimit begrenzt, was in etwa der inversen Pulsdauer entspricht. Somit würden kohärenten Rydberganregungen, bedingt durch die große Linienbreite, eine große Herausforderung darstellen. Des weiteren erschwert der Pulsbetrieb die Durchführung von Messesequenzen sowie Quantengatter-Operation, die alle mit den Laserpulsen synchronisiert werden müssten. Somit wird ein Lasersystem benötigt, dass kohärente VUV-Strahlung im Dauerstrichbetrieb erzeugt.

Im Jahre 1999 konnten Eikema et al. erstmals eine kohärente kontinuierliche Laserquelle mit einer Emissionswellenlänge von 121,56 nm sowie einer Ausgangsleistung von 0,5 nW realisieren [26,27]. Ursprünglich wurde dieses VUV-Lasersystem für das Kühlen von Wasserstoff sowie Antiwasserstoff entwickelt. Diesen Ansatz verfolgend, wurden in unserer Arbeitsgruppe in den darauf folgenden Jahren viele Verbesserungen an dem Systems vorgenommen [28–42]. Die VUV-Leistung konnte so auf $> 1 \mu\text{W}$ bei einer Emissionswellenlänge von 121,3 nm gesteigert werden. In der Abbildung 1.4 ist ein reduziertes Termschema dargestellt, in dem der verwendete Vierwellenmischprozess dargestellt ist. Mit dem dritten fundamentalen Lichtfeld wurde bisher die 12^1P -Resonanz in Quecksilber ausgenutzt ($\approx 540 \text{ nm} - 545 \text{ nm}$), da für die Kühlung von (Anti-)Wasserstoff ein Lichtfeld bei einer Wellenlänge von 121,56 nm (Lyman- α) benötigt wurde. Dieses zu kurzwellige Licht, kann jedoch nicht für die Rydberganregung von $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen verwendet werden. Durch ausnutzen des 10^1P - bzw. des 11^1P -Niveaus in Quecksilber werden jedoch Wellenlängen um 122 nm-123 nm erreicht, die für Rydberganregung von Calcium-Ionen verwendet werden können.

Inhalt dieser Arbeit

Das Ergebnis dieser Arbeit ist die erste, jemals durchgeführte Rydberganregung eines gespeicherten $^{40}\text{Ca}^+$ -Ion. Dazu wurde das bestehende VUV-Lasersystem

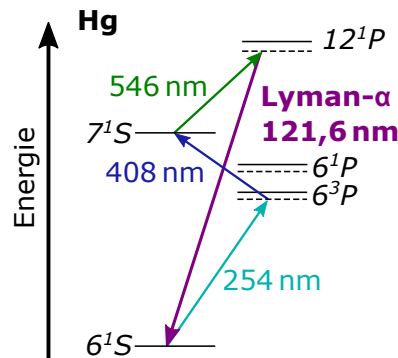


Abbildung 1.4: Vierwellenmischen in Quecksilber. Es ist ein auf die interessanten Energieniveaus reduziertes Termschema von Quecksilber gezeigt. Um Licht bei einer Wellenlänge um 121,56 nm (Lyman- α) zu erzeugen, wird resonantes Summenfrequenzmischen angewendet. Die dabei verwendeten kontinuierlichen Lichtfelder haben Wellenlängen von 254 nm, 408 nm und 545 nm.

weiterentwickelt und angepasst, um ein starkes kontinuierliches und kohärentes Lichtfeld mit einer Wellenlänge um 122 nm-123 nm zu erzeugen.

Dieses VUV-Lasersystem wurde mit dem Aufbau einer linearen Paul-Falle verbunden in dem die kalten Calcium-Ionen eingeschlossen wurden. Wir konnten einzelne Ionen gezielt adressieren und in Rydberg-Zustände mit einer Hauptquantenzahl von $n = 22, 52, 53, 66$ anregen. Damit eröffnet unsere Arbeit die neue Möglichkeit, starken Dipol-Dipol-Wechselwirkung sowie zustandsabhängige Fallenfelder mit der guten Kontrollierbarkeit gespeicherter Ionen zu kombinieren.

In Kapitel 2 werden die theoretischen Grundlagen für Rydberg-Atome im Allgemeinen sowie Rydberg-Ionen in einer Paul-Falle zusammengetragen. Zudem soll ein kurzer Überblick über das Vierwellen-Summenfrequenzmischen in Quecksilber, sowie eine Modellrechnung für die Abschätzung der VUV-Mischeffizienz gegeben werden. In Kapitel 3 wird der Aufbau des VUV-Lasersystems vorgestellt, wohingegen in Kapitel 4 ein kurzer Überblick über die verwendeten Ionenfallen gegeben wird. In Kapitel 5 werden die Ergebnisse der Rydberganregungen vorgestellt und diskutiert. Abschließend werden in Kapitel 6 mögliche Verbesserungen und Zukunftsperspektiven für das Experiment diskutiert.

THEORETISCHE GRUNDLAGEN

Sowohl der Einschluss von Rydberg-Ionen in einer Paul-Falle, als auch die Erzeugung kohärenter Strahlung mit einer Wellenlänge aus dem vakuum-ultravioletten (VUV) Spektrum, sind sehr spezielle Herausforderungen. In diesem Abschnitt soll ein kurzer Überblick über die benötigten physikalischen Grundlagen sowie die benötigte Theorie gegeben werden.

Dieses Kapitel ist in zwei Abschnitte eingeteilt, wobei zuerst einen Überblick über die Eigenschaften von Rydberg-Atomen, sowie das Verhalten von Rydberg-Ionen in einer elektromagnetischen Falle gegeben wird. Der zweite Abschnitt geht auf die theoretischen Grundlagen des Summenfrequenzmischen ein, welches für die Erzeugung des VUV-Lichtfeldes benötigt wird.

2.1 Rydberg-Atome und -Ionen

Wird ein Valenzelektron eines Atoms in einen Zustand mit hoher Hauptquantenzahl n angeregt, dann nennt man dieses Atom ein Rydberg-Atom [3]. Ein Rydberg-Atom weist gegenüber dem Grundzustands Atom einige außergewöhnliche Eigenschaften auf [3,8,43,44]. Zu erwähnen sind

- der makroskopische Radius eines Rydberg-Atoms und damit das großes Dipolmoment ($\propto n^2$),
- die kleine Bindungsenergie des Valenzelektrons ($\propto n^{-2}$),
- die lange Lebensdauer ($\propto n^3$),
- der geringe Energieabstand benachbarter Zustände ($\propto n^{-3}$),
- das große Dipolmatrixelement bezüglich zwei benachbarter Zustände ($\propto n^2$) und
- die große Polarisierbarkeit und damit Sensitivität gegenüber elektrischen Feldern ($\propto n^7$).

Alkalimetalle befinden sich in der ersten Hauptgruppe des Periodensystems und zeichnen sich dadurch aus, dass sie ein Valenzelektron besitzen und dass

die übrigen Elektronen geschlossene Schalen bilden. Bei einem solchen Element kann das Atom im Rydberg-Zustand wie ein Wasserstoffatom behandelt werden. Durch die verbliebenen Elektronen in der Nähe des Kern wird die Kernladung abgeschirmt. Für Drehimpulsquantenzahlen $l > 0$ ist zudem die Aufenthaltswahrscheinlichkeit in Kernnähe gering, sodass sich das effektive Potential durch ein Coulomb Potential $V(r) \propto 1/r$ beschreiben lässt. Damit nimmt das Valenzelektron ein Potential wahr, welches mit dem eines einfach geladenen Wasserstoffkerns vergleichbar ist. Analog zum Wasserstoffatom kann die Wellenfunktion des Rydberg-Atoms über einen Separationsansatz näherungsweise beschrieben werden. Somit wird

$$\Psi(nlm) = R_{nl}(r)Y_{lm}(\Theta, \Phi), \quad (2.1)$$

in Winkel- ($Y(\Theta, \Phi)$) und Radialanteil ($R(r)$) zerlegt [43]. Setzt man das in die zeitunabhängige Schrödinger Gleichung ein bekommt man ein Ausdruck mit zwei Termen die jeweils nur von R respektive Y abhängen. Für den Winkelanteil erhält man analog zum Wasserstoffatom die Kugelflächenfunktionen als Lösung.

Allerdings sollte der Überlapp der Wellenfunktionen des Valenzelektrons mit dem Kern und mit den übrigen Elektronen des Atoms nicht vernachlässigt werden. Dies ist wichtig, da das Potential in der Nähe des Kerns nicht mehr einem reinen Coulomb Potential entspricht. Somit weicht auch die Lösung des Radialanteils für Rydberg-Atome etwas von der Lösung des Wasserstoffatoms ab. Die Modifikation des Potentials wird vor allem bei kleiner Drehimpulsquantenzahl l deutlich, da die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Valenzelektrons im Kern nicht mehr vernachlässigbar ist. In der Quantendefekt Theorie wird genau diese Modifikation berücksichtigt. Der Quantendefekt δ_l ist näherungsweise unabhängig von der Hauptquantenzahl n , hängt aber stark von der Drehimpulsquantenzahl l ab. Die genaue Lösung des Radialanteils mit Hilfe der Quantendefekt Theorie wird ausführlich in [3,45–48] behandelt.

Somit erhält man die Energien der Rydbergzustände eines Atoms [49]

$$E = -\frac{\text{Ry}'}{(n - \delta_l)^2}, \quad (2.2)$$

die im Vergleich zum Wasserstoffatom durch δ_l modifiziert werden. Die Konstante $\text{Ry}' = \text{Ry}/(1 + m_e/m_{\text{nucleus}})$ ist die für das Element spezielle Rydbergkonstante mit $\text{Ry} = 109737,316 \text{ cm}^{-1}$. Für die Energiedifferenz zweier benachbarter Zustände erhält man mit der Gleichung (2.2), die schon erwähnte Abhängigkeit von der Hauptquantenzahl zu $\Delta E = E(n+1) - E(n) \propto n^{-3}$.

Für die Abschätzung der Lebensdauer müssen zwei Fälle unterschieden werden. Während der Zerfall bei kleiner Drehimpulsquantenzahl l durch direkte Zerfälle in niedrige Zustände bestimmt wird, so wird die Lebensdauer bei größerem l durch die Übergänge zu benachbarten n -Niveaus dominiert. Im ersten Fall erhält man eine Abhängigkeit der Lebensdauer von $\tau_{nl} \propto n^3$, wohingegen im zweiten Fall $\tau_{nl} \propto n^5$ gilt [3]. Einen vereinfachten Ausdruck für die Lebensdauer

von Wasserstoff-ähnlichen Atomen wird in [50] durch

$$\tau \approx n^3 \left(l + \frac{1}{2}\right)^2 \cdot 10^{-10} \text{ s} \quad (2.3)$$

gegeben. Aus dem Ausdruck (2.3) folgt für kleine l die n^3 Abhängigkeit der Lebensdauer, sowie die n^5 Abhängigkeit für $l \approx n$. Allerdings wird hier noch nicht die Schwarzkörperstrahlung beachtet, die durch treiben von Übergängen mit einer kleinen Frequenz die Zerfallsrate erhöht und damit zu einer kürzeren Lebensdauer führt [51].

Das große Dipolmoment $\mu \propto n^2$, welches durch die Ladungstrennung des positiven Kerns und dem negativen Elektrons entsteht, zusammen mit der kleinen Energiedifferenz benachbarter Zustände $\Delta E \propto n^{-3}$, führt direkt zu der n -Abhängigkeit der Polarisierbarkeit von $\alpha \propto \mu^2/\Delta E \propto n^7$ [1].

Die Abhängigkeit der Eigenschaften neutraler Rydberg-Atome von der Hauptquantenzahl n , bleiben genauso auch für Rydberg-Ionen erhalten. Durch die doppelte Kernladung, die das Valenzelektron bei einem Rydberg-Ionen $Z = 2$ sieht, verändert sich hauptsächlich die Bindungsenergie, sodass die Rydberg-Niveaus zu kürzeren Wellenlängen verschoben werden. Dadurch werden Rydberganregungen von Ionen zu einer experimentellen Herausforderung, die Physik hinter den Rydberg-Zuständen ändert sich jedoch nicht.

Der größte Vorteil bei der Verwendung von Ionen anstelle von Atomen, ist deren gute experimentelle Kontrollierbarkeit. So ist es möglich einzelne Ionen gezielt zu initialisieren, auszulesen und über sehr lange Zeiten einzuschließen. In unserem Experiment wird dafür eine lineare Paul-Falle verwendet. Im nächsten Abschnitt wird zuerst ein etwas tieferer Einblick in die Grundlagen von Paul-Fallen gegeben, um dann das Verhalten von Rydberg-Ionen in diesen Fallen zu diskutieren.

2.1.1 Ionen in einer Paul-Falle

Für unser Experiment bietet sich die Verwendung einer Paul-Falle an, da diese eine gute optische Kontrollierbarkeit einzelner Ionen ermöglicht. Zudem ist so auch eine kontrollierte Wechselwirkung zwischen mehreren Ionen möglich. Für ein besseres Verständnis des in Kapitel 4 vorgestellten experimentellen Aufbaus der verwendeten Fallen, soll in diesem Abschnitt ein kurzer Überblick über die Funktionsweise einer Paul-Falle gegeben werden. Eine tiefer greifende Diskussion von Ionenfallen kann in dem Buch von F. G. Major, V. N. Gheorghe und G. Werth [52] gefunden werden.

Das Earnshaw-Theorem von 1842 besagt, dass ein statisches elektrisches Feld keine Punktladung fangen kann [53]. Das verwendete Potential muss der Laplace Gleichung $\Delta\Phi = \nabla \cdot \mathbf{E} = 0$ genügen, da im ladungs-freiem Innenraum der Falle die Divergenz verschwindet. Dies bedeutet dass keine Quellen oder Senken vorhanden sind und damit auch keine lokalen Potentialminima oder -maxima. Somit ist für Ladungen der gleichzeitige Einschluss in allen Raumdimensionen nicht möglich. Erzeugt man durch anlegen einer Wechselspannung $U = U_0 \cdot \sin(\Omega t)$ nun aber ein dynamisches Potential, dann wird der Einschluss von geladenen Teilchen in alle Richtung möglich. In Abbildung 2.1 a)

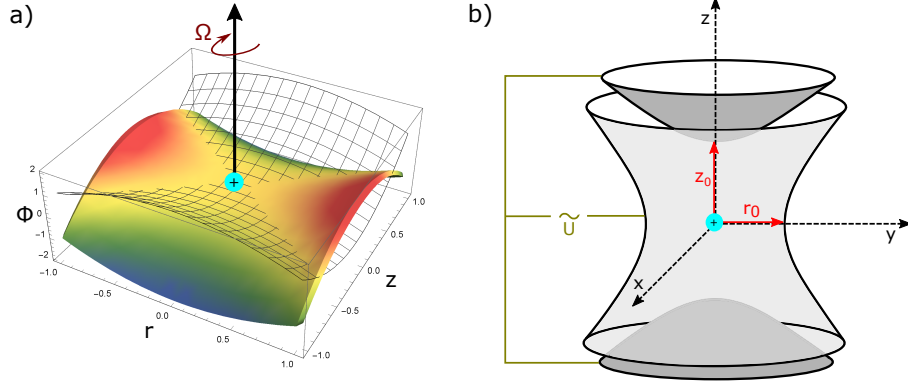


Abbildung 2.1: Sattelpotential einer Paul-Falle. Durch die Wahl eines elektrostatischen Feldes, wird die Speicherung geladener Teilchen nur in einer Raumkomponente möglich. Unter der Annahme von $r^2 = x^2 + y^2$, erhält man für das Quadrupolpotential $\Phi = U(r^2 - 2z^2)$ einer Zylindrischen Paul-Falle, welches für $\Omega t = 0$ in Abbildung a) farbig dargestellt ist. Durch anlegen einer Wechselspannung $U = U_0 \cdot \sin(\Omega t)$, wird das Sattelpotential gedreht, sodass geladene Teilchen in alle Raumrichtungen eingeschlossen werden. Das Gitternetz zeigt das Potential bei $\Omega t = \pi$ der Wechselspannung. In Abbildung b) ist eine schematische Darstellung solch einer, am häufigsten verwendeten, zylindrischen Paul-Falle dargestellt. Dabei bezeichnet r_0 die radiale sowie z_0 die axiale Dimension.

ist ein statisches Quadrupolpotential $\Phi = U_0(r^2 - 2z^2)$ einer idealen zylindrischen Paul-Falle dargestellt wobei $r^2 = x^2 + y^2$ die radiale Position und z die axiale Position beschreibt. Anlegung einer Wechselspannung führt in diesem Bild zu einer Rotation des Sattelpotentials. Somit wird das geladene Teilchen im Zentrum des Potential, abwechselnd in radialer Ebene und der z Achse eingeschlossen.

Die Elektroden einer idealen Paul-Falle haben eine hyperbolische Oberfläche. Da zum einen die Herstellung hyperbolisch geformter Elektroden aufwendig ist, zum anderen der optische Zugang in eine zylindrischen Paul-Falle sehr eingeschränkt ist, wird im Experiment häufig die lineare Paul-Falle verwendet. Bei einer linearen Paul-Falle wird die zylindrische Elektrode (siehe Abbildung 2.1 b)), durch vier lineare Elektroden ersetzt. Das Ion wird hier durch die Überlagerung eines statischen und eines oszillierenden elektrischen Feldes eingeschlossen, welches durch

$$\Phi(x, y, z, t) = U_0(\alpha_1 x^2 + \alpha_2 y^2 + \alpha_3 z^2) + U'_0 \cos(\Omega_{rf} t)(\gamma_1 x^2 + \gamma_2 y^2 + \gamma_3 z^2), \quad (2.4)$$

beschrieben werden kann. Hierbei sind x, y und z die Abstände in die jeweilige Richtung aus dem Fallen-Zentrum, und α_i, γ_i die Komponenten des statischen respektive dynamischen Potential. Die Frequenz des dynamischen Feldes ist durch Ω_{rf} gegeben. Durch die Einschränkung der Laplace-Gleichung $\Delta\Phi = 0$, muss für einen stabilen Einschluss $\sum_i \alpha_i = \alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3 = 0$ und $\sum_i \gamma_i = \gamma_1 + \gamma_2 + \gamma_3 = 0$ gegeben sein.

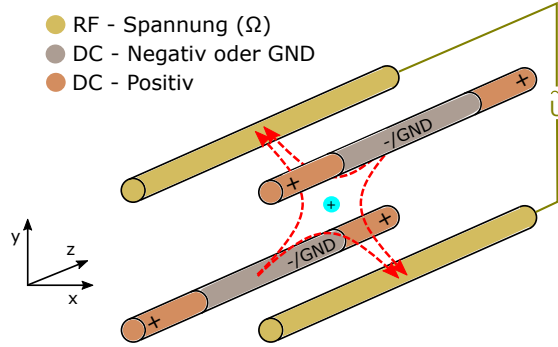


Abbildung 2.2: Segmentierte lineare Paul-Falle. In dieser Abbildung ist eine schematische Skizze einer segmentierten linearen Paul-Falle zu sehen. Dabei wird der radiale Einschluss durch anlegen eines Wechselfeld an zwei gegenüberliegenden Stäben möglich. Die anderen beiden Stäbe werden in unserem Experiment geerdet (GND). Das Teilchen wird somit in der x, y -Ebene eingeschlossen. Für den axialen Einschluss, wird an die äußeren Segmente der segmentierten Stäbe eine positive Spannung angelegt, und somit ist das Teilchen in allen Raumrichtungen eingeschlossen.

Bei der Geometrie einer linearen Paul-Falle werden die Feldgradienten auf

$$\begin{aligned}\alpha_x + \alpha_x &= -\alpha_z, \\ \gamma_x &= -\gamma_y, \\ \gamma_z &= 0\end{aligned}\tag{2.5}$$

gesetzt. In Abbildung 2.2 ist eine schematische Darstellung einer segmentierten linearen Paul-Falle gezeigt, vergleichbar mit der in unserem Experiment verwendeten. Hierbei wird der radiale Einschluss durch ein Wechselfeld erreicht, wohingegen für den axialen Einschluss ein statisches Feld genügt.

Die Bewegungsgleichung eines Teilchens in einem Potential der Form, wie es in der Gleichung (2.4) beschrieben ist, wird durch [54]

$$\ddot{r}_i = -\frac{Z|e|}{m} [U_0\alpha_i + U'_0 \cdot \cos(\Omega_{rf}t)\gamma_i] r_i, \quad i = 1, 2, 3\tag{2.6}$$

gegeben, wobei hier $r_1 = x$, $r_2 = y$ und $r_3 = z$ ist. Das Teilchen ist hierbei durch die Ladung $Z|e|$ und die Masse m charakterisiert. Diese Gleichung kann in die Normalform der Mathieu-Differentialgleichung [55] umgeschrieben werden, und somit folgt

$$\frac{d^2 r_i}{d\xi^2} + (a_i - 2q_i \cos(2\xi)) r_i = 0.\tag{2.7}$$

Hierfür benötigt man die folgenden Substitutionen

$$\xi = \frac{\Omega_{rf}t}{2}, \quad a_i = \frac{8\alpha_i|e|U_0}{m\Omega_{rf}^2}, \quad q_i = \frac{4\gamma_i|e|U'_0}{m\Omega_{rf}^2},\tag{2.8}$$

und setzt $Z = 2$.

Die Lösung der Mathieu-DGL ist nur für bestimmte Intervalle von a und q begrenzt, wobei für eine detaillierte Rechnung auf [52] verwiesen wird. Nur in den so entstehenden Stabilitätsbereichen kann das Ion eingeschlossen werden. Im stabilen Zustand bleibt die Schwingungsamplitude der Ionen über die Zeit begrenzt. Es gibt mehrere solcher Stabilitätsbereiche, allerdings sind für den Betrieb der lineare Paul-Falle nur Bereich mit kleinen Werte von $(a_i, q_i) < 1$ interessant. Im Experiment kann durch Anpassen der angelegten Spannungen U_0, U'_0 und der Fallen-Frequenz Ω_{rf} , die Falle im Stabilitätsbereich betreiben werden.

Eine einfache Lösung der Bewegungsgleichung (2.7) wird durch

$$r_i(t) = A \cos(\omega_i t) \left(1 - \frac{q_i}{2} \cos(\Omega_{rf} t) \right) \quad (2.9)$$

gegeben. Die aus 2.9 folgende Ionenbewegung setzt sich dann aus einer langsamen und einer schnellen Bewegung zusammen. Die langsame Bewegung wird Sekuläre- oder Makrobewegung genannt und besitzt die Frequenz [56]

$$\omega_i = \sqrt{\frac{2\alpha_i |e|}{m} + \frac{4\gamma_i^2 |e|^2}{m^2 \Omega_{rf}^2}}. \quad (2.10)$$

Diese Makrobewegung ist die Bewegung eines harmonischen Oszillators des harmonischen zeitlich gemitteltem Potentials, dem Pseudopotential. Die Amplitude dieser Bewegung kann durch Laserkühlung minimiert werden. Experimentell kann die Frequenz der Makrobewegung durch Anlegen eines weiteren RF-Feldes an die Elektroden gemessen werden. Wie auf der Resonanzfrequenz eines getriebenen harmonischen Oszillators, zeigt die Ionenbewegung bei der Makrobewegungs-Frequenz eine starke Auslenkungen welche detektiert werden kann.

Die schnelle Bewegung wird Mikrobewegung genannt und besitzt die treibende Frequenz Ω_{rf} vom oszillierenden elektrischen Feld. Dabei steigt die Amplitude mit der elektrischen Feldstärke an und somit mit wachsendem Abstand vom Zentrum der Falle. Diese Bewegung kann minimiert werden, indem man das Fallenfeld durch Kompensation so anpasst, dass das gespeicherte Teilchen im annähernd feldfreien Fallen-Zentrum eingeschlossen wird. Die Mikrobewegung spielt bei der Rydberganregung eine entscheidende Rolle, da durch die hohe Polarisierbarkeit der Rydberg-Ionen eine starke Kopplung an das oszillierende elektrische Feld besteht. Dies führt durch den Stark-Effekt zu einer extremen Linienverbreiterung, die wir in unseren Messungen (siehe Kapitel 5) zeigen konnten.

2.1.2 Rydberg-Ionen in einer Paul-Falle

Bei der Betrachtung von Rydberg-Ionen in einer Paul-Falle, können die Ionen nicht mehr als ein einzelnes Teilchen mit einer Masse m und der Ladung $-e$ betrachtet werden. Die Ausdehnung des Rydberg-Ionenorbitals ist im Vergleich zu einem Grundzustands Ionenorbital sehr viel größer. Die makroskopische Größe

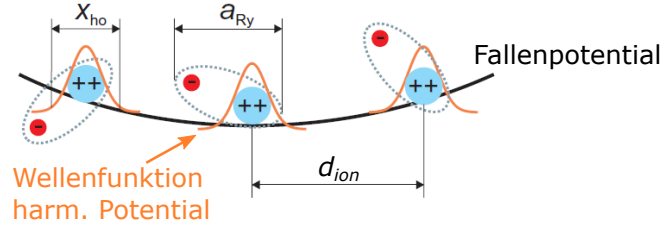


Abbildung 2.3: Rydberg-Ion im Potential der Paul Falle. Der Wert des Ionenorbitals a_{Ry} ist größer als die charakteristische Oszillatorlänge x_{ho} des Grundzustandsions, um die Gleichgewichtsposition im harmonischen Potential der Falle. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Grundzustandsatom im harmonischen Potential ist hier in orange skizziert. Der Abstand der Ionen in einem lineare Kristall d_{ion} ist aber deutlich größer als a_{Ry} und x_{ho} . Das Bild wurde aus [13] entnommen.

dieses Ionenorbitals $a_{Ry} \propto n^2 a_0$, mit dem Bohr Radius a_0 , ist größer als die charakteristische Oszillatorlänge x_{ho} des Ions um die Gleichgewichtsposition im harmonischen Potential der Falle. Jedoch deutlich kleiner als der Abstand d_{ion} zwischen einzelnen Ionen in einem Ionenkristall $x_{ho} < a_{Ry} \ll d_{ion}$. Durch die zwischen den einzelnen Ionen wirkenden Coulomb-Kräfte, richten sich mehrere Ionen in einer Paul-Falle zu einem stabilen Kristall aus. Dieser Zusammenhang ist in Abbildung 2.3 skizziert.

Daher muss das Rydberg-Ion in einer Paul Falle als zusammengesetztes Objekt aus einem doppel-ionisierten Atomkern und einem durch die Coulomb Kraft, leicht gebundenen Elektron behandelt werden. Denn sowohl das nur noch leicht gebundenen Elektron als auch der Atomkern wechselwirken nun mit dem elektrischen Feld der Falle. Dies führt zu einer vom Ionenzustand abhängigen Wechselwirkung mit dem elektrischen Feld der Falle. Im Hamiltonoperator dieses Zweikörperproblems wird die Kopplung des Kerns und des Elektrons jeweils mit dem Feld der Falle, als auch die Kopplung zwischen Kern und Elektron berücksichtigt [13,20]. Definieren wir für den zweifach geladene Atomkern die Masse M und die Position $\mathbf{r}_c$ bezüglich des Fallen-Zentrums, und für das Valenzelektron die Masse m und die Position $\mathbf{r}_e$, so kann der Hamiltonoperator durch

$$H = \frac{\mathbf{p}_c^2}{2M} + \frac{\mathbf{p}_e^2}{2m} + V(|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_c|) + V_{ls}(\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_c) + 2e \cdot \Phi(\mathbf{r}_c, t) - e \cdot \Phi(\mathbf{r}_e, t) \quad (2.11)$$

ausgedrückt werden. Die Wechselwirkung zwischen dem Atomkern und dem Elektron wird durch das Potential $V(|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_c|)$ und die Spin-Bahn Kopplung durch $V_{ls}(\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_c)$ berücksichtigt. Diese Potentiale werden in [20,48] ausformuliert. Mit Φ wird das in Gleichung (2.4) gezeigte Fallen-Potential bezeichnet, welches mit den Bedingungen einer linearen Paul Falle (2.5) zu

$$\Phi(\mathbf{r}, t) = -\alpha \cdot [x^2 + y^2 - 2z^2] + \gamma \cdot \cos(\Omega_{rf} t) [x^2 - y^2] \quad (2.12)$$

wird. Um weitere Rechnungen zu vereinfachen ist es sinnvoll in das Schwerpunktsystem zu wechseln, indem die Schwerpunktskoordinate $\mathbf{R}$ sowie die rela-

tiven Koordinaten $\mathbf{r}$ mit

$$\mathbf{r}_c = \mathbf{R} - \frac{m}{M+m}\mathbf{r}, \quad \mathbf{r}_e = \mathbf{R} + \frac{M}{M+m}\mathbf{r} \quad (2.13)$$

definiert werden. Da der Atomkern allerdings viel Größer und schwerer als das Elektron ist, kann die Näherung $\mathbf{r}_c \approx \mathbf{R}$ und $\mathbf{r}_e \approx \mathbf{R} + \mathbf{r}$ benutzt werden. Der Hamiltonoperator wird somit zu

$$H = H_c + H_e + H_{ce}, \quad (2.14)$$

wobei H_c der Schwerpunkts Hamiltonoperator, H_e der Hamiltonoperator des Elektrons mit der Kopplung an die Falle sowie H_{ce} der Hamiltonoperator für die Elektron-Kern Kopplung ist. Diese sind durch

$$H_c = \frac{\mathbf{P}^2}{2M} + e \cdot \Phi(\mathbf{R}, t) = \frac{\mathbf{P}^2}{2M} + \frac{1}{2}M\omega_z^2 Z^2 + \frac{1}{2}M\omega_\rho^2(X^2 + Y^2), \quad (2.15)$$

$$H_e = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V(|\mathbf{r}|) + V_{ls}(\mathbf{r}) - e \cdot \Phi(\mathbf{r}, t), \quad (2.16)$$

$$H_{ce} = -2e \cdot [-\alpha(Xx + Yy - 2Zz) + \gamma \cdot \cos(\Omega_{rf}t)(Xx - Yy)] \quad (2.17)$$

gegeben, mit den Koordinaten für den Kern $\{X, Y, Z\}$ und des Elektrons $\{x, y, z\}$. Hierbei ist H_c äquivalent zu dem Hamiltonoperator eines Ion im Grundzustand und beschreibt den harmonischen axialen und transversalen Einschluss der Schwerpunktsbewegung. An dieser Stelle soll die durch H_e hervorgerufenen Verschiebung der Energieniveaus und das durch H_{ce} modifizierte Fallen-Potential nur kurz erwähnt werden. Eine ausführlichere Betrachtung hierzu ist in [20] zu finden.

Bei der Elektron-Fallen Wechselwirkung hat die Energieverschiebung sowohl einen statischen, als auch einen dynamischen Teil. Diese werden durch das durch α beschriebene statische, sowie das durch γ beschriebene dynamische Fallen-Feld hervorgerufen. Der statische Anteil ist vergleichsweise klein und liegt im hundert kHz Bereich. Da normalerweise $\gamma \gg \alpha$ ist, verursacht das RF-Feld eine größere Energieverschiebung im MHz Bereich. Diese Verschiebung wird bei Beobachtungszeiten die größer als die Fallen-Frequenzen sind, als effektive Linienverbreiterung wahrgenommen. Die Abhängigkeit der Energieverschiebung ΔE von der Hauptquantenzahl n ist hierbei durch $\Delta E \propto n^{11}$ gegeben.

Für einen angeregten Zustand mit $n < 10$ kann das von H_{ce} zusätzlich erzeugte Potential vernachlässigt werden [20]. Da die Energieverschiebung von H_{ce} von dem Elektronenorbit abhängt, ist sie bei einem Rydberg-Ion dahingegen nicht mehr vernachlässigbar. Die Elektron-Ion Wechselwirkung führt zu einer Energieverschiebung ΔE_x die abhängig von der Auslenkung des Ions zum Fallen-Zentrum x ist. Somit wird ein zusätzliches harmonisches Potential erzeugt. Hier erhält man die Abhängigkeit $\Delta E_x \propto n^7$. Für die Frequenz des zusätzlichen harmonischen Potential gilt $\Delta \omega \propto n^{7/2}$, und bei hohen Rydberg-Niveaus wird die Frequenz dieses Potential sogar vergleichbar zu der Frequenz des Pseudopotential. Somit beeinflusst diese Wechselwirkung das resultierende Fallen-Potential erheblich.

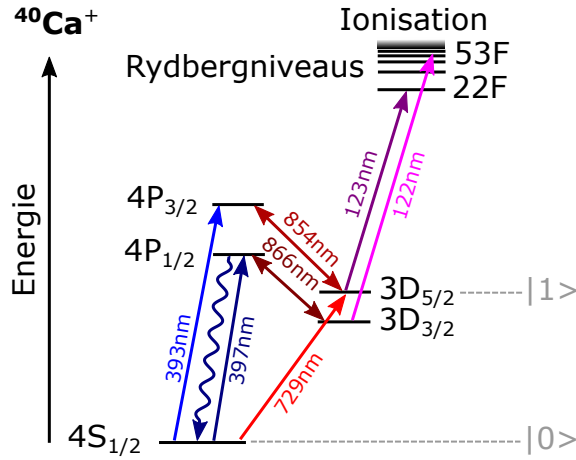


Abbildung 2.4: Energieschema von $^{40}\text{Ca}^+$. In dieser Abbildung sind die im Experiment benötigten Energieniveaus von $^{40}\text{Ca}^+$ skizziert. Der Grundzustand und der $3D_{5/2}$ -Zustand sind die beiden Qubit-Zustände. Aus dem $3D_{3/2}$ - sowie dem $3D_{5/2}$ -Zustand können über Ein-Photon Übergänge (@ 122-123 nm), Rydberg-Zustände angeregt werden. Der $3D_{5/2}$ -Zustand kann zum einen kohärent angeregt werden (@ 729 nm), oder aber durch optisches Pumpen (@ 393 nm+866 nm) initialisiert werden. Analog kann auch der $3D_{3/2}$ -Zustand durch optisches Pumpen (@ 397 nm+854 nm) initialisiert werden. Die Lichtfelder mit Wellenlängen von 397 nm und 866 nm werden zudem für die Laserkühlung verwendet. Um das Ion zu visualisieren wird das gestreute Licht bei 397 nm detektiert. Die genauen Energien der Niveaus sind in Tabelle C.1 zusammengetragen.

2.2 Eigenschaften von $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen

Die in unserem Experiment verwendeten $^{40}\text{Ca}^+$ Ionen zeichnen sich besonders dadurch aus, dass die Energien niedriger Niveaus ($3D_j$, $4P_j$) gut bekannt sind und diese mit einfachen Lasersystemen angeregt werden können. Die einfache Niveaustuktur rührt vor allem daher, dass durch die Ionisation bei $^{40}\text{Ca}^+$ nur ein Valenzelektron vorhanden ist und die übrigen Elektronen geschlossene Schalen bilden. Ein entscheidender Vorteil von $^{40}\text{Ca}^+$ ist, dass die Rydberg-Niveaus $n \approx 20 - 60$ zudem durch Ein-Photon-Übergänge im Wellenlängenbereich um 122 nm-123 nm erreichbar sind, siehe dazu Abbildung 2.4. Da in unserer Arbeitsgruppe bereits ein Lasersystem für die Erzeugung kohärenter Strahlung um 121-123 nm existiert, können wir so Ein-Photon Rydberg-Anregungen durchführen. Eine nähere Beschreibung dieses System wird im nächsten Abschnitt 2.3 gegeben. Genaue Werte für die Energien der im Experiment relevanten Niveaus sind in Tabelle C.1 zusammengetragen.

Bei einem Calcium-Ion eignen sich das $3D_{5/2}$ -Niveau sowie der Grundzustand $4S_{1/2}$ als Qubit-Zustände. Die beiden Zustände $3D_{3/2}$ und $3D_{5/2}$ werden aber auch als Initialisierungs Zustände für die Rydberganregung verwendet, da sie keinen Dipol-Erlaubten Zerfallskanal besitzen, und somit metastabil sind. Für die Lebensdauer beider Zustände wurde $\tau_{3/2} \approx 1176 \text{ ms}$ und $\tau_{5/2} \approx 1168 \text{ ms}$ gemessen [57]. Die Lebensdauer der Rydberg-Zustände $|nl\rangle$ kann mit der Theorie

von I. L. Glukhov zu

$$\tau_{nl} = \tau_l^{(0)} n^3 \cdot Q_l(1/n), \quad \text{mit} \quad Q_l(x) = 1 + \tau_l^{(1)} x + \tau_l^{(2)} x^2 + \tau_l^{(3)} x^3 \quad (2.18)$$

abgeschätzt werden [58]. Die für die Berechnung benötigten Koeffizienten $\tau_l^{(n)}$ sind in der Tabelle C.2 zusammengetragen. Die mit (2.18) berechneten Lebensdauern werden in der Tabelle 2.1 für ausgewählte Rydberg-Niveaus gezeigt. Hierbei wird deutlich, dass die Lebensdauern für nP -Niveaus um zwei

Tabelle 2.1: Berechnete Lebensdauern für Rydberg-Niveaus. Mit der Theorie nach [58] berechnete Lebensdauern für einige Rydberg-Niveaus. Die resultierende Linienbreite wird durch $\Delta = 1/(2\pi\tau)$ berechnet.

Niveau	Lebensdauer [μs]	Linienbreite [kHz]
23P	15,7	10,1
22F	0,2	836,9
53P	229,7	0,7
53F	2,7	60,2

Größenordnung größer sind, als die Lebensdauern von nF -Niveaus. Damit sind die zu erwartenden Linienbreiten ebenfalls deutlich kleiner. In der Berechnung nach (2.18) wurde wiederum die Schwarzkörperstrahlung außer Acht gelassen, die wie schon erwähnt zu einer Reduktion der Lebensdauern führt.

Um Anregungsraten abschätzen zu können benötigt man das Dipolmatrixelement. Für den Übergang $3D_{5/2} \rightarrow nP_{3/2}$ wird das Dipolmatrixelement bei $n > 18$ in [20] durch

$$\langle 3D_{5/2} | e \cdot \mathbf{r} | nP_{3/2} \rangle = \mu_{D_{5/2} \rightarrow nP} \approx 0,383 \cdot e \cdot a_0 \cdot n^{-1,588} \quad (2.19)$$

abgeschätzt, wobei e die Elementarladung und a_0 der Bohr Radius ist. Für Dipolübergänge zu nF -Niveaus ist das Matrixelement ungefähr einen Faktor 10 größer, als zu nP Niveaus [59].

Für Niveaus mit $l \leq 3$ können die Quantendefekte nicht mehr vernachlässigt werden. Wir verwenden die Theorie von M. Djerad [60], nach der man die Quantendefekte mit

$$\delta_{nl} = a + \frac{b}{m^2} + \frac{c}{m^4} + \frac{d}{m^6} \quad (2.20)$$

abschätzen kann, wobei $m = n - \delta_0$. Die hier benötigten Koeffizienten a, b, c, d und δ_0 sind in einer Tabelle C.3 zusammengestellt. Für hohe Hauptquantenzahlen können die Quantendefekte somit zu

$$\begin{aligned} \delta_S &\approx 1,80 \\ \delta_P &\approx 1,44 \\ \delta_D &\approx 0,62 \\ \delta_F &\approx 0,026 \end{aligned} \quad (2.21)$$

berechnet werden.

Eine besondere Eigenschaft der Rydberg-Zustände ist die große Polarisierbarkeit. Die in der Einleitung erwähnten Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen mehreren Rydberg-Ionen, werden gerade durch die große Polarisierbarkeit und das damit verknüpfte Dipolmoment möglich. Zudem beeinflusst die Polarisierbarkeit die Energieverschiebung ΔE der Rydberg-Niveaus, welche durch den Quadratischen Stark-Effekt hervorgerufen wird. Die Energieverschiebung ist über $\Delta E = 1/2 \cdot \alpha E^2$ mit der Polarisierbarkeit α verknüpft.

Die $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen besitzen Niveaus mit negativer (P -Zustände) sowie positiver (S -, D -, F -Zustände) Polarisierbarkeit. Die Polarisierbarkeit konnte sowohl für den $52F$ - als auch den $51P$ -Zustand theoretisch berechnet werden [59,61]. Die Theoriewerte liegen somit bei

$$\begin{aligned}\alpha_{52F}/2 &= 400 \text{ MHz}/(\text{V}/\text{cm})^2 \\ \alpha_{51P}/2 &= -37 \text{ MHz}/(\text{V}/\text{cm})^2.\end{aligned}\tag{2.22}$$

Durch die Abhängigkeit von $\alpha \propto n^7$ können hiermit Werte für andere Hauptquantenzahlen n abgeschätzt werden.

2.3 Erzeugung kohärenter VUV-Strahlung

Wie im Abschnitt 2.2 bereits erwähnt wurde, benötigen wir in unserem Experiment für die Rydberganregung der $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen ein kohärentes Lichtfeld mit einer Wellenlänge von 122 nm - 123 nm. Wie bereits in der Einleitung 1 erwähnt wurde, stellt die Erzeugung von elektromagnetische Strahlung bei dieser Wellenlänge eine Herausforderung dar.

Zur Erzeugung von kohärenter, kontinuierlicher (continuous wave, cw), vakuum-ultravioletter Strahlung (VUV) mit einer Wellenlänge um 122 nm-123 nm, wurde im Rahmen dieser Arbeit die Technik des nicht entarteten Vierwellen-Summenfrequenzmischens in Quecksilberdampf verwendet. Bei diesem nichtlinearen Prozess dritter Ordnung werden drei fundamentale Lichtfelder ($\omega_1, \omega_2, \omega_3$) zu einem vierten Lichtfeld (ω_4) gemischt, dessen Frequenz genau der Summe aus den Frequenzen der drei fundamentalen Lichtfelder entspricht.

Das für das Vierwellen-Summenfrequenzmischen benötigte und im Rahmen dieser Arbeit verwendete nichtlineare Medium ist Quecksilberdampf. Dabei werden zur Effizienzsteigerung die Resonanzen in Quecksilber ausgenutzt, was in Abbildung 2.5 durch zwei reduzierte Termschemen von Quecksilber veranschaulicht wird. Die Wellenlängen der fundamentalen Lichtfelder liegen bei 254 nm, 408 nm und 555 nm - 580 nm. Auch diese Wellenlängen sind sehr speziell und werden daher durch Frequenzverdopplung, ein nichtlinearer Prozess zweiter Ordnung, in unterschiedlichen doppelbrechenden Kristallen gewonnen.

Um einen besseres Verständnis dieses Prozesses zu vermitteln, wird in den folgenden Abschnitten zunächst die Theorie der nichtlinearen Optik des Vierwellen-Summenfrequenzmischen in Quecksilberdampf kurz zusammengefasst. Zudem soll die Theorie für eine quantitative Abschätzung der Effizienz des Vierwellen-Mischprozesses aufgezeigt werden. Eine kurze Diskussion der Phasenanpassung bei der Frequenzverdopplung in Kristallen, soll weiterhin für eine detaillierte Beschreibung des Lasersystems dienen. In diesem Kapitel werden nur die für das Verständnis wichtigsten Rechenschritte aufgezeigt, die sich an [62,63] orientieren. Eine nähere Diskussion des von uns verwendeten Lasersystems wird dann im Kapitel 3 gegeben.

2.3.1 Vierwellen-Summenfrequenzmischen in Quecksilber

Tritt elektromagnetische Strahlung in Wechselwirkung mit Materie, dann führen die optischen Eigenschaften des Mediums dazu, dass auch nichtlineare Reaktionen auftreten. Diese Phänomene werden im Bereich der nichtlinearer Optik behandelt, was mit der Entdeckung der Frequenzverdopplung im Jahre 1961 begann [64]. Um diese Wechselwirkung näher zu beschreiben kann man sich die vom elektrischen Feld $\mathbf{E}(t)$ induzierte Polarisation des Medium

$$\mathbf{P}(t) = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} \mathbf{E} + \underbrace{\chi^{(2)} \mathbf{E}^2 + \chi^{(3)} \mathbf{E}^3 + \dots}_{=\mathbf{P}^{NL}(t)} \right), \quad (2.23)$$

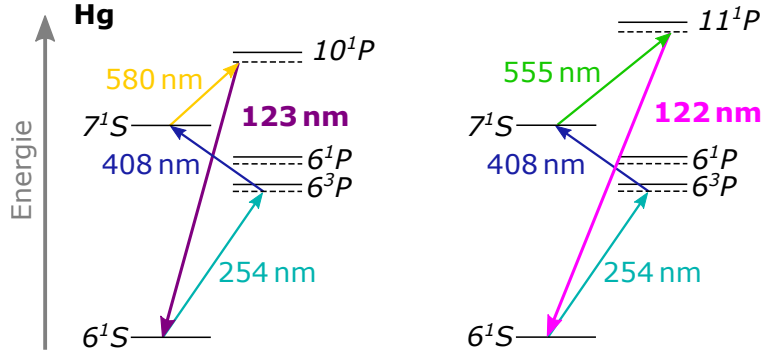


Abbildung 2.5: Termschema von Quecksilber für resonantes Vierwellenmischen. Die drei eingestrahnten fundamentalen Strahlen mit Wellenlängen bei 254 nm, 408 nm und 555 nm bzw. 580 nm mischen in Quecksilberdampf zum vierten Lichtfeld mit der Wellenlänge 122 nm respektive 123 nm. Dabei werden Resonanzen im Medium ausgenutzt, um die Mischefizienz zu erhöhen.

als Potenzreihe anschauen. Hierbei ist ϵ_0 die Permittivität im Vakuum, $\chi^{(1)}$ die lineare Suszeptibilität sowie $\chi^{(2)}, \chi^{(3)}, \dots$ die nichtlinearen optischen Suszeptibilitäten höher Ordnung. Diese höheren Ordnungen der Polarisation werden bei hohen Intensitäten des elektrischen Feldes interessant und können gezielt für Frequenzkonversion genutzt werden.

Aus den Maxwellgleichungen kann die nichtlineare Wellengleichung

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{n(\omega)^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}^{NL} \quad (2.24)$$

herleitet werden, wobei $n(\omega)$ der frequenzabhängige, komplexe Brechungsindex ist. In der inhomogenen Wellengleichung (2.24) wird deutlich, dass die nichtlineare Polarisation als Quelle neuer elektromagnetischer Strahlung auftritt. Die Frequenz der emittierten Strahlung entspricht dann einer Linearkombination aus den Frequenzen der fundamentalen elektromagnetischen Felder.

Bei dem Prozess des Vierwellen-Summenfrequenzmischen ist die erzeugte Leistung proportional zum Produkt der eingestrahnten Leistung der fundamentalen Lichtfelder. Um die Frequenzkonversion allerdings möglichst effizient durchführen zu können, ist die Wahl des richtigen Wechselwirkungsmedium entscheidend. Ein besonders wichtiger Faktor um die Konversionseffizienz nichtlineare Prozesse zu erhöhen, ist die Ausnutzung von atomaren Resonanzen des Wechselwirkungsmediums. Bei einer zu erzeugenden Wellenlänge um 123 nm hat sich Quecksilberdampf etabliert [26,27], da hier einige Resonanzen mit elektromagnetischer Strahlung im sichtbaren bis ultravioletten Wellenlängenbereich erreicht werden können. Des weiteren weist Quecksilber einen sehr hohen Dampfdruck und damit hohe Teilchenzahldichten bei moderaten Temperaturen (150°C) auf.

Da Quecksilberdampf ein isotropes Medium ist, verschwindet die nichtlineare Suzeptibilität zweiter Ordnung $\chi^{(2)}$ sowie alle höheren geraden Ordnungen. Bei Inversions-Symmetrie ruft ein Vorzeichenwechsel des elektrischen Feldes auch ein Vorzeichenwechsel der induzierten Polarisierung hervor. In dem speziellen Fall der Frequenzverdopplung ist die Gleichung

$$-\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi^{(2)} (-\mathbf{E})^2, \quad (2.25)$$

somit nur für $\chi^{(2)} = 0$ erfüllt. Da zudem die fundamentalen Lichtfelder alle die gleiche lineare Polarisierung aufweisen, kann die Antwort des isotropen Medium ebenfalls nur in die gleiche Richtung zeigen. Das ermöglicht es $\chi^{(3)}$ als Skalar zu betrachten.

Als nächstes wird die Intensität der erzeugten elektromagnetischen Strahlung betrachtet, welche aus der Wellengleichung (2.24) berechnet werden kann. Dazu muss zuerst die nicht-lineare Polarisierung für den expliziten Fall $\mathbf{P}_4^{NL}$ aufgestellt werden. Unter der Annahme dass es sich bei den einlaufenden Feldern um in die x-Richtung polarisierten ebenen Wellen handelt welche sich in z-Richtung ausbreiten, kann das elektrische Feld durch

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(z, t) &= \frac{1}{2} \left(E_1 e^{-i(\omega_1 t - k_1 z)} + E_2 e^{-i(\omega_2 t - k_2 z)} + E_3 e^{-i(\omega_3 t - k_3 z)} + c.c. \right) \cdot \mathbf{e}_x \\ &= \frac{1}{2} \sum_{\pm n} E(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \cdot \mathbf{e}_x = \frac{1}{2} \sum_{\pm n} E_n e^{i(k_n z - \omega_n t)} \cdot \mathbf{e}_x, \end{aligned} \quad (2.26)$$

ausgedrückt werden. Dabei läuft die Summe über alle positiven sowie negativen Frequenzkomponenten und $E_n = E_n(z)$ beschreibt die Amplitude des elektrischen Feldes welche von der Position z abhängt. Auch die nichtlineare Polarisierung kann durch den Fourierreihenansatz

$$\mathbf{P}^{NL}(z, t) = \frac{1}{2} \sum_{\pm n} P(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \cdot \mathbf{e}_x = \frac{1}{2} \sum_{\pm n} p_n e^{i(k_n z - \omega_n t)} \cdot \mathbf{e}_x \quad (2.27)$$

ausgedrückt werden, wobei p_n hier die Amplitude der Polarisierung $P(\omega_n)$ beschreibt. Für eine bessere Übersichtlichkeit wird ab jetzt den Einheitsvektor $\mathbf{e}_x$ weggelassen. Um die Polarisierung nach Gleichung (2.23) durch die elektrischen Felder auszudrücken, muss zuerst $\mathbf{E}^3(z, t)$ berechnet werden. Dabei erhält man insgesamt 44 Frequenzkomponenten, wovon 6 den für uns interessanten Fall der Summenfrequenzmischung ($\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$) beschreiben. Daraus folgt für die nicht-lineare Polarisierung

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_4^{NL}(z, t) &= P(\omega_4) e^{-i\omega_4 t} + c.c. \\ &= \frac{6\epsilon_0 \chi^{(3)}}{8} E_1 E_2 E_3 e^{-i(\omega_4 t - (k_1 + k_2 + k_3)z)} + c.c. \\ &= p_4 \cdot e^{i((k_1 + k_2 + k_3)z - \omega_4 t)} \end{aligned} \quad (2.28)$$

Setzt man nun (2.26) und (2.27) in die Wellengleichung ein¹, ergibt sich

$$\begin{aligned} \left[\frac{\partial^2 E_4}{\partial z^2} + 2ik_4 \cdot \frac{\partial E_4}{\partial z} \right] e^{i(k_4 z - \omega_4 t)} + c.c. &= -\frac{\omega_4^2}{2\epsilon_0 c^2} p_4 \cdot e^{i((k_1 + k_2 + k_3)z - \omega_4 t)} + c.c. \\ \frac{\partial^2 E_4}{\partial z^2} + 2ik_4 \cdot \frac{\partial E_4}{\partial z} &= -\frac{\omega_4^2}{2\epsilon_0 c^2} p_4 \cdot e^{i(k_1 + k_2 + k_3 - k_4)z} \end{aligned} \quad (2.29)$$

wobei die Zeitabhängigkeit hier verschwindet, da sie auf beiden Seiten gleich ist. Zudem heben sich auf der linken Seite der Gleichung (2.29) die Terme $-k_4^2 E_4$ und $n(\omega_4)\omega_4^2 E_4/c^2$ weg.

Weiterhin kann hier die Annahme getroffen werden, das die Amplitude E_n des elektrischen Feldes im Vergleich zu der Wellenlänge langsam variiert („slowly varying envelope approximation“). Somit gilt

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} E_n \ll \frac{\partial}{\partial z} E_n \cdot k_n, \quad (2.30)$$

weshalb der erste Term in (2.29) weggelassen werden kann. Mit $\Delta k = k_4 - (k_1 + k_2 + k_3)$ erhält man so

$$\frac{\partial E_4}{\partial z} = \frac{6}{8} \frac{i\omega_4}{n(\omega_4)c} \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3 e^{-i\Delta k z}, \quad (2.31)$$

wobei die Wellenzahl durch $k_i = n(\omega_i) \cdot \omega_i/c$ gegeben ist. Wenn man nun davon ausgeht dass die eingestrahnten fundamentalen Lichtfelder beim Durchqueren des Mediums keine Abschwächung erfahren, kann man die Gleichung (2.31) entlang der Propagationsrichtung integrieren

$$I_4 = \frac{1}{2} \epsilon_0 n(\omega_4) c \left| \int_0^L \frac{\partial E_4}{\partial z} dz \right|^2, \quad (2.32)$$

und erhält die Intensität des erzeugten Feldes E_4

$$I_4 = \frac{9}{32} \frac{\epsilon_0 \omega_4^2 L^2}{n(\omega_4)c} \left| \chi^{(3)} \right|^2 E_1^2 E_2^2 E_3^2 \frac{\sin^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2} \right)^2}, \quad (2.33)$$

mit der Länge des Mediums L . Die Phasenfehlانpassung, die hier durch Δk gegeben ist, sollte für ebene Wellen also $\Delta k = 0$ sein damit die Intensität I_4 in Gleichung (2.33) maximal wird. In diesem Fall ist das erzeugte Feld an jedem Ort mit den fundamentalen Feldern in Phase, sodass alle erzeugten elektromagnetischen Felder konstruktiv überlagern.

Um die Intensität I_4 im Experiment zu vergrößern, können außerdem noch die nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ und die einzelnen Intensitäten der fundamentalen Lichtfelder erhöht werden. Das $\chi^{(3)}$ kann dabei durch Ausnutzen von Resonanzen im nichtlinearem Medium sowie der Dichte des Mediums optimiert

¹Hierbei wird $\Delta E = \partial^2 E / \partial z^2$ verwendet. Dies ist möglich, da bei den zuvor angenommenen ebenen Wellen, die elektrischen Feld nur von der Koordinate z abhängig sind.

werden, was im weiteren Verlauf des Kapitels nochmals aufgegriffen wird. Da die Intensitäten der fundamentalen Lichtfelder linear in die erzeugte Intensität I_4 eingehen, ist es sinnvoll die Intensität der fundamentalen Strahlen durch starke Fokussierung um mehrere Größenordnungen zu erhöhen. Das führt jedoch dazu, dass in diesem Fall das bisher betrachtete und auf ebene Wellen vereinfachte Modell nicht mehr verwendet werden kann. Daher wird im nächsten Abschnitt das bisher betrachtete Modell so erweitert, dass damit auch den Fall der fokussierten fundamentalen Gaußstrahlen beschrieben werden kann.

Vierwellen-Summenfrequenzmischen mit fokussierten Gaußstrahlen

Beim Durchgang durch den Fokus erhält ein Gaußstrahl eine Phase von π , welche Gouy-Phase $\xi(z)$ genannt wird [65]. In der nichtlinearen Polarisation tritt diese Phasenänderung für jedes der fundamentalen Lichtfelder einzeln auf, also insgesamt dreimal, für die erzeugte Welle jedoch nur einmal. Das führt dazu, dass die erzeugte Welle mit der treibenden Polarisation des Mediums außer Phase läuft. Aus diesem Grund ändert sich die Phasenanpassungsbedingung im Vergleich zu dem Fall mit ebenen Wellen, weshalb an dieser Stelle näher darauf eingegangen werden soll.

Für die weitere Berechnung bietet es sich an, zuerst ein paar Annahmen für die fundamentalen Lichtfelder zu treffen. Man geht von Kollinearität, gleicher Ort des Fokus, von gleichem konfokalen Parameter sowie von gleicher linearer Polarisation² aller drei eingestrahlten Laserstrahlen aus. Außerdem soll die Absorption auch hier vernachlässigt werden und es wird ein homogenes Dichteprofil des Mediums der Länge L angenommen. Wenn man nun die eingestrahlten sowie entstehenden elektromagnetischen Felder als Gaußstrahlen der Form

$$E_n = \frac{E_0}{1 + i \frac{2z}{b}} e^{-r^2 k_n / b(1 + i \frac{2z}{b})}, \quad r^2 = x^2 + y^2 \quad (2.34)$$

behandelt [62,63], kann durch Lösen der Wellengleichung die erzeugte Leistung P_4 zu

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

berechnet werden [66]. Dabei ist ω_4 die Summenfrequenz und P_n die jeweiligen Leistungen der fundamentalen Lichtfelder. Da die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung proportional zur Atomdichte ist, wurde $\chi^{(3)} = N \cdot \chi_a^{(3)}$, mit $\chi_a^{(3)}$ der Suszeptibilität pro Atomdichte, eingesetzt. Die Funktion $F(b\Delta k, b/L)$ wird als Phasenanpassungsintegral bezeichnet, und enthält die Information über Δk für ideale Phasenanpassung unter Verwendung von fokussierten Gaußstrahlen. Diese Funktion ist durch

$$F(b\Delta k, b/L) = \left| \int_{-L/2}^{L/2} \frac{2b e^{-i\Delta k z}}{(b + 2iz)^2} dz \right|^2 \quad (2.36)$$

gegeben.

²Der konvokale Paramter oder einfach b-Parameter ist durch $b = k\omega_0^2$ gegeben [65].

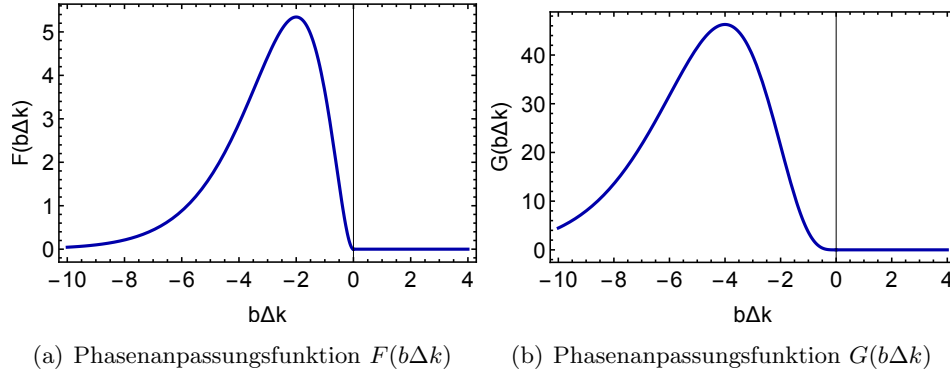


Abbildung 2.6: Phasenanpassungsfunktionen $F(b\Delta k)$ sowie $G(b\Delta k)$ für das Vierwellen-Summenfrequenzmischen. In der Abbildungen sind die beiden Phasenanpassungsfunktionen $F(b\Delta k)$ sowie $G(b\Delta k)$ gegenüber $b\Delta k$ aufgetragen. Dabei erhält man ein Maximum bei $b\Delta k = -2$, respektive $b\Delta k = -4$.

Im Experiment ist der konfokale Parameter deutlich kleiner als die Länge des verwendbaren Medium ($b \ll L$), weshalb die Abhängigkeit von L verschwindet. Um das Integral (2.36) analytisch zu lösen ist daher die Annahme $L = \infty$ gerechtfertigt, und somit erhält man:

$$F(b\Delta k) = \begin{cases} \pi^2 (b\Delta k)^2 e^{b\Delta k}, & \text{für } \Delta k < 0 \\ 0, & \text{für } \Delta k \geq 0. \end{cases} \quad (2.37)$$

Das Ergebnis ist zudem in Abbildung 2.6 a) gezeigt, wobei hier $F(b\Delta k)$ gegen $b\Delta k$ aufgetragen ist. Es wird deutlich, dass die optimale Phasenanpassung für $b\Delta k = -2$ erreicht wird.

Aus Gleichung (2.37) wird ersichtlich, dass die Phasenanpassung nun nur noch von dem konfokalen Parameter der fundamentalen Laserstrahlen und von der Phasenfehlanspassung Δk abhängig ist. Experimentell kann die Phasenanpassung optimiert werden indem Δk mit einem Winkel zwischen den verschiedenen fundamentalen Strahlen verändert wird, oder indem die Dispersion im nichtlinearen Medium zum Beispiel durch Zugabe von anderen Gasen verändert wird. Denkbar wären auch Ansätze für Quasi-Phasenanpassung bei dem das nichtlineare Medium durch periodische Struktur aufgebaut ist.

Bei der von uns verwendeten Möglichkeit der Phasenanpassung wird die Teilchenzahldichte des nichtlinearen Mediums, also des Quecksilberdampfes, verändert da Δk über die Dispersion von der Teilchenzahldichte abhängt. Die Teilchenzahldichte ist wiederum durch die Temperatur des Quecksilberdampfes zugänglich.

Die Teilchenzahldichte tritt in der Leistung (Gleichung (2.35)) sowohl in der Phasenanpassungsfunktion $F(b\Delta k)$ als auch im Vorfaktor auf. So ist es für Berechnungen sinnvoll, zur Optimierung der Leistung die Teilchenzahldichte aus dem Vorfaktor in die Phasenanpassungsfunktion zu ziehen. Dazu führt man

die neue Funktion

$$G(b\Delta k) = (b\Delta k)^2 F(b\Delta k) \quad (2.38)$$

ein. Somit wird Gleichung (2.35) zu

$$P_4 = \frac{9}{4} \frac{\omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4}{\pi^2 \epsilon_0^2 c^6} \frac{1}{b^2} \left(\frac{N}{\Delta k} \right)^2 \left| \chi_a^{(3)} \right|^2 P_1 P_2 P_3 \cdot G(b\Delta k), \quad (2.39)$$

wobei der Quotient $N/\Delta k$ eine von der Wellenlänge abhängige Konstante ist und nicht mehr von der Teilchenzahldichte abhängt³. So muss man auch hier nur noch die Funktion $G(b\Delta k)$ für optimale Phasenanpassung maximieren.

Wie in der Abbildung 2.6 b) zu erkennen, ist die Phasenanpassungsbedingung nun verschoben und liegt bei $b\Delta k = -4$. Das Maximum der Funktion $G(b\Delta k)$ ist der beste Kompromiss aus hoher Dichte und guter Phasenanpassung, bei den gegebenen Wellenlängen der fundamentalen Lichtfelder. In der Gleichung (2.39) wird nun ersichtlich, dass kleine Foki ω_0 der fundamentalen Strahlen direkt die Leistung P_4 erhöht da der konfokale Parameter mit dem Fokus über $b = k\omega_0^2$ zusammenhängt.

Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ erster Ordnung

Bei Verwendung der Teilchenzahldichte als Phasenanpassungselement ist man allerdings bei der Wahl der Frequenzen der fundamentalen Felder eingeschränkt. Genauer muss $\Delta k = -4/b$ sein. Wie im folgenden gezeigt werden soll, kann dies erreicht werden wenn der UV-Laser bei 254 nm, rot zum Ein-Photon-Übergang 6^1S-6^3P verstimmt ist. Die Phasenfehlانpassung $\Delta k = k_4 - (k_1 + k_2 + k_3)$ hängt mit dem schon in Gleichung (2.24) aufgetretenen Brechungsindex zusammen

$$k_i = \frac{n(\omega_i) \omega_i}{c}, \quad (2.40)$$

und dieser ist wiederum mit dem Tensor der linearen Suzeptibilität erster Ordnung über

$$n(\omega) = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega)} \quad (2.41)$$

verknüpft [62]. Dieser komplexe Brechungsindex kann in Real- und Imaginärteil aufgeteilt werden. Dabei beschreibt der Realteil den klassischen Brechungsindex

$$n'(\omega_i) = \text{Re}[n(\omega_i)], \quad (2.42)$$

wohingegen der Imaginärteil für den Absorptionskoeffizienten

$$\alpha = \frac{2\omega_i}{c} \cdot \text{Im}[n(\omega_i)] \quad (2.43)$$

³Im folgenden Abschnitt wird gezeigt, dass Δk über $\chi^{(1)}$ von N abhängig ist. Siehe dazu auch Gleichung (2.40).

steht. Die Phasenfehlانpassung kann mit den Gleichungen (2.40) und (2.42) folglich durch

$$\Delta k = \frac{1}{c} \left(\text{Re}[n(\omega_4)] \omega_4 - \sum_{i=1}^3 \text{Re}[n(\omega_i)] \omega_i \right) \quad (2.44)$$

berechnet werden.

Die in Gleichung (2.41) auftauchende lineare Suszeptibilität kann über

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_e} \sum_n \frac{f_{gn}}{\omega_{gn}^2 - (\omega - i\gamma_{gn})^2} \quad (2.45)$$

berechnet werden [62]. Dabei ist N die Dichte des Mediums, e die Elementarladung, ϵ_0 die die Permittivität des Vakuums, m_e die Elektronenmasse, f_{gn} die Oszillatorstärke des Übergangs, ω_{gn} die Übergangswellenlänge des Dipolübergangs und γ_{gn} der homogenen Linienverbreiterung, welche aus Druckverbreiterung und natürlichen Linienbreite zusammengesetzt ist. Der Summationsindex durchläuft dabei alle Zustände, die vom Grundzustand g über einen Dipolübergang erreichbar sind. Wegen der intermediären Kopplung sind dies bei Quecksilber alle n^1P_1 und n^3P_1 Niveaus.

Im Anhang C.2.1 in Tabelle C.4 sind die Oszillatorstärken für die relevanten Quecksilber Niveaus zusammengetragen. Das Kontinuum wird hier berücksichtigt, indem das dominierende autoionisierende Niveau $(^2D_{3/2})6p'^1P$ mit in die Summe aufgenommen wird. Das Integral über das Kontinuum kann vernachlässigt werden, da die weiteren Beiträge klein sind [67,68].

Zusätzlich zur homogenen Linienverbreiterung der Niveaus γ in (2.45) muss noch die inhomogene Dopplerverbreiterung, welche durch die thermische Verteilung der Quecksilberatome auftritt, betrachtet werden. Diese tritt auf, da ein Atom mit einer Geschwindigkeitskomponente in Strahlrichtung z eine zum ruhenden Atom verschobene Resonanzfrequenz

$$\omega_\Delta = \omega \left(1 + \frac{v_z}{c} \right) \quad (2.46)$$

besitzt [69]. Im thermischen Gleichgewicht ist die Teilchenzahldichte von Atomen $N(v_z)$ in dem Geschwindigkeitsintervall $v_z + dv_z$ durch die Maxwell-Boltzmann-Verteilung

$$N(v_z)dv_z = N \frac{1}{\sqrt{\pi}v_0} e^{-(v_z/v_0)^2} dv_z \quad (2.47)$$

gegeben. Wobei hierbei

$$v_0 = \sqrt{\frac{2k_b T}{m_{Hg}}} \quad (2.48)$$

die häufigste Geschwindigkeitskomponente darstellt, mit der Temperatur T , der Masse eines Quecksilberatoms m_{Hg} und der Boltzmann-Konstante k_b . Setzt man (2.46), (2.47) und (2.48) nun in die Gleichung (2.45) für die lineare Sus-

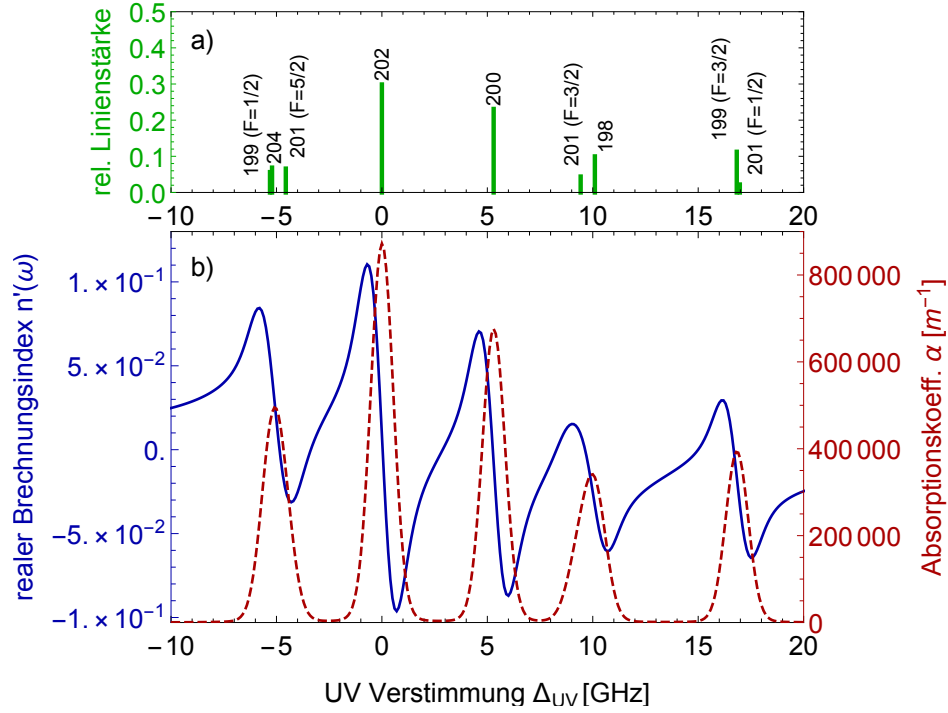


Abbildung 2.7: Realer Brechungsindex und Absorption in der Nähe der $6^1S \rightarrow 6^3P$ in Quecksilber. In der Abbildung a) sind die Linienstärken der verschiedenen Isotope eines natürlichen Quecksilber Isotopengemisches und ihre Hyperfeinaufspaltungen gegenüber der UV Verstimmung zum 202-Isotop aufgetragen. In Abbildung b) ist der berechnete reale Brechungsindex $n'(\omega) = \text{Re} \left[\sqrt{1 - \chi^{(1)}} \right]$, als auch die berechnete Absorption $\alpha = 2(\omega_i/c) \cdot \text{Im}[n(\omega_i)]$ gegenüber der UV Verstimmung zum 202-Niveau aufgetragen. Die Berechnungen wurden mit einer definierten Quecksilber Temperatur von 150°C durchgeführt. Bildvorlage aus [42].

zeptibilität ein, erhält man

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_e} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{\pi} v_0} e^{-(v_z/v_0)^2} \sum_n \frac{f_{gn}}{\omega_{gn}^2 - (\omega \cdot (1 + \frac{v_z}{c}) - i\gamma_{gn})^2} dv_z, \quad (2.49)$$

wobei hier nun über alle Geschwindigkeitskomponenten integriert wird.

Die Phasenfehlانpassung pro Atomdichte ist durch $\Delta k_a = \Delta k/N$ gegeben, da $\chi^{(1)}$ linear zur Atomdichte ist und somit auch Δk . In Δk_a stecken dann alle für die Phasen Anpassung relevanten Informationen über die Resonanzstruktur von Quecksilber.

In Abbildung 2.7 b) sind sowohl der reale Brechungsindex $n'(\omega)$ als auch die Absorption α in der Nähe der $6^1S \rightarrow 6^3P$ Resonanz in Quecksilber, gegenüber der UV-Verstimmung aufgetragen. Wegen der kleinen Verstimmung ($\approx 50 - 150$ GHz) des UV Lichtfeldes zur 6^3P Resonanz, und weil das verwendete Quecksilber ein natürliches Isotopengemisch ist, wurden die Isotopie-

verschiebungen mit der jeweiligen Häufigkeit, und bei ungeraden Isotopen ihre jeweiligen Hyperfeinaufspaltungen in dieser Abbildung berücksichtigt. Dazu berechnet man die linearen Suszeptibilitäten für jedes Isotop einzeln und summiert bei ungeraden Isotopen noch über die Hyperfeinstrukturkomponenten, deren Beiträge jeweils mit dem Entartungsfaktor G gewichtet werden. Dabei gibt der Entartungsfaktor das Verhältnis aus der Entartung der betrachteten Hyperfeinstrukturkomponente zu der Summe aller Komponenten an. Die hierzu benötigten Werte sind im Anhang C.2.2 in Tabelle C.5 zusammengetragen.

Da zur Phasenfehlانpassung nur Ein-Photon Resonanzen beitragen, dominiert das UV-Lichtfeld diese. Es ist das Lichtfeld welches mit am nächsten zu einer Resonanz in Quecksilber verstimmt ist. Die Dispersion der anderen beteiligten Lichtfelder ist daher nahezu vernachlässigbar. Aus diesem Grund ist eine erfolgreiche Phasenانpassung ($b\Delta k = -4$) nur mit zur 6^3P -Resonanz rot verstimmt UV-Licht möglich.

Zur Berechnung der für die Phasenانpassung benötigten optimalen Quecksilber Temperatur und damit Teilchenzahldichte, muss die Gleichung $b\Delta k_a N = -4$ nach der Dichte aufgelöst werden. Mit den im Anhang C.2.3 in Tabelle C.6 gegebenen Werten für den Dampfdruck von Quecksilber, kann die Teilchenzahldichte $N = p/k_B T$ aus der Temperatur berechnet werden. Die benötigte Quecksilber Temperatur bei kleinen UV-Verstimmungen (50GHz - 150GHz), liegt in einem moderaten Bereich um 120 °C-150 °C.

Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ dritter Ordnung

Wie schon erwähnt muss für eine Abschätzung der erzeugten Leistung P_4 auch die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung $\chi^{(3)}$ und dessen Abhängigkeit von den Quecksilber-Resonanzen betrachtet werden. Dieser Term enthält im allgemeinen Fall eine Vielzahl von Termen, die alle möglichen Prozesse der Frequenzkonversion berücksichtigen [62]. Die Resonanzen des nichtlinearen Mediums spielen eine große Rolle, und können bei geeigneter Anpassung der fundamentalen Lichtfelder die Suszeptibilität deutlich steigern [63]. In Abbildung 2.8 ist eine schematische Resonanzstruktur eines Mediums gezeigt, bei dem die Zwei-Photonen Resonanz ausgenutzt wird und die anderen Lichtfelder Nahresonant eingestrahlt werden. Diese Resonanzstruktur ist vergleichbar mit der Resonanzstruktur, die bei Quecksilber ausgenutzt wird und soll daher im folgenden Abschnitt näher betrachtet werden. In dem vorliegenden Fall von Summenfrequenzmischen in einem isotropen Mediums, unter Verwendung von nahresonanten Lichtfeldern, Ausnutzung einer Zwei-Photonen Resonanz und bei gleicher linearer Polarisation aller drei fundamentalen Lichtfelder vereinfacht sich der Tensor $\chi^{(3)}$ zu einem Skalar, und kann durch

$$\chi^{(3)} = \frac{N}{6\epsilon_0 \hbar^3} S(\omega_1, \omega_2) \chi_{12} \chi_{34} \quad (2.50)$$

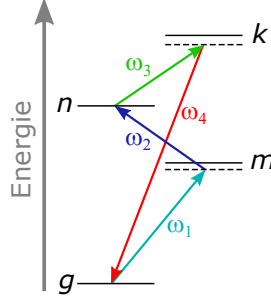


Abbildung 2.8: Theorie Vier-Wellen-Mischen mit Zwei-Photonen Resonanz. Vom Grundniveau g wird über die beiden Lichtfelder mit Frequenzen ω_1 und ω_2 die Zwei-Photon Resonanz mit dem Niveau n ausgenutzt. Die Ein-Photon Resonanz zum Niveau m ist für die Phasenanpassung wichtig, da sie hauptsächlich die lineare Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ beeinflusst. Das dritte Lichtfeld mit einer Frequenz von ω_3 , welches Nahresonant zum k Niveau eingestrahlt wird, bestimmt damit die Frequenz ω_4 des erzeugten Lichtes.

ausgedrückt werden [68,70], mit dem reduzierten Planck'schen Wirkungsquantum $\hbar$. Hierbei beschreibt $S(\omega_1, \omega_2)$ die Zwei-Photonen Resonanz und ist durch

$$S(\omega_1, \omega_2) = \frac{1}{\omega_{ng} - (\omega_1 + \omega_2)} \quad (2.51)$$

gegeben, und hat ein Maximum wenn die Zwei-Photonen Resonanz von $\omega_1 + \omega_2$ getroffen wird. Die partiellen Suszeptibilitäten χ_{12} und χ_{34} sind formal Suszeptibilitäten erster Ordnung:

$$\chi_{12} = \sum_m \left(\frac{\mu_{nm}\mu_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_1} + \frac{\mu_{nm}\mu_{mg}}{\omega_{gm} - \omega_2} \right), \quad (2.52)$$

$$\chi_{34} = \sum_k \left(\frac{\mu_{nk}\mu_{kg}}{\omega_{gk} - \omega_4} + \frac{\mu_{nk}\mu_{kg}}{\omega_{gk} + \omega_3} \right). \quad (2.53)$$

Sie hängen von den Dipolmatrixelementen μ_{ij} und den Übergangsfrequenzen ω_{ij} der beteiligten Niveaus ab. Die Summation umfasst dabei alle Zustände, die vom Grundzustand oder dem Zwei-Photonen Niveau aus, über einen Dipolübergang erreicht werden können. Nutzt man die Zwei-Photon Resonanz $S(\omega_1, \omega_2)$ aus, dann wird die Frequenz ω_4 des erzeugten Lichtfeldes durch das dritte eingestrahlte Lichtfeld mit der Frequenz ω_3 festgelegt. Es fällt auf, dass $\chi^{(3)}$ deutlich erhöht werden kann, wenn ω_1 und ω_2 auf die Zwei-Photonen Resonanz optimiert werden, und ω_1 und ω_4 nah an eine Ein-Photon Resonanz gewählt werden. Hierbei sollte man aber beachten, das mit einer nahen Ein-Photon Resonanz auch eine starke Absorption einhergeht.

Um dazu genauere Berechnungen anstellen zu können, müssen zuerst die Niveaus in Quecksilber identifiziert werden, welche vom Grundzustand 6^1S über einen Dipolübergang erreicht werden können. Der Grundzustand hat den Gesamtdrehimpuls $J = 0$. Da zudem der Bahndrehimpuls $L = 0$ und der Spin

$S = 0$ sind, können nach den Auswahlregeln für einen Dipolübergang nur Singulett P-Niveaus erreicht werden. Die intermediäre Kopplung in Quecksilber lässt dabei Übergänge in Triplett P-Niveaus zu [71]. Durch das nur in eine Richtung linear polarisierte Licht reicht es, nur diese eine Komponente des Dipolmatrixelementes zu betrachten. Außerdem ändert sich dann diese Komponente des Gesamtdrehimpuls des Atoms bei einem Dipolübergang nicht $\Delta M_j = 0$. Unter diesen Voraussetzungen lassen sich die Dipolmatrixelemente eines Übergangs von einem Niveau a (mit J) in ein Niveau b (mit J+1) aus den Oszillatorstärken der Übergänge f_{ab} nach [63] mit

$$\mu_{ab} = ea_0 \sqrt{\frac{3 [(J+1)^2 - M_j^2] g_u f_{ab} hc R_\infty}{(J+1)(2J+1)(2J+3) \hbar \omega_{ab}}} \quad (2.54)$$

berechnen. Hier ist e die Elementarladung, a_0 der Bohr-Radius und hcR_∞ die Rydberg-Energie mit der Rydbergkonstante R_∞ . Die im Anhang C.2.1 in Tabelle C.4 aufgelisteten Oszillatorstärken f_{ab} haben große Unsicherheiten, was zu einer Ungenauigkeit von 20 – 30% bei der Berechnung von $\chi^{(3)}$ führt.

Wie auch bei der Berechnung der linearen Suszeptibilität $\chi^{(1)}$, wird bei der Berechnung von $\chi^{(3)}$ auf ein Integral über das Kontinuum verzichtet und dafür der erste autoionisierende Zustand in die Summe gezogen. Grundsätzlich müssen auch hier, wie bei der Berechnung der linearen Suszeptibilität $\chi^{(1)}$, die homogenen und inhomogenen Linienverbreiterungen und die Isotopieverschiebungen des Quecksilbers berücksichtigt werden. Die Beiträge der verschiedenen Isotope werden einzeln berechnet und mit der Häufigkeit gewichtet. Die homogenen Verbreiterungen werden formal durch eine Ersetzung von $\omega_{71S} \rightarrow \omega_{71S} - i\gamma_{71S}$ mit einbezogen, mit der Halbwertsbreite der homogenen Linienbreite γ_{71S} . Die Dopplerverbreiterung wird durch die Verschiebung $\omega_{ij} \rightarrow \omega_{ij}(1 + v_z/c)$ mit anschließender Integration über die Geschwindigkeitsverteilung berücksichtigt. Damit wird Gleichung (2.51) zu

$$S(\omega_1, \omega_2) = \frac{1}{\sqrt{\pi} v_0} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-(v_z/v_0)^2}}{\omega_{71S} + kv_z - i\gamma_{71S} - (\omega_1 + \omega_2)} dv_z, \quad (2.55)$$

wobei hier das 7^1S -Niveau in Quecksilber eingesetzt wurde, da es in diesem Experiment als Zwei-Photonen Resonanz verwendet wird. Die Zwei-Photonen Resonanz 2.55 geht als $|S(\omega_1, \omega_2)|^2$ in die erzeugte Leistung P_4 ein. Das entspricht damit der Form eines Voigt-Profiles, was der typischen Linienform einer sowohl homogen, als auch inhomogen verbreiterten Linie entspricht [71]. Zur vereinfachten Berechnung kann die Plasmadispersionsfunktion

$$Z(\zeta) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-x^2}}{x - \zeta} dx \quad (2.56)$$

verwendet werden [70,72], wenn dabei

$$\zeta = (\omega_1 + \omega_2 + i\gamma_{71S} - \omega_{71S}) \frac{1}{\omega}, \quad (2.57)$$

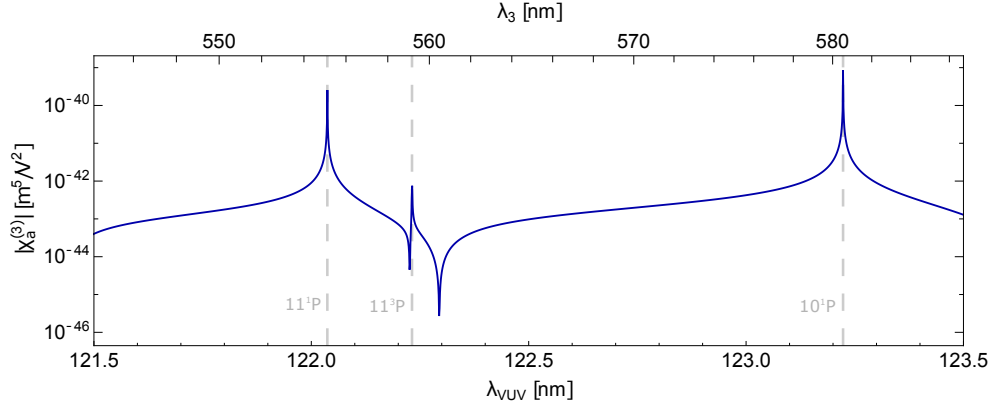


Abbildung 2.9: Nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung. Aufgetragen ist die berechnete nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ gegenüber der erzeugten VUV-Wellenlänge. Zudem ist auf der oberen x-Achse die dazu entsprechend gewählte Wellenlänge des dritten Lichtfeldes dargestellt. Für die UV-Verstimmung zum 6^3P Niveau wurde $\Delta_{UV} = 135$ GHz angenommen. Sowohl bei der 10^1P - als auch der 11^1P -Resonanz besitzt das $\chi^{(3)}$ ein lokales Maximum, was die Effizienz deutlich steigert.

$$\omega = \omega_{7^1S} \frac{v_0}{c} = \frac{\Delta\omega_D}{2\sqrt{\ln 2}}, \quad (2.58)$$

wobei v_0 wie in Gleichung (2.48) definiert ist und $\Delta\omega_D$ die Dopplerbreite des 7^1S Niveaus ist. Die Plasmadispersionsfunktion kann wiederum aus der Fehlerfunktion $\text{erf}(x)$

$$Z(\zeta) = i\sqrt{\pi}e^{-\zeta^2}(1 + \text{erf}(i\zeta)) \quad (2.59)$$

berechnet werden. Die so ausgerechnete nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ ist in Abbildung 2.9 gegenüber der Wellenlänge der VUV-Verstimmung aufgetragen. Dabei wurde die Verstimmung so gewählt, dass die 10^1P - sowie 11^1P -Quecksilber-Resonanz dargestellt ist. Für die Phasenanpassungstemperatur wurde 150°C angenommen, und die UV-Verstimmung zum 6^3P Niveau wurde auf $\Delta_{UV} = 135$ GHz gesetzt. Es ist offensichtlich, dass $\chi^{(3)}$ in der Nähe von dreifachresonantem Vierwellenmischen, was bedeutet dass die dritte Wellenlänge in der Nähe einer Quecksilber-Resonanz ist, um Größenordnungen höher ist als zwischen den Resonanzen. Dies erklärt warum wir die Wellenlänge des dritten fundamentalen Lasers in unserem Experiment nahresonant einstrahlen.

Mit diesem Modell kann nun die erzeugte Leistung P_4 und somit auch die Mischeffizienz $P_4/(P_1P_2P_3)$ in Abhängigkeit von der VUV-Wellenlänge berechnet werden. In Abschnitt 3.6.2 wurde dieses Modell verwendet, und an gemessene Werte der Mischeffizienz angepasst.

Umsetzung im Experiment

Der vorherige Abschnitt hat gezeigt, dass das Vierwellen-Summenfrequenzmischen in Quecksilber eine vielversprechende Methode ist, um ein leistungsstarkes, kontinuierliches und kohärentes Lichtfeld im VUV-Spektrum zu erzeugen.

gen. Für die effizienzsteigernde, dreifach resonante Frequenzkonversion werden Übergänge in Quecksilber gewählt, für die es möglich ist, kontinuierliche Lichtfelder mit hoher Leistung zu erzeugen. In Abbildung 2.5 wurden zwei Termschemen von Quecksilber vorgestellt, welche auf die in unserem Experiment ausgewählten Resonanzen reduziert wurden.

Der Übergang von $6^1S \rightarrow 6^3P$ wird mit einem fundamentalen Lichtfeld bei einer Wellenlänge von 254 nm ausgenutzt, wobei dieses Lichtfeld rotverstimmt (50 GHz - 150 GHz) eingestrahlt wird. Somit findet kein Besetzungstransfer statt welcher das Summenfrequenzmischen verhindern würde, und die Phasenanpassungsbedingung kann erfüllt werden. Die optimale Phasenanpassung wird in unserem Experiment dann mit der Teilchenzahldichte eingestellt, welche durch die Temperatur leicht zugänglich ist.

Das zweite fundamentale Lichtfeld ist so gewählt, dass es zusammen mit dem ersten Lichtfeld, auf der Zwei-Photonen Resonanz $6^1S \rightarrow 6^3P \rightarrow 7^1S$ liegt. Aufgrund der vernachlässigbaren Anregungswahrscheinlichkeit eines Zwei-Photonen Übergangs, kann der auftretende Besetzungstransfer vernachlässigt werden. Damit besitzt das zweite fundamentale Lichtfeld eine Wellenlänge um 408 nm und muss um den gleichen Betrag der Verstimmung des ersten Lichtfeldes, blau verstimmt werden.

Um die Wellenlänge des VUV-Lichtes zu verstimmen, bleibt somit nur das dritte fundamentale Lichtfeld übrig. Allerdings muss auch dort eine Resonanz in Quecksilber ausgenutzt werden, da andernfalls die erzeugte Leistung an VUV-Licht nicht für effiziente Rydberganregungen ausreicht. Wie schon erwähnt wurde, kommen dabei die 10^1P - sowie die 11^1P -Resonanz in Frage, welche mit Licht bei einer Wellenlänge von 580 nm ($7^1S \rightarrow 10^1P$) respektive 555 nm ($7^1S \rightarrow 11^1P$) erreicht werden.

Durch diese Wahl der Resonanzen in Quecksilber, werden beim Summenfrequenzmischen Lichtfelder mit Wellenlängen um 123 nm (10^1P) und 122 nm (11^1P) erzeugt. Mit diesem Licht können Calciumionen von einem der metastabilen $3D$ Zustände in Rydberg-Zustände mit Hauptquantenzahlen um $n \approx 22$ oder $n \approx 52$ anregen (siehe Abbildung 2.4).

Wie am Anfang dieses Kapitels erwähnt wurde, sind die benötigten Wellenlängen der fundamentalen Lichtfelder sehr speziell. Bisher gibt es keine leistungsstarken Quellen die einen direkten Laserprozess ausnutzen, um Lichtfelder mit diesen Wellenlängen zu erzeugen. Die fundamentalen Lichtfelder werden daher aus frequenzverdoppelten infraroten Lichtfeldern erzeugt. Um auch diesen Prozess genauer zu verstehen, soll im folgenden Abschnitt kurz die Methode der Frequenzverdopplung in Kristallen behandelt werden. Im Kapitel 3 wird dann auf dieser Grundlage, der experimentelle Aufbau des Lasersystems beschrieben.

2.3.2 Frequenzverdopplung

Für die Erzeugung der fundamentalen Lichtfelder wird ein weiterer nichtlinearen Effekt, die Frequenzverdopplung, zur Hilfe genommen. Dabei wird ein Lichtfeld mit der Frequenz f_1 in ein Lichtfeld mit doppelter Frequenz $f_2 = 2 \cdot f_1$ umgewandelt, anschaulich werden hier zwei Photonen zu einem Photon kombiniert.

Analog zum Summenfrequenzmischen wird auch für die Frequenzverdopplung ein Medium benötigt, in dem hier allerdings eine Polarisierung zweiter Ordnung

$$P_i^{(2)} = \epsilon_0 \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k \quad (2.60)$$

erzeugt werden kann. Hier wird die nichtlineare Suszeptibilität zweiter Ordnung $\chi^{(2)}$ benötigt, weshalb dieses Medium nicht zentrosymmetrisch sein darf. Löst man die Wellengleichung mit ebenen Wellen, erhält man die Intensität [62]

$$I_{2\omega} = I_{2\omega}^{max} \left[\frac{\left(\sin \frac{\Delta k l}{2} \right)}{\left(\frac{\Delta k l}{2} \right)} \right]^2 \quad (2.61)$$

für das erzeugte kohärente Licht bei der harmonischen Frequenz 2ω . Dabei ist $\Delta k = 2k_1 - k_2$ die Phasenfehlanpassung und l ist die Länge des nichtlinearen Mediums. Um die Konversionseffizienz zu optimieren ist es essentiell die Phasenanpassung zu optimieren. Außerdem kann durch Verwenden von fokussierten Gaußstrahlen und dem Mehrfachdurchgang durch den Kristall die Konversionseffizienz deutlich erhöht werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein System zur Frequenzverdopplung eines Lichtfeldes mit der Wellenlänge um 1160 nm entwickelt, um ein Lichtfeld bei der Wellenlänge 580 nm zu erzeugen. Daher sollen in diesem Kapitel die Grundlagen zur Phasenanpassung in Kristallen, sowie zur Berechnung und Verwendung von Verdopplungsresonatoren in der Bow-Tie-Konfiguration behandelt werden. Für weiterführende Informationen wird auf die Quellen [62,65,73] verwiesen.

Phasenanpassung in Kristallen

Aufgrund der Dispersion läuft in dem Kristall die eingestrahlte fundamentale Strahlung mit der erzeugten harmonischen Strahlung außer Phase und führt somit zu destruktiver Interferenz der erzeugten Strahlung. Diesem Problem kann man entgegenwirken, wenn man den frequenzabhängigen Brechungsindex $n(\omega)$ so verändert, dass $n(\omega) = n(2\omega)$ gilt, wenn die optimale Phasenanpassung bei $\Delta k = 0$ liegt. Diese Bedingung kann in doppelbrechenden Medien erfüllt werden, da dort der Brechungsindex auch von der Polarisierung des Lichtes abhängt. Die verwendeten Kristalle sind solche doppelbrechenden Medien, wobei zwischen uniaxialen und biaxialen Kristallen unterschieden wird.

Ein uniaxialer Kristall besitzt eine optischen Achse $\mathbf{z}$. In dieser Richtung erfährt jede Polarisationskomponente des Lichtfeldes beim Durchqueren des Kristalls, den gleichen Brechungsindex. Ist die Polarisierung des einfallenden Strahles mit Wellenvektor $\mathbf{k}$ senkrecht auf der Ebene $\mathbf{z} \times \mathbf{k}$ wird der Strahl ordentlich (ordinary, o) genannt, liegt er in dieser Ebene so nennt man ihn außerordentlich (extraordinary, e). Der Brechungsindex für einen außerordentlichen Strahl ist durch

$$n_e(\omega, \Theta) = n_o(\omega) \sqrt{\frac{1 + \tan^2 \Theta}{1 + \left(\frac{n_o}{n_e} \right) \tan^2 \Theta}} \quad (2.62)$$

gegeben [73] und hängt von dem Winkel Θ zwischen $\mathbf{z}$ und $\mathbf{k}$ ab. Im Gegensatz dazu ist der Brechungsindex $n_o(\omega)$ des ordentlichen Strahls von diesem Winkel unabhängig. Dies wird für die Phasenanpassung ausgenutzt.

Die Brechungsindizes können mit den vom Kristall abhängigen Sellmeier-Gleichungen, für die entsprechenden Wellenlängen berechnet werden. In [73] sind Sellmeier-Gleichung für einige Kristalle, unter anderem die von uns verwendeten Kristalle Lithium Niobate (LBO) und Beta-Barium Borat (BBO), aufgelistet. Weiter unterscheidet man zwischen Typ-I-Phasenanpassung (ooe-Phasenanpassung) und Typ-II-Phasenanpassung (oee-Phasenanpassung) die sich jeweils in der Polarisierung der einfallenden und ausfallenden Photonen unterscheiden. Beim Typ-I werden zwei Photonen gleicher Polarisierung zu einem Photon mit der dazu senkrechten Polarisierung umgewandelt, wohingegen die zwei fundamentalen Photonen bei Typ-II entgegengesetzte Polarisierung aufweisen. Des Weiteren wird noch zwischen kritischer- bzw. Winkelphasenanpassung, nicht kritischer- bzw. Temperaturphasenanpassung und Quasi-Phasenanpassung unterschieden.

Bei biaxialen Kristallen ist die Abhängigkeit des Brechungsindex von der Propagationsrichtung sowie der Polarisierung des Lichtes komplizierter. Da im Rahmen dieser Arbeit jedoch keine Berechnungen an biaxialen Kristallen benötigt werden, wird auf eine nähere Betrachtung verzichtet und dafür auf [73] verwiesen.

Winkelphasenanpassung

Bei der kritischen Phasenanpassung, die auch Winkelphasenanpassung genannt wird, optimiert man Δk indem man den Winkel zwischen der optischen Achse im Kristall und dem Wellenvektor des einfallenden fundamentalen Lichtfeldes anpasst.

Ein Nachteil bei dieser Methode ist die schlechte Strahlqualität des erzeugten Strahls. Dies kommt daher, dass der Poyntingvektor $\mathbf{S}$ nicht mehr parallel zum Wellenvektor $\mathbf{k}$ ist, wenn sich das außerordentliche harmonische Lichtfeld unter einem Winkel zur optischen Achse ausbreitet. Der Winkel zwischen $\mathbf{S}$ und $\mathbf{k}$ wird Walk-off-Winkel genannt. Somit laufen die ordentlichen Strahlen mit den außerordentlichen Strahlen über die Länge des Kristalls auseinander. Dieser Effekt verschlechtert das Strahlprofil des erzeugten harmonischen Strahls, weswegen man bei dieser Methode immer versucht einen kleinen Phasenanpassungswinkel zu erreichen. Diese Art der Phasenanpassung wird bei der Verdopplung der Lichtfelder um 508 nm (zweite Verdopplung UV-Lasersystem) und 815 nm (blaues-Lasersystem) verwendet.

Temperaturphasenanpassung

Bei der nicht kritischen Phasenanpassung, auch Temperaturphasenanpassung genannt, versucht man analog zur kritischen Phasenanpassung Δk durch Verändern der Brechungsindizes n_o und n_e zu optimieren. Bei manchen Kristallen ist dies einfach durch Verändern der Kristalltemperatur möglich. Der Vorteil dieser Methode ist, dass der Walk-Off Winkel wegfällt, da die Orientierung des Kristalls dementsprechend gewählt werden kann. Somit wird das Strahlprofil

des harmonischen Lichtes nicht verschlechtert. Diese Methode funktioniert allerdings nicht mit allen Kristallen und der Wellenlängenbereich in dem diese Phasenanpassung durchführen werden kann ist eingeschränkt. Diese Methode verwenden wir bei der Verdopplung unserer Lichtfelder um 1160 nm (gelbes Lasersystem) und 1015 nm (erste Verdopplung UV-Lasersystem).

Quasi-Phasenanpassung

Wenn keine der oben genannten Methoden möglich ist, oder das erzeugte Licht die gleiche Polarisation wie das fundamentale Lichtfeld haben soll, bietet sich die Quasi-Phasenanpassung an. Dabei wird die Orientierung der optischen Achse im Kristall in periodischer Abfolge um 180° gedreht, sodass nach der Kohärenzlänge $l_K = \pi/\Delta k$ das harmonische Lichtfeld nicht anfängt destruktiv zu interferieren, sondern die Intensität weiterhin steigt. Die Periodenlänge L_P muss hier allerdings an die Wellenlänge des harmonischen Lichtfeldes angepasst werden [62]

$$L_P = \frac{2\pi}{\Delta k} = \frac{\lambda_{2\omega}}{|n_e(\omega) - n_e(2\omega)|}. \quad (2.63)$$

Da der Kristall für jede Wellenlänge speziell hergestellt werden muss, ist die Flexibilität dieser Methode sehr gering. Die Phasenanpassung ist mit der Temperatur des Kristalls über einen kleinen Wellenlängenbereich optimierbar. Diese Methode wird bei der Verdopplung der Lichtfelder mit der Wellenlänge von 1110 nm (grünes-Lasersystem) und auch bei der Verdopplung von 1015 nm (erste Verdopplung UV Lasersystem) verwendet.

Frequenzverdopplung mit fokussierten Gaußstrahlen

Die Intensität des erzeugten harmonischen Lichtfeldes ist proportional zum Quadrat der Intensität des fundamentalen Lichtfeldes. Somit kann die Konversionseffizienz bei der Frequenzverdopplung deutlich erhöht werden, wenn das fundamentale Lichtfeld in den Kristall fokussiert wird. Dazu muss das Modell, wie im Fall des Vierwellenmischen, angepasst werden. Dies wurde von Boyd und Kleinmann durchgeführt, und daher soll hier nur auf deren Arbeit [74] verwiesen werden.

Sie fanden heraus, dass der Fokusparameter $\xi = L/b$ die kritische Größe zur Maximierung der Konversionseffizienz darstellt. Dieses ξ wird auch als Boyd-Kleinman-Parameter bezeichnet und ist sowohl von der Kristalllänge L als auch von der Fokusgröße w_0 , die mit dem b -Parameter zusammenhängt ($b = 2\pi \cdot w_0^2/\lambda$), abhängig.

Chen und Chen haben eine analytische Funktion entwickelt [75], mit der man das Optimum für ξ sehr einfach berechnen kann. In diese Funktion fließt mit dem Doppelbrechungsparameter $B = \rho/2\sqrt{L \cdot k_{fund}}$ der Walk-Off Winkel ρ ein. Sie erhalten

$$\xi = \frac{L}{b} = \frac{2,84 + 1,39 \cdot B^2}{1 + 0,1 \cdot B + B^2}, \quad (2.64)$$

um das Optimum der Länge des Kristalls, oder aber bei bekannter Länge des Kristalls, die Fokusgröße des fundamentalen Strahls zu bestimmen. Für den

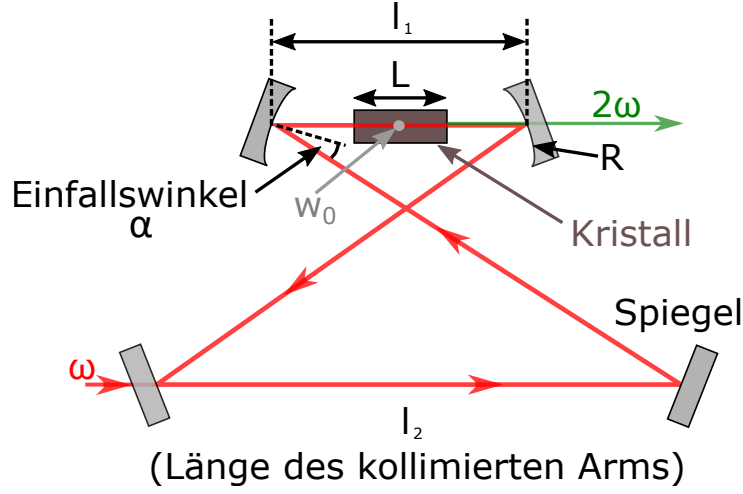


Abbildung 2.10: Resonator in Bow-Tie Konfiguration. In dieser Abbildung ist die Skizze eines Verdopplungsresonators in der Bow-Tie Konfiguration zu sehen, bei dem nicht kritische Phasenanpassung verwendet wird. Dabei sind l_1 und l_2 die Längen der beiden Arme, und R ist der Krümmungsradius der Spiegel. Die Länge des Kristalls ist mit L bezeichnet, der Fokus w_0 liegt in der Mitte des Kristalls und der Einfallswinkel auf die gekrümmten Spiegel ist mit α eingezeichnet.

Fall der nicht kritischen Phasenanpassung, wird in Gleichung (2.64) der Doppelbrechungsparameter $B = 0$ gesetzt.

Frequenzverdopplung in Resonatoren

Die Konversionseffizienz kann auch dadurch erhöht werden, dass das fundamentale Lichtfeld mehrfach durch den Kristall geführt wird. Dazu wird ein Verdopplungsresonator mit vier Spiegeln in der doppel-Z oder auch „Bow-Tie“-Konfiguration verwendet. Um einen Verdopplungsresonator aufzubauen, muss dieser unter Beachtung des Boyd-Kleinmann-Parameters mit Hilfe des ABCD-Matrix Formalismus berechnet werden. Mit diesem Formalismus kann die Ausbreitung eines Gaußstrahls berechnet werden. Für die Theorie zu Gaußstrahlen und den ABCD-Matrizen wird an dieser Stelle auf [65] verwiesen.

Die ABCD-Matrix für einen Verdopplungsresonator in der doppel-Z oder Bow-Tie Konfiguration und nicht kritischer Phasenanpassung mit einem 90° geschnittenem Kristall, wird durch

$$\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} = \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & \frac{L}{2n} \\ 0 & 1 \end{pmatrix}}_{\text{Kristallmitte} \rightarrow \text{Spiegel}} \cdot \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & \frac{l_1-L}{2} \\ 0 & 1 \end{pmatrix}}_{\text{Reflexion}} \cdot \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{2}{R} & 1 \end{pmatrix}}_{\text{Reflexion}} \cdot \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & l_2 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}}_{\text{langer Arm}} \cdot \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{2}{R} & 1 \end{pmatrix}}_{\text{Reflexion}} \cdot \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & \frac{l_1-L}{2} \\ 0 & 1 \end{pmatrix}}_{\text{Spiegel} \rightarrow \text{Kristallmitte}} \cdot \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & \frac{L}{2n} \\ 0 & 1 \end{pmatrix}}_{\text{Reflexion}} \quad (2.65)$$

berechnet. Der Einfallswinkel α wurde in den Matrizen noch nicht miteinbezogen, und so müssen die beiden Matrizen mit den Krümmungsradien R , je nach Betrachtungsebene entsprechend angepasst werden: ($R_{\text{tangential}} = R \cdot \cos(\alpha)$, $R_{\text{sagittal}} = R / \cos(\alpha)$). In Abbildung 2.10 sind die benötigten Größen eingezeichnet. Da der Strahl nach einem Umlauf im Resonator mit sich kongruent ist, kann mit dieser Matrix die Fokusgröße im Kristall berechnet werden. Dabei wird l_1 und l_2 solange angepasst, bis der Wert des Fokus mit dem nach dem Boyd-Kleinmann-Parameter berechneten Wert übereinstimmt. Der Einfallswinkel α auf den gekrümmten Spiegel sollte für einen kleinen und damit stabileren Resonator möglichst klein gewählt werden. Die Krümmungsradien der beiden fokussierenden Spiegel legen dabei schon ungefähr die Länge des fokussierenden Arms fest, wobei die Fokusposition der Spiegel mit $f \approx R/2$ abgeschätzt werden können.

Um nun noch die Überhöhung in dem Resonator zu optimieren, muss die Impedanz angepasst werden. Dazu wählt man eine zu den Verlusten passende Reflektivität des Einkoppelspiegels. Die linearen Verluste entstehen durch die Spiegeloberflächen R , Transmission an den Kristalloberflächen T sowie Absorptions- und Streuverluste A im Kristall. Die Verluste sind dann durch $V_{\text{lin}} = 1 - T_{\text{lin}} = 1 - (R^3 T^2 (1 - A))$ gegeben, unter der Annahme dass die Spiegel die gleiche Reflektivität aufweisen. Der optimale Transmissionsgrad des Einkoppelspiegel wird nach [76] durch

$$T_{\text{ein}} = \frac{V_{\text{lin}}}{2} + \sqrt{\frac{V_{\text{lin}}^2}{4} + \gamma P_1} \quad (2.66)$$

gegeben, wobei P_1 die einlaufende Leistung und

$$\gamma = P_{2\omega} / P_{\omega}^2 = \frac{2\omega^3 \cdot d_{\text{eff}}^2 \cdot L}{\pi \epsilon_0 n_1 n_2 c^4} h, \quad (2.67)$$

die Konversionseffizienz ist [28]. Dabei ist ω die Frequenz des fundamentalen Lichtfeldes, d_{eff} ist der effektive nichtlineare Parameter der in den Spezifikationen des Kristalls gegeben ist und $h = 1,068 / (1 - 0,7\sqrt{B} + 1,62B)$ [75].

EXPERIMENTELLER AUFBAU DER VUV-LASERQUELLE

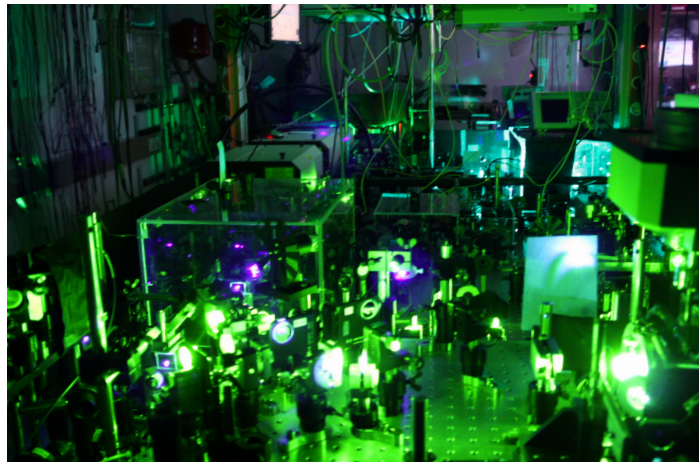


Abbildung 3.1: Bild des VUV-Lasersystems. Es ist ein Ausschnitt aus den drei fundamentalen Lasersystemen im ultravioletten, blauen und grünen Frequenzspektrum zu sehen.

Im Kapitel 2.3 wurde die Methode des nichtlinearen Vierwellen-Summenfrequenzmischen vorgestellt, welche im Rahmen dieser Arbeit verwendet wurde um Strahlung im vakuum-ultravioletten Frequenzbereich (VUV) zu erzeugen. Dabei werden die drei fundamentalen Lichtfelder so gewählt, dass die erzeugte VUV-Leistung maximiert wird. Dies wird durch Ausnutzen von drei Resonanzen in Quecksilber (6^3P , 7^1S , 10^1P oder 11^1P) erreicht. In Abbildung 3.2 ist nochmal das Termschema von Quecksilber dargestellt, welches auf die verwendeten Resonanzen reduziert wurde. Wie schon mehrfach erwähnt wurde, wird somit kontinuierliche Laserstrahlung bei den Wellenlängen von 254 nm, 408 nm und 555 nm beziehungsweise 580 nm benötigt, um kontinuierliche VUV-Strahlung mit einer Wellenlänge um 122 nm und 123 nm zu erhalten.

Für erfolgreiche Rydberganregungen, ist der Anspruch an die VUV-Lichtquelle sehr hoch. Es muss kontinuierlicher Laserbetrieb mit einer hohen Leistung möglich sein und die spektrale Linienbreite sollte zudem möglichst klein sein.

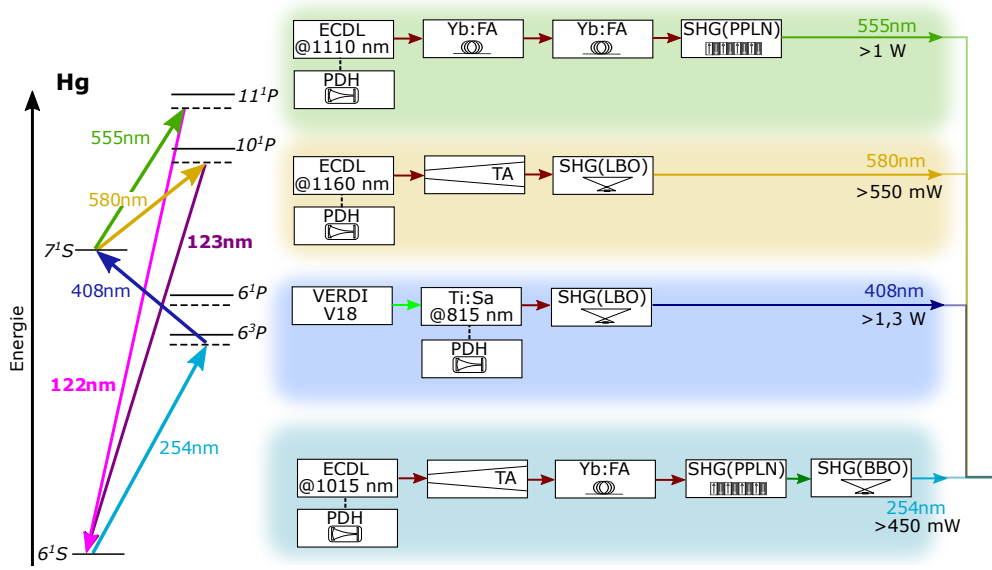


Abbildung 3.2: Überblicksskizze des gesamten VUV-Lasersystems.

Auf der linken Seite ist ein reduziertes Termschema von Quecksilber dargestellt, in das die ausgenutzten Übergänge mit der entsprechenden Wellenlänge eingezeichnet sind. Mit diesem Lasersystem ist es möglich kohärente Laserstrahlung mit einer Wellenlänge um 122 nm sowie 123 nm zu erzeugen. Auf der rechten Seite ist der Aufbau der einzelnen Lasersysteme für die Erzeugung der fundamentalen Lichtfelder dargestellt. ECDL = External-Cavity Laserdiode (Laserdiode mit externem Resonator), Yb:FA = Ytterbium Fiberamplifier (Faserverstärker), SHG = second-harmonic generation (Frequenzverdopplung), LBO = Lithiumtriborat, BBO = Beta-Bariumborat, PPLN = periodisch gepolter Lithiumniobat, PDH = Frequenzstabilisierung mit Pound-Drever-Hall Technik, Ti:Sa = Titan:Saphir-Laser, TA = tapered Amplifier (Trapezverstärker).

Das System muss sehr zuverlässig laufen, und die Intensität sollte äußerst stabil sein. Diese Eigenschaften des VUV-Lichtfeldes übertragen sich direkt auf die drei fundamentalen Lichtfelder. Diese fundamentalen Lichtfelder werden durch Frequenzverdopplung von infraroten Lichtfeldern erzeugt, wobei die theoretischen Grundlagen dazu in Abschnitt 2.3.2 ausführlich diskutiert wurden. Da es zu Beginn dieses Experimentes nicht möglich war, kommerzielle Systeme mit ausreichend Leistung und den benötigten Wellenlängen zu erwerben, ist die Laserentwicklung ein Schwerpunkt der Arbeitsgruppe.

In der Abbildung 3.2 ist eine schematische Skizze des gesamten Lasersystems für die Erzeugung von kontinuierlicher und kohärenter VUV-Strahlung ausgeführt. Dieses wurde über die letzten Jahre für eine Emissionswellenlänge um 121,56 nm sukzessive verbessert und weiterentwickelt. Ein Schwerpunkt dieser Arbeit war es daher, die bereits bestehende VUV-Quelle so umzubauen und zu optimieren, dass die Rydberganregung von $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen möglich wurde. Dazu wurden unter anderem zwei neue Lasersysteme mit Laserstrahlung bei Wellenlängen von 555 nm und 580 nm entwickelt und in das bestehende System integriert, sowie eine Frequenzstabilisierung aller Lasersysteme implementiert.

Dieser sehr aufwendige Umbau wurde hauptsächlich in Zusammenarbeit mit Matthias Stappel [77] und Daniel Kolbe [35] durchgeführt.

Im Rahmen der Dissertation wurde insbesondere die Frequenzstabilisierung und gleichzeitige Durchstimmbarkeit der verwendeten Laserdioden sowie das fundamentalen Lasersystems für die Erzeugung eines Lichtfeldes mit der Wellenlänge von 580 nm entwickelt und in das Experiment integriert. Weiter wurde an der Leistungssteigerung aller fundamentalen Lichtfelder, der Strahlformung insbesondere des VUV-Strahls und der Verbesserung der Justageanfälligkeit im Experiment gearbeitet.

Im folgendem Kapitel werden zum einen die Lasersysteme der fundamentalen Lichtfelder detailliert beschrieben, wobei hauptsächlich auf das aktuell verwendete Lasersystem eingegangen wird. Zum anderen soll auf den experimentelle Aufbau der VUV-Erzeugung, sowie die Charakterisierung des VUV-Strahls eingegangen werden.

3.1 Lasersystem für Strahlung bei 254 nm Wellenlänge

Die erste Entwicklungsstufe des Lasersystem zur Erzeugung von kohärenter Strahlung bei einer Wellenlänge um 254 nm, wurde in [28,29] veröffentlicht. Dabei wurde ein Yb:YAG (Ytterbium:Yttrium-Aluminium-Granat) Scheibenlaser¹ verwendet, um ein Lichtfeld bei der Wellenlänge von 1014,9594 nm, mit einer Leistung von 5 W, zu erzeugen. Da diese Wellenlänge allerdings eher unüblich für dieses Lasermedium ist, war die Lebensdauer der Laserscheiben im Durchschnitt auf 2 Jahre begrenzt. Aufgrund mangelnder Verfügbarkeit der benötigten Laserscheiben, wurde dieses System durch das im folgenden Abschnitt vorgestellte Lasersystem ersetzt [41].

Der Ausgangspunkt des neuen Lasersystems bildet eine Laserdiode bei einer Wellenlänge um 1015 nm, die mit Hilfe von Faserverstärkern sukzessive bis zu einer Leistung von 10 W verstärkt wird. Die Frequenz dieses kohärenten Lichtfeldes wird durch zwei Frequenzverdopplungen vervierfacht, um Licht bei einer Wellenlänge von 254 nm zu erhalten. Dazu wurden ursprünglich zwei Verdopplungsresonatoren verwendet (auch bei den Veröffentlichungen [61,78]), wobei der erste Verdopplungsresonator im Rahmen dieser Arbeit durch einen periodisch gepolten Kristall ersetzt wurde. Dies führt zu einer deutlich höheren Zuverlässigkeit des gesamten Systems, und verringert den täglichen Justageaufwand enorm. Ein sehr detaillierten Überblick über das gesamte UV-Lasersystem, wird in den Abbildungen 3.3 und 3.4 gegeben. Dabei ist in

- Abbildung 3.3 a) der Aufbau der Laserdiode (Abschnitt 3.1.1),
- in Abbildung 3.3 b) der Trapezverstärker (Abschnitt 3.1.2),
- in Abbildung 3.3 c) der cryogene Faserverstärker (Abschnitt 3.1.3)

¹(1030-50, ELS)

3. EXPERIMENTELLER AUFBAU DER VUV-LASERQUELLE

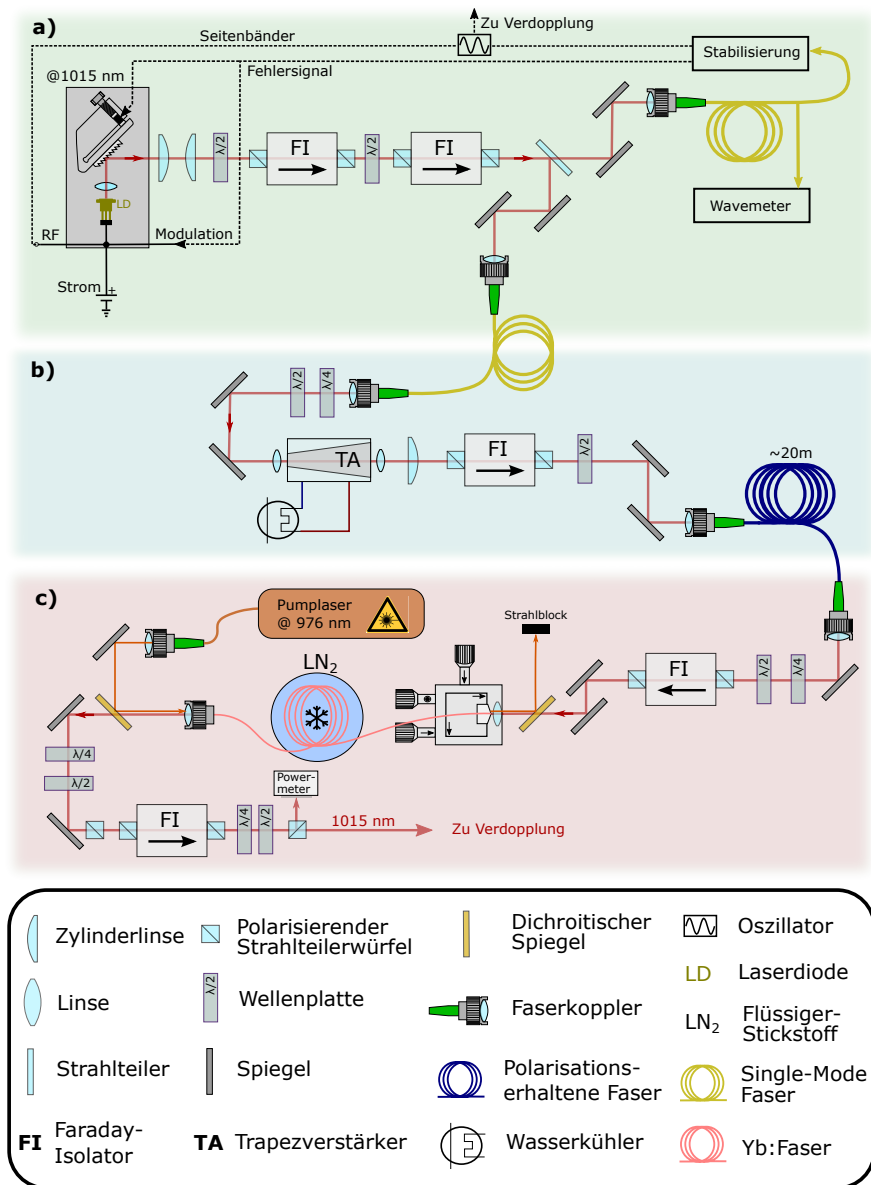


Abbildung 3.3: Detaillierte Skizze vom Aufbau des UV-Systems (Teil 1). a) Aufbau der in [40] weiterentwickelten Laserdiode, wobei über den RF-Eingang Seitenbänder auf das Lichtfeld moduliert werden. b) Aufbau des Trapezverstärkers [79]. c) Aufbau des kryogenen Faserverstärkers, mit einer Ausgangsleistung von > 10 W.

- und in Abbildung 3.4 die verschiedenen experimentellen Aufbauten für die Frequenzverdopplung (Abschnitt 3.1.4 und 3.1.5)

aufgeführt. Um eine möglichst schmale spektrale Linienbreite für die UV-Strahlung zu erhalten, wird die Laserdiode zudem auf einem Referenzresonator stabilisiert. In Abschnitt 3.5 werden entsprechende Linienbreitenmessungen gezeigt.

3.1. Lasersystem für Strahlung bei 254 nm Wellenlänge

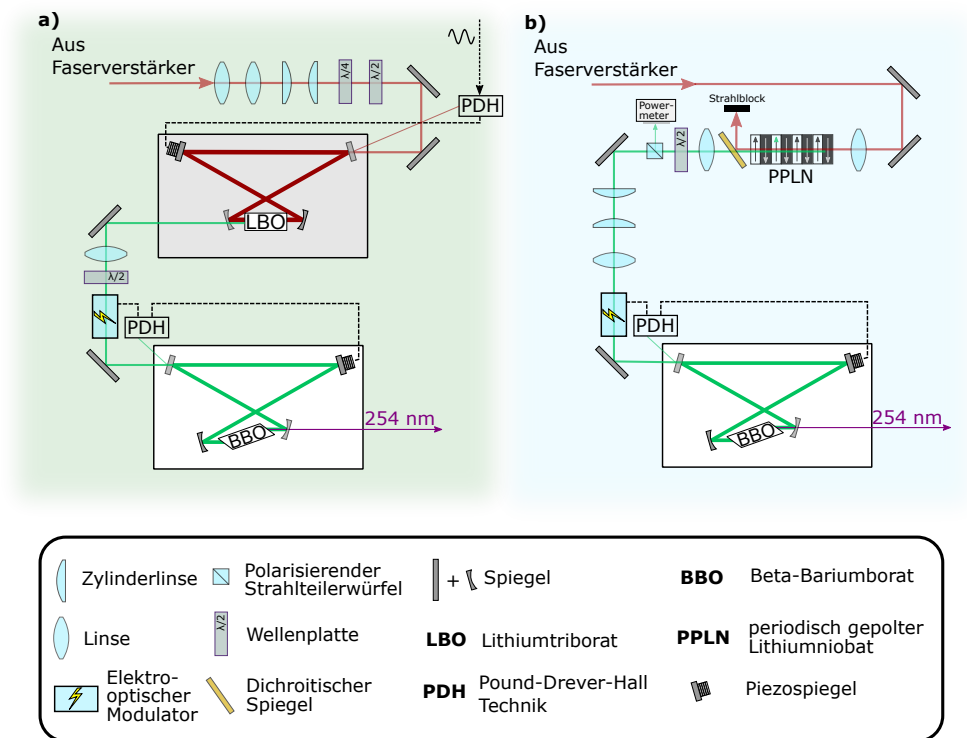


Abbildung 3.4: Detaillierte Skizze vom Aufbau des UV-Systems (Teil 2). In Teil a) ist der Verdopplungsaufbau skizziert, bei dem zwei Verdopplungsresonatoren verwendet werden. In Teil b) ist der Aufbau gezeigt, bei dem der erste Resonator durch einen, im einmal-Durchgang verwendeten, periodisch gepolten Kristall ersetzt wurde. Für nähere Informationen wird auf den Text verwiesen.

3.1.1 Laserdiode mit einer Wellenlänge um 1015 nm

In Abbildung 3.5 ist eine gerendertes Bild des verwendeten Laserdiodenaufbaus gezeigt, wobei sich dieser am Ricci-Hänsch-Design orientiert [80]. Es handelt sich hierbei um eine Laserdiode mit einem externen Resonator, der in der Littrow-Anordnung aufgebaut ist. Dabei bilden zum einen die hochreflektive Rückseite der Laserdiode, zum anderen das Beugungsgitter, die beiden Resonatorspiegel. Sowohl durch die Änderung des Gitterwinkels und durch variieren des Diodenstroms, als auch durch die Veränderung der Diodentemperatur ist es möglich, die Wellenlänge des emittierten Lichtes zu modulieren.

Als Ausgangspunkt des UV-Lasersystem wurde eine Laserdiode² mit einer Emissionswellenlänge von 1014 nm - 1015 nm verwendet. Erfahrungsgemäß hatte diese Diode eine durchschnittliche Lebensdauer von einem Jahr. Da diese Laserdiode allerdings seit 2016 nicht mehr erhältlich ist, wird sie in Zukunft durch eine vergleichbare Diode³ ersetzt. Der verwendete Diodenstrom liegt bei 130 mA und variiert je nach verwendeter Wellenlänge.

²(EYP-RWE-1060-10020-0750-SOT01-0000, Eagleyard Photonics)

³(EYP-RWE-1060-10020-1500-SOT02-0000, Eagleyard Photonics)

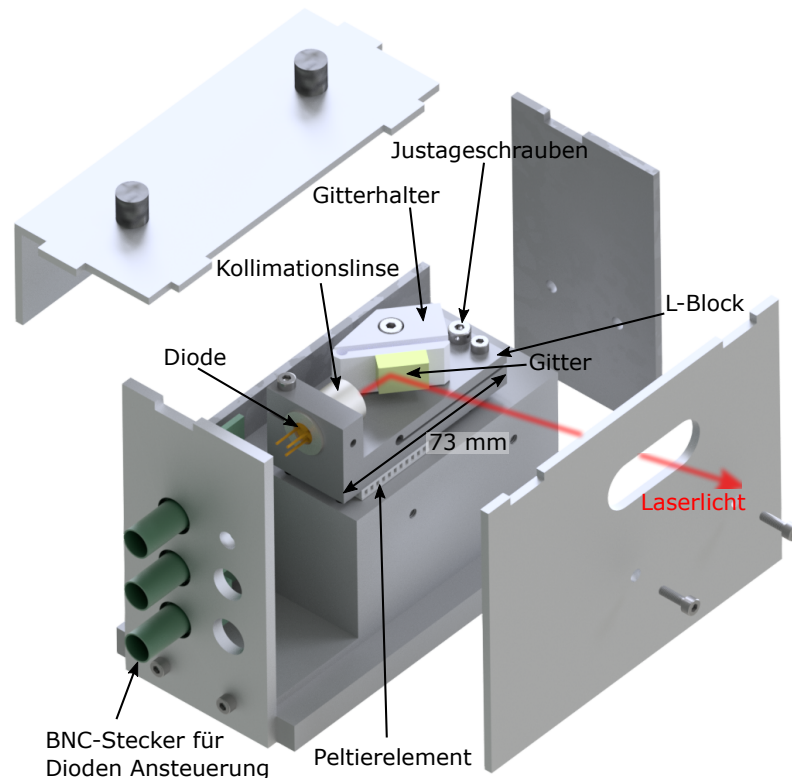


Abbildung 3.5: Laserdioden-Aufbau für 1015 nm-Laserdiode. Es ist ein gerendertes Bild des Laserdioden-Aufbaus aus dem UV-Lasersystem dargestellt. Die Laserdiode wird in der Littrow-Anordnung betrieben. Für weitere Informationen wird auf den Text verwiesen.

Für die Kollimation des emittierten Laserstrahls wird ein Laserdioden-Kollimator⁴ der Firma Schäfter+Kirchhoff verwendet, in dem sowohl die Diode als auch eine Kollimationslinse mit einer Brennweite von $f = 3,1 \text{ mm}$ gehalten wird.

Bei dem verwendeten Gitter handelt es sich um ein Sinusgitter⁵, welches 1500 Linien/mm aufweist. Das Gitter kann Mithilfe der Justageschrauben verkippt werden, sodass die Rückkopplung des reflektierten Lichtes in die Diode, optimiert werden kann. Über die im Gitterblock eingeführte Piezomechanik, kann der Gitterwinkel und somit auch die Wellenlänge des emittierten Lichtes mit einer Geschwindigkeit von $< 5 \text{ kHz}$ angesteuert werden.

Die Temperatur der Laserdiode wird durch das Peltierelement, welches unter dem L-Block befestigt ist, aktiv auf eine Temperatur zwischen $20^\circ\text{C} - 23^\circ\text{C}$ stabilisiert.

Wie in der Abbildung 3.3 a) gezeigt wurde, wird die Laserdiode durch zwei Faraday-Isolatoren vor Rückreflexen geschützt. Es handelt sich dabei einmal um den Isolator (IO-5-1030-HP, Thorlabs) mit einer spezifizierten Isolation von 38–44 dB und zum anderen um (Model 716, CONOPTICS) mit einer spezifizierten

⁴(20P-A3.1-03, AR 1050-1550 nm, Schäfter+Kirchhoff)

⁵(263232-9051-624, Carl Zeiss)

Isolation von 56 – 60 dB. Erfahrungsgemäß wird dieser hohe Isolationsschutz vor allem dann wichtig, wenn die spektrale Linienbreite des emittierten Lichtes durch die aktive Frequenzstabilisierung verringert werden soll.

Aus dem Laserdiodenaufbau wird Licht bei einer Wellenlänge von 1015 nm, mit einer Leistung von 50 mW - 60 mW emittiert. Nach der Strahlformung, den Faraday-Isolatoren sowie einem Strahlteiler und der Fasereinkopplung stehen 18 mW-23 mW vor dem Trapezverstärker zur Verfügung. Das am Strahlteiler reflektierte Licht wird zum einen für die dauerhafte Kontrolle der Wellenlänge an einem Wavemeter⁶ verwendet, zum anderen wird ein Teil des Lichtes für die Frequenzstabilisierung benötigt.

Stabilisierung auf einen Referenzresonator

Durch die aktive Frequenzstabilisierung sollen die fundamentalen Lichtfelder eine konstante Wellenlänge und zusätzlich eine schmale spektrale Linienbreite aufweisen. Nur so wird es in Zukunft möglich sein, eine genügend hohe Anregungsrate zu erreichen damit kohärente Rydberganregungen möglich werden. Im Abschnitt 3.5 wird näher auf den Aufbau sowie die Technik, der bei allen drei Laserdioden verwendeten Frequenzstabilisierung, eingegangen. An dieser Stelle sollen nur kurz auf die explizit diesen Laserdiodenaufbau betreffenden Teile eingegangen werden, sowie eine nähere Charakterisierung der Diode gegeben werden.

In der Arbeit [40] wird näher auf die Ansteuerungselektronik der Laserdioden eingegangen, die es ermöglicht den an der Laserdiode angelegten Strom über ein JFET (Sperrschicht-Feldeffekttransistoren) zu modulieren.

Eine zusätzliche Möglichkeit der Fernspeisung auch „Bias-T“ genannt, lässt eine RF-Modulierung des Stromsignals im MHz-Bereich zu. Die damit erzeugbaren Seitenbänder werden bei der aktiven Frequenzstabilisierung, welche die Pound-Drever-Hall Technik [81,82] verwendet, benötigt. Das Erzeugen von Seitenbändern über die Fernspeisung wurde bei dem Aufbau mit zwei Verdopplungsresonatoren (siehe Abbildung 3.4 a)) für das Aufprägen von Seitenbändern verwendet. Somit konnten diese Seitenbänder sowohl für die Stabilisierung der Diode auf den Referenzresonator, als auch für das Stabilisieren des Verdopplungsresonators verwendet werden. Im aktuellen Verdopplungsaufbau (siehe Abbildung 3.4 b)) unter Verwendung des periodisch gepolten Kristalls, wird für die Seitenbanderzeugung ein elektro-optischer Modulator (EOM) vor dem Referenzresonator eingesetzt.

Für eine Frequenzstabilisierung bei der die spektrale Linienbreite des Lichtes abnimmt, ist nicht nur eine schnelle Regelektronik ($> \text{MHz}$) essentiell. Zudem muss auch die Frequenzantwort der Laserdiode bei einer Modulation des Diodenstroms betrachtet werden. Dazu wurde eine Messung an der Diode durchgeführt, welche in Abbildung 3.6 in Form eines Bode-Diagramms dargestellt ist. Für diese Messung wird dem Laserdiodenstrom über den Modulationseingang der Laserdiodenelektronik, ein sinusförmiges Steuersignal aufgeprägt. Das von der Laserdiode emittierte Licht wird in einen temperaturstabilisierten Resonator mit einer kleinen Finesse (< 100) eingekoppelt. Die Emissionswellenlänge

⁶(WS/U-10U, HighFinesse)

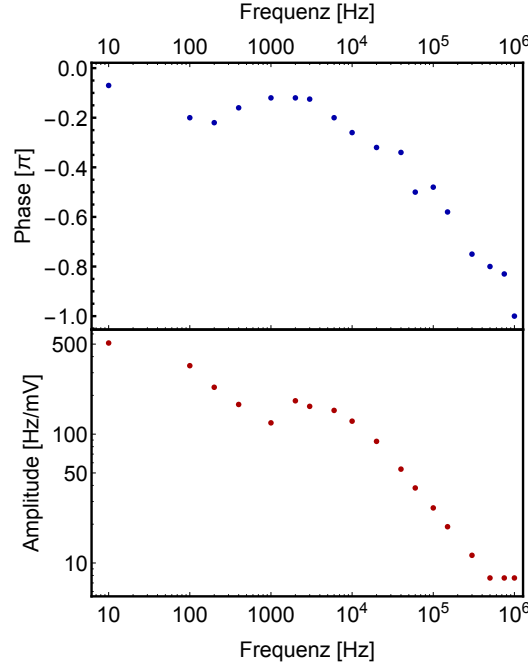


Abbildung 3.6: Frequenzantwort der Laserdiode mit einer Emissionswellenlänge von 1015 nm. Bode-Diagramm der Frequenzantwort der Laserdiode (EYP-RWE-1060) von eagleyard Photonics. Für die Messung wurde ein sinusförmiges Steuersignal auf den Diodenstrom moduliert. Der kritische Phasenversatz von π , tritt bei dieser Diode erst bei Frequenzen >1 MHz auf.

der Laserdiode ist dabei so eingestellt, dass sie mit der Frequenz einer Flanke von einer Resonanz des Resonators übereinstimmt. Das transmittierte Signal wird mit einer Photodiode detektiert, und mit dem Steuersignal auf einem Oszilloskop verglichen.

Der dabei auftretende Phasenversatz beider Signale ist im oberen Teil des Diagramms in Abbildung 3.6 dargestellt. Im unteren Teil des Diagramms ist die Modulationsweite der Laserdiodenfrequenz [Hz/mV], in Abhängigkeit zur Modulationsfrequenz dargestellt. Hierbei muss beachtet werden, dass der gemessene Phasenversatz nicht ausschließlich von der Laserdiode herrührt, sondern der Phasenversatz der Laserdiodenelektronik in dieser Messung enthalten ist. Ein Phasenversatz um π , zwischen dem Steuersignal sowie der Frequenzantwort der Laserdiode, verhindert eine konstruktive Rauschunterdrückung bei den entsprechenden Frequenzen. Tritt dieser Phasenversatz schon bei sehr kleinen Frequenzen auf ($\ll 1$ MHz), ist eine erfolgreiche Frequenzstabilisierung nicht möglich. Die Regelbandbreite der Stabilisierung hängt somit auch von diesem Phasenversatz ab.

Bei der Messung der Laserdiode (EYP-RWE-1060) mit einer Emissionswellenlänge von 1015 nm, tritt dieser kritische Phasenversatz erst bei einer Modulationsfrequenz um 1 MHz auf. Die mögliche Regelbandbreite reicht somit aus, um die Linienbreite dieser Diode effektiv zu verringern. Messdaten der

Linienbreite mit und ohne Frequenzstabilisierung, sind im Abschnitt 3.5.2 gegeben. Die dabei ermittelten spektralen Linienbreiten sind 314(38) kHz für die nicht stabilisierte, und 158(34) kHz für die stabilisierte Laserdiode.

Eine weitere Möglichkeit um die spektrale Linienbreite deutlich zu verringern ist die Methode des „Injektion-Locking“ [83]. Dabei wird ein Lichtfeld mit einer schmalen spektralen Linienbreite in den Laserdiodenresonator eingekoppelt, was zu einer ebenfalls schmalen spektralen Linienbreite des von der Laserdiode emittierten Lichts führt. Bei der mit einer Wellenlänge von 1015 nm-Laserdiode konnte diese Methode erfolgreich angewandt werden. Dabei wurde die Slave-Diode⁷ auf einen Referenzresonator stabilisiert (siehe Kapitel 3.5), und das vom Resonator transmittierte und damit zusätzlich frequenzgefilterte schmalbandige Signal, in die Master-Diode⁸ induziert. Damit konnte die spektrale Linienbreite des Lichtfelds der Master-Diode auf 35-60 kHz verringert werden. Dieser Wert wurde lediglich aus dem Fehlersignal abgeschätzt, da für diesen Aufbau keine Linienbreitenmessung vorliegen. Auch wenn mit dieser Methode eine sehr schmale spektrale Linienbreite erreicht wurde, konnte sich diese Stabilisierung aufgrund der schlechten Langzeitstabilität sowie dem täglichen Justageaufwand nicht durchsetzen. Sollte in Zukunft eine vergleichbar schmale Linienbreite des UV-Lasersystems notwendig sein, könnte dieses Systems durch eine aktive Stabilisierung verbessert werden, wie sie in [84] vorgeschlagen wird.

3.1.2 Trapezverstärker für Licht einer Wellenlänge um 1015 nm

Die Leistung des aus der Diode emittierten Lichtfeldes reicht nicht aus, um damit einen Faserverstärker effizient betreiben zu können. Daher wird einen Vorverstärker unter der Verwendung eines Halbleiter Trapezverstärkers⁹ (TA) verwendet. Der Verstärker wurde im Rahmen der Arbeit [79] aufgebaut. Der TA kann abhängig von der benötigten Ausgangsleistung bei einem Strom von 4 A - 5 A betrieben werden. Im normalen Betrieb wird hier ein Strom von 4,2 A verwendet, und damit das Lichtfeld bei einer Wellenlänge um 1015 nm, auf eine Leistung von bis zu 1,3 W verstärkt. Dieses Licht wird in eine 20 m lange polarisationserhaltende Single-Mode Faser¹⁰ eingekoppelt, und in den Faserverstärker geführt. Dort steht dieses Lichtfeld als Signal-Licht, mit einer Leistung von bis zu 500 mW zur Verfügung.

3.1.3 Kryogener Faserverstärker für Licht mit einer Wellenlänge um 1015 nm

Wie schon in der Einleitung erwähnt wurde, ist eine hohe Leistung der fundamentalen Lichtfelder notwendig. Aus diesem Grund wird das Lichtfeld aus dem Trapezverstärker in einem Faserverstärker weiter verstärkt.

⁷Die Slave-Diode liefert hierbei das benötigte schmalbandige Lichtfeld.

⁸Die Master-Diode ist die mit diesem Verfahren zu stabilisierende Diode.

⁹(EYP-TPA-0808-01000-4006-CMT04-0000, Eagleyard Photonics)

¹⁰(P3-980PM-FC, Thorlabs)

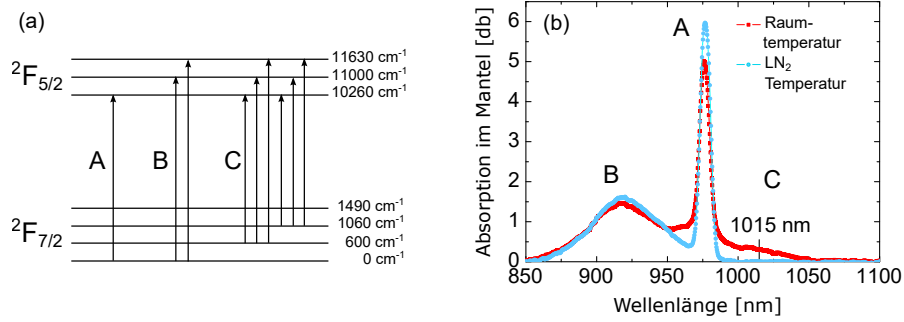


Abbildung 3.7: Absorption einer mit Ytterbium dotierten Faser. Im Teil a) ist der relevante Teil des Energieniveauschema von Ytterbium dargestellt. Im Abbildungsteil b) sind Absorptionsspektren einer mit Ytterbium dotierten Faser, sowohl in Raumtemperatur (23°C) als auch bei -196°C , gezeigt. Abbildung wurde in [41] veröffentlicht.

Der Aufbau dieses Verstärkersystems wurde im Rahmen der Arbeit [33] begonnen und wird seitdem stetig weiterentwickelt [41].

Theoretische Grundlagen von Faserverstärkern

Im folgenden Abschnitt soll eine kurze Einführung in die Technik von Faserverstärkern gegeben werden. Der klare Vorteil von Faserverstärkern gegenüber anderen Verstärkersystemen ist das gute Strahlprofil des Ausgangslichtes, welches durch das Führen von Licht in einer Faser erreicht wird.

Es wird eine für Faserverstärker typische „large-mode-area double-clad“-Faser (LMA-Fasern) verwendet. Dabei wird das Signal Licht durch total Reflexion in dem Faserkern mit einem Brechungsindex n_K geführt. Dieser Kern wird mit einer seltenen Erde dotiert, welche als aktives Lasermedium dient.

Um das Lasermedium anzuregen wird bei den LMA-Fasern das Pumplicht in den Fasermantel mit einem Brechungsindex n_M eingekoppelt, wobei dabei $n_K > n_M$ gewählt wird. Dieser Mantel ist wiederum mit einer Polyamid-Hülle umgeben die einen Brechungsindex von $n_P < n_M < n_K$ besitzt. Das im Mantel geführte Pumplicht durchquert den Kern der Faser, und wird von den seltenen Erden absorbiert. Um zu verhindern dass sich dabei helikale Moden ausbilden bei denen das Pumplicht nicht den Kern durchqueren würde, sind die Pumpfasern meisten nicht zylinderförmig, sondern weisen eine sechs- oder achteckige Struktur auf. Zudem ist der Kernradius mit einem Durchmesser von bis zu $30\mu\text{m}$ sehr groß gewählt, weshalb diese Fasern large-mode-area Fasern genannt werden. Der Vorteil liegt in der geringeren Leistungsdichte und damit der Möglichkeit größere Leistungen zu führen, sowie einem besseren Verhältnis von Kern- zu Pumpquerschnitt.

Für Strahlung im nah-infraroten Spektralbereich von 1000 nm - 1200 nm bietet sich Ytterbium (Yb^{3+}) als aktives Lasermedium an [85]. Die starke Absorption um 980 nm hat den Vorteil, dass zum Pumpen des aktiven Mediums vergleichsweise kostengünstige Hochleistungslaserdioden verwendet werden können. Das gemessene Absorptionsspektrum einer mit Yb^{3+} dotierten Faser, ist in der Ab-

bildung 3.7 b) zu sehen. Im Teil a) sind die relevanten Energieniveaus $^2F_{7/2}$ und $^2F_{5/2}$ von Ytterbium dargestellt. Durch das im Glas auftretende lokale elektrische Feld werden die Resonanzen durch den Stark Effekt in $J + \frac{1}{2}$ Unterniveaus aufgespalten. Diese Zustände sind thermisch besetzt, und somit können die in der Abbildung gezeigten verschiedenen Absorptionsübergänge A, B und C auftreten. Da diese Übergänge durch Gitterschwingungen vom Glas und unterschiedlichen lokalen elektrischen Feldern an verschiedenen Gitterplätzen, bedingt durch die anamorphe Struktur von Glas, verbreitert werden, erhält man ein Absorptionsspektrum wie es in Abbildung 3.7 b) gezeigt ist [41]. Die rote Kurve zeigt dabei die gemessene Absorption, wenn die Faser bei Raumtemperatur (23°C) betrieben wird. Deutlich zu sehen ist, dass die Absorption bei der Signalwellenlänge von 1015 nm nicht verschwindet und somit einen Verstärkerbetrieb verhindert. Durch Kühlen der Faser auf eine Temperatur von -196°C, mit Hilfe von flüssigem Stickstoff (LN₂) können die thermischen Besetzung der höheren Unterniveaus minimiert werden. Damit wird auch die Absorption bei der Wellenlänge von 1015 nm minimiert, wie in der blauen Kurve in Abbildung 3.7 b) deutlich zu erkennen ist.

Experimenteller Aufbau des Faserverstärkers

Die verwendeten Verstärker-Fasern¹¹ sind mit einer Dotierungsdichte von $\rho_0 = 7 \cdot 10^{25}/m^3$ spezifiziert. In Abbildung 3.3 c) ist der Aufbau des Faserverstärkers detailliert ausgeführt. Eine ausführlichere Beschreibung dieses Aufbaus ist in der Arbeit [86] zu finden. Das Signal-Licht wird über einen dichroitischen Spiegel in den Kern der Faser eingekoppelt, und über einen dichroitischen Spiegel auch wieder ausgekoppelt. Das Pumplicht wird über die selben dichroitischen Spiegel in Rückwärtsrichtung in die Faser eingekoppelt. Die Pumplichtquelle im aktuellen Aufbau ist dabei eine fasergekoppelte Hochleistungsdiode¹², welche Licht mit bis zu 40 W bei einer Wellenlänge um 976 nm zur Verfügung stellt. An den Faserenden der Verstärkerfaser treten sehr hohe Leistungen auf, was bei deren Konfektionierung beachtet werden muss. Die Faserenden werden unter einem Winkel von 8° zur Faserachse poliert und an den Enden mit Steckern konfektioniert, bei dem die Faserenden freistehend gehalten werden. Der Winkel verhindert, dass an den Faserenden reflektiertes Licht wieder in der Faser geführt werden kann.

Eine erwähnenswerte Neuerung im Rahmen der Weiterentwicklung ist die Halterung der Faser im Flüssig-Stickstoff. Um einen möglichst langen Faserverstärkerbetrieb zu gewährleisten, wird die Verstärker-Faser in einen LN₂-Behälter mit einem Fassungsvermögen von 5 L positioniert. Die erste Version des Faserverstärkers hatte den entscheidenden Nachteil, dass die beiden Faserenden zum ein- und auskoppeln der Lichtfelder nicht gekühlt wurden und somit deutliche Verluste auftraten. Aus diesem Grund wurde in der zweiten Version des Faserverstärkers die dotierte Faser an beiden Enden mit einer passiven Faser verlängert, welche die sonst gleichen Eigenschaften wie die aktive Faser besitzt. Die Verbindung wurde dabei durch einen Spleiß der aktiven und der passiven

¹¹(LMA-YDF-10/400-VIII, Nufern)

¹²(LU976C050, Lumics)

Faser bewerkstelligt. Mit diesem Aufbau kann das Signal-Licht bei einer Wellenlänge von 1015 nm auf eine stabile Leistung von >10 W verstärkt werden. Dabei wird die Faser mit einer Leistung von 25 W (@ 976 nm) gepumpt.

3.1.4 Erste Stufe der Frequenzverdopplung (1015 nm $\rightarrow$ 508 nm)

Die erste Frequenzverdopplung des UV-Lasersystems, wurde im Rahmen der Arbeit [28,29] entwickelt und aufgebaut. Eine schematische Skizze des Aufbaus ist in der Abbildung 3.4 a) ausgeführt. Dabei wird das Licht mit einer Wellenlänge von 1015 nm aus dem Faserverstärker, in einen Verdopplungsresonator in Bow-Tie Konfiguration eingekoppelt. In diesem Resonator wird ein 90°-geschnittener LBO-Kristall¹³ für die Frequenzkonversion verwendet. Bei der verwendeten, nicht kritischen Phasenanpassung, wird der Kristall auf Temperaturen um 209°C geheizt. Diese hohen Temperaturen stellen eine hohe Anforderung an den Kristallofen dar, der mit einem passiv wassergekühlten Hitzeschild umgeben ist. Unter Verwendung eines Resonatorspiegels der an einer Piezomechanik befestigt ist, kann die Länge des Resonators verändert und somit die Resonatorresonanz an das Signallicht angepasst werden. Das Fehlersignal für diese Stabilisierung wurde durch ein Pound-Drever-Hall Fehlersignal generiert. Bei optimaler Justage wurden ungefähr 77% des aus dem Faserverstärker einfallenden Lichtes, in den Resonator eingekoppelt.

Der Vorteil dieses Aufbaus ist eine sehr hohe Ausgangsleistung bei einer guten Durchstimmbarkeit. Somit konnten aus 5,2 W Leistung¹⁴ bei einer Wellenlänge von 1015 nm, bis zu 2,8 W Leistung des zu einer Wellenlänge von 508 nm konvertierten Lichtes gewonnen werden. Diese hohen Leistungen wurden allerdings nur kurzzeitig erreicht, und so konnte schon einige Monate nach dem Einbau eines neuen Kristalls deutliche Leistungseinbußen festgestellt werden. Durch Verschieben des Kristalls konnte der Prozess des Degradierens verlangsamt werden, allerdings musste der Kristall im Zeitrahmen dieser Arbeit zweimal getauscht werden. Ein weiterer Nachteil dieses Systems war der tägliche Justageaufwand des Resonators. Dieser Aufbau wurde bei den bisher veröffentlichten Rydberganregungen [61,78] verwendet.

Aufgrund des Justageaufwandes wurde der Verdopplungsresonator noch im Rahmen dieser Arbeit durch das im folgenden beschriebene System ersetzt. Dieses neue System wurde von Ruth Steinborn entwickelt [86]. Die Änderungen hierbei betreffen zum einen den optimierten Faserverstärker, wie vorher beschrieben mit einer Ausgangsleistung von $> 10,5$ W (vorher nur 5 W), zum anderen die Frequenzkonversion. Letztere wird nun mit Hilfe eines periodisch gepolten Kristall im Einmal-Durchgang erreicht. Eine schematische Skizze dieses Aufbaus ist in der Abbildung 3.4 b) gegeben. Für die Frequenzkonversion wird ein periodisch gepolter Lithiumniobat-Kristall¹⁵ verwendet. Die Phasenanas-

¹³(Lithiumtriborat, LBO 001802, 3x3x15 mm, CASTECH)

¹⁴Bei der Frequenzverdopplung mit dem LBO in einem Verdopplungsresonator, wurde die erste Version des Faserverstärkers verwendet. Dieser hatte lediglich eine Ausgangsleistung von ≈ 5 W bei einer Wellenlänge des verstärkten Lichtes von 1015 nm.

¹⁵(pp-MgO:LN, 20x2,2x0,5 mm, GWU-Lasertechnik)

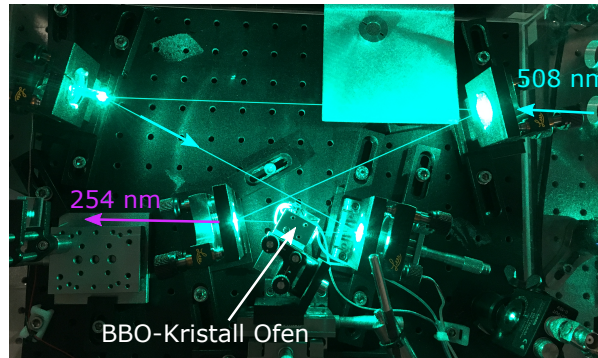


Abbildung 3.8: Foto des zweiten Verdopplungsresonators. Verdopplungsresonator für die Frequenzkonversion von Licht mit einer Wellenlänge um 508 nm zu 254 nm. Schön zu sehen ist die Bow-Tie Konfiguration des Resonators.

sung wird auch hier über die Temperatur optimiert, welche bei ungefähr 79°C liegt. Aus einer infraroten Leistung von 10,4 W (@ 1015 nm), wird somit eine Ausgangsleistung von bis zu 2,3 W des frequenzverdoppelten Lichtes mit der Wellenlänge von 508 nm erzeugt. Trotz der etwas geringeren Ausgangsleistung, erhält man in der nächsten Verdopplung noch UV-Licht mit einer Leistung von bis zu 560 mW. Dieses System ist nahezu wartungsfrei und erste Erfahrungen zeigen, dass der Betrieb deutlich zuverlässiger und extrem langzeitstabiler ist.

3.1.5 Zweite Stufe der Frequenzverdopplung (508 nm → 254 nm)

Der für die Verdopplung des Lichtes mit einer Wellenlänge von 508 nm verwendete Aufbau wurde ebenfalls im Rahmen der Arbeit [28,29] entwickelt. Dieser wird seitdem nahezu unverändert verwendet. Es handelt sich hierbei ebenfalls um einen Verdopplungsresonator in Bow-Tie Konfiguration (siehe Abbildung 3.8), wobei hierbei ein BBO-Kristall¹⁶ im Brewster-Schnitt zum Einsatz kommt. Der Kristall ist für Winkelphasenanpassung bei einer Wellenlänge von 508 nm optimiert. Seit dem Einbau im Jahre 2006 musste dieser Kristall trotz der hohen verwendeten Leistungen nicht ausgetauscht werden. Von dem in den Resonator einfallenden Licht mit einer Wellenlänge um 508 nm, konnten hier bis zu 85% eingekoppelt werden. Aus dem eingekoppelten Licht mit einer Leistung von 2 W, können bis zu 560 mW UV-Licht mit einer Wellenlänge um 254 nm erzeugt werden. Die somit erreichte Konversionseffizienz von ungefähr 33%, ist deutlich schlechter als sie noch in [28] gemessen wurde. Dieser Einbruch an Effizienz kann auf Degradierungs Prozesse zurückgeführt werden. Zudem wurde beobachtet, dass der Auskoppelspiegel des Resonators in regelmäßigen Abständen eine gräuliche Beschichtung aufwies. Dieser Dreck konnte allerdings ohne sichtbare Rückstände entfernt werden. Der Resonator wird ebenfalls mit der Pound-Drever-Hall Methode stabilisiert, wobei die benötigten Seitenbänder

¹⁶(Beta-Bariumborat, Crystals of Siberia)

3. EXPERIMENTELLER AUFBAU DER VUV-LASERQUELLE

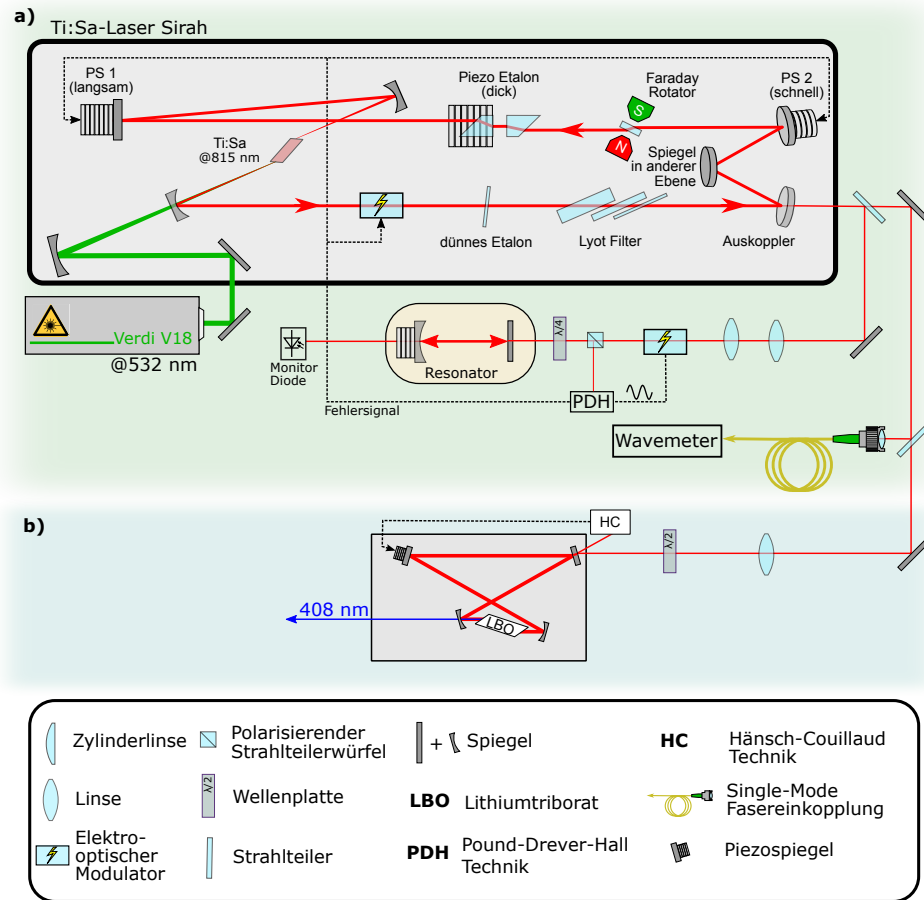


Abbildung 3.9: Detaillierte Skizze vom Aufbau des blauen Lasersystems. Der Ausgangspunkt dieses Lasersystems bildet ein Titan:Saphir Laser, der in Teil a) dargestellt wird. Dieser Laser wird aktiv auf einen Referenzresonator stabilisiert. Das somit erzeugte Lichtfeld mit einer Wellenlänge von 815 nm, wird in Teil b) durch Frequenzverdopplung zu einem Lichtfeld mit einer Wellenlänge von 408 nm konvertiert. Für nähere Details wird auf den Text verwiesen.

durch einem elektrooptischen-Modulator (EOM) vor dem Resonator erzeugt werden.

3.2 Lasersystem für Strahlung bei 408 nm Wellenlänge

In der Abbildung 3.9 ist eine detaillierte Skizze des Lasersystems gezeigt, mit dem die benötigte zwei Photonenresonanz in Quecksilber erreicht wird ($6^3P \rightarrow 7^1S$). Dabei wird ein Lichtfeld von 815 nm, durch Frequenzverdopplung zu dem benötigten Lichtfeld mit einer Wellenlänge von 408 nm konvertiert.

3.2.1 Ti:Sa-Laser bei einer Wellenlänge um 815 nm

Den Ausgangspunkt des zweiten fundamentalen Lichtfeldes bildet ein kommerziell erworbenes Titan:Saphir (Ti:Sa) Lasersystem von Sirah¹⁷. Das Emissions-Frequenzspektrum eines Ti:Sa-Kristalls ist extrem groß (700 nm - 990 nm), wobei der Laserbetrieb durch die Wahl der Resonatorspiegelbeschichtung, und weitere frequenzselektive Elemente auf eine Frequenz eingeschränkt wird. Um den Ringlaser zu betreiben wird der Ti:Sa-Kristall, durch einen intern frequenzverdoppelten Neodym:Yttrium-Vanadat (Nd:YVO₄) Laser¹⁸, bei einer Wellenlänge 532 nm und mit einer Leistung von bis zu 18 W, gepumpt. Durch verwenden eines dreistufigen Lyot-Filter und zwei unterschiedlich dicke Etalons kann der Ringlaser auf den longitudinalen Ein-Modenbetrieb gezwungen werden. Der auf einer Piezomechanik befestigt Spiegel PS1 dient dazu, eine Feinjustage der Resonatorlänge und damit der Laserwellenlänge zu ermöglichen. Für die aktive Stabilisierung stehen zudem ein schneller Piezospiegel (PS2), sowie ein EOM als weitere frequenzselektive Elemente zur Verfügung.

Um den Laserbetrieb zudem nur auf eine Umlaufrichtung zu limitieren, wird ein Faraday-Rotator zusammen mit einem außerhalb der Resonatorebene befindlichen Spiegel verwendet. Der Faraday-Rotator, bestehend aus einem Terbium-Gallium-Granat-Plättchen (TGG), in einem starken Magnetfeld, rotiert die Polarisation unabhängig von der Umlaufrichtung des Lichtes. Dies gilt allerdings nicht für die Reflexion am außerhalb der Resonatorebene befindlichen Spiegel. Die Polarisation des in Vorzugsrichtung umlaufenden Lichtes wird diesem Spiegel um den gleichen Betrag wie am Faraday-Rotator zurück rotiert, und somit kompensieren sich die Polarisationsänderung dieses Strahles nach dem Durchgang beider Elemente. Der entgegen der Vorzugsrichtung laufende Strahl erfährt hingegen eine Polarisationsänderung, und somit an den Brewster-Flächen einen erhöhten Verlust.

Das Lasersystem erreicht eine maximale Ausgangsleistung von bis zu 4,2 W.

Stabilisierung auf Referenzresonator

Um Frequenzstabilität und die damit einhergehende schmale spektrale Linienbreite zu erreichen, wird der Ringlaser auf einen kommerziell erworbenen Referenzresonator stabilisiert (Pound-Drever-Hall Methode). Die Finesse des Resonator ist mit ≈ 250 spezifiziert. Sowohl die frequenzselektiven Elemente, als auch die Frequenzstabilisierung werden über eine Computersoftware gesteuert. Die aus dem Fehlersignal abgeschätzte Linienbreite des emittierten Lichtes mit der Wellenlänge bei 815 nm, liegt bei <30 kHz.

Im Rahmen einer Bachelorarbeit [87] wurde an einer Optimierung der aktiven Stabilisierung gearbeitet. Dazu wurde ein Referenzresonator mit einer Finesse von $\mathcal{F} = 29585 \pm 1232$ aufgebaut. Der Aufbau unterscheidet sich bis auf die verwendeten Resonatorspiegel jedoch nicht von dem in Abschnitt 3.5 beschriebenen Referenzresonator. Es konnte gezeigt werden, dass eine Reduzierung der spektrale Linienbreite auf $\delta\nu < 7$ kHz prinzipiell möglich ist. Allerdings muss zuvor

¹⁷(Matisse TX, Sirah)

¹⁸(Verdi V18, Coherent)

die bisher verwendete Elektronik für die Stabilisierung des Ti:Sa-Lasersystems angepasst werden (dieser Umbau wird in der Arbeit [88] sehr ausführlich beschrieben). Der Stabilisierungsaufbau wurde bisher nicht in das Experiment implementiert, da erst bei einer kohärenten Anregung von Calcium Ionen eine deutlich bessere VUV-Linienbreite benötigt wird.

3.2.2 Frequenzverdopplung (815 nm $\rightarrow$ 408 nm)

Seit 1996 ist es zwar möglich, Lichtfelder mit Wellenlängen um 400 nm mit einer Indiumgalliumnitrid (InGaN) Halbleiterdiode zu erhalten [89], allerdings sind die Ausgangsleistungen bisher noch sehr eingeschränkt. In der Arbeitsgruppe steht ein Laserdiodensetup¹⁹ für die Wellenlänge um 408 nm mit einer Ausgangsleistung von < 100 mW zur Verfügung.

Die Ausgangsleistung des verwendeten verdoppelten Ti:Sa-Lasersystems hat im Vergleich dazu eine um den Faktor 10 höhere Leistung verbunden mit einer deutlich schmaleren (< 30 kHz) Linienbreite. Für die Frequenzverdopplung des Lichtfeldes bei 815 nm, wird ein Verdopplungsresonator mit einem brewstergeschnittenem LBO-Kristall (Lithiumtriborat) verwendet. Der Resonator ist auch hier in der Bow-Tie Konfiguration aufgebaut und es wird kritische Phasenanpassung verwendet. Für die Stabilisierung der Resonatorlänge wird hierbei die Hänsch-Couillaud Methode [90] verwendet. Mit diesem Aufbau wird das zweite fundamentale Lichtfeld bei einer Wellenlänge um 408 nm mit einer Leistung von bis zu 1,6 W erzeugt.

3.3 Lasersystem für Strahlung bei 555 nm Wellenlänge

Ausgehend von der zwei Photonenresonanz in Quecksilber $6^1S \rightarrow 7^1S$, muss eine dritte Resonanz ausgenutzt werden um eine ausreichend hohe Effizienz im Vierwellen-Mischprozess zu erreichen. Um $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen aus dem metastabilen $3D_{3/2}$ -Zustand in einen Rydberg-Zustand mit $n \approx 52$ anzuregen, wird VUV-Licht mit einer Wellenlänge um 122 nm benötigt [61]. Zur Erzeugung dieses Lichtfeldes kann die 11^1P -Resonanz ausgenutzt werden (siehe Abbildung 3.2). Das dazu benötigte dritte fundamentale Lichtfeld, muss eine Wellenlänge um 555 nm aufweisen. Um die Wellenlänge des VUV-Lichts zu verstimmen, muss dieses dritte fundamentale Lichtfeld verstimmt werden.

In der Abbildung 3.10 ist eine detaillierte Skizze des verwendeten Lasersystems, für die Erzeugung des dritten fundamentalen Lichtfeldes mit einer Wellenlänge um 555 nm, ausgeführt. In Abbildungsteil a) ist die Ausgangspunkt des gesamten Lasersystems, eine Laserdiode mit einer Emissionswellenlänge von 1110 nm, dargestellt. Dieses Licht wird, wie in Teil b) zu skizziert, durch einen zweistufigen Faserverstärker verstärkt, bevor es in Teil c) einen periodisch gepolten Kristall zur Frequenzverdopplung durchquert. Im folgenden Abschnitt werden alle Bereiche näher beschrieben.

¹⁹(DP pro HP 405, #LD-0405-0250-1, Toptica)

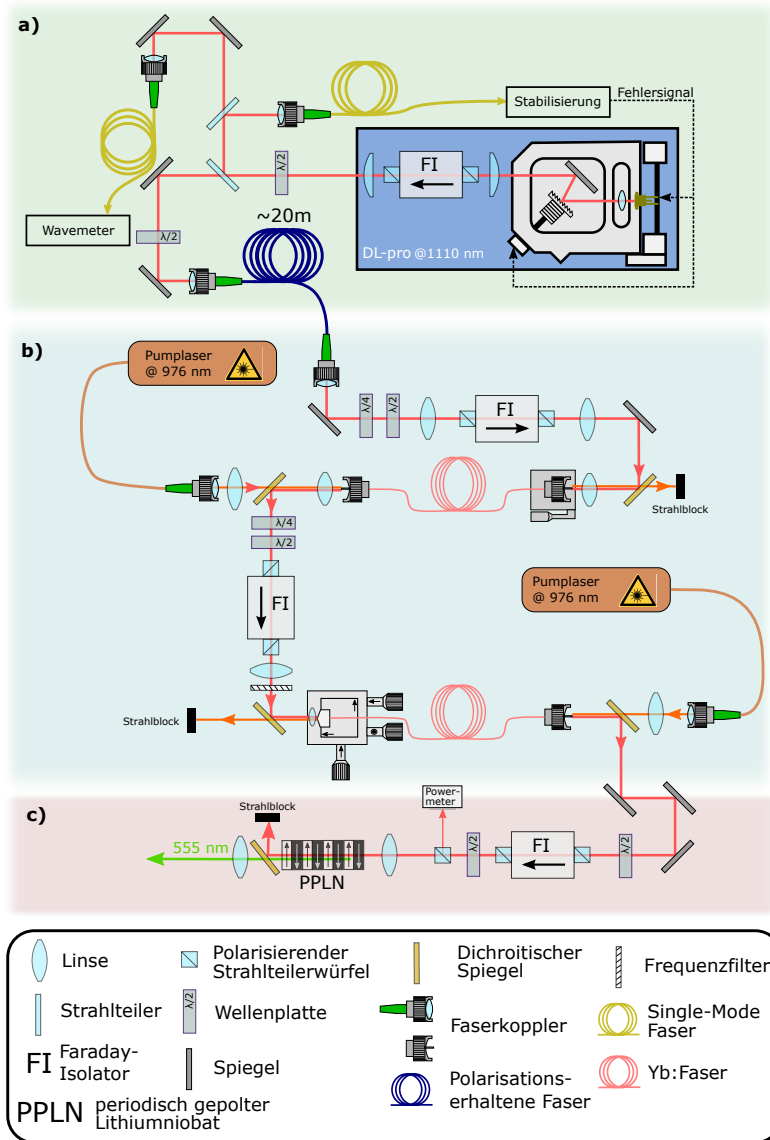


Abbildung 3.10: Detaillierte Skizze des Aufbau vom grünen Lasersystem (555 nm). Wie in Teil a) gezeigt, bildet eine Laserdiode bei einer Wellenlänge um 1110 nm den Ausgangspunkt des Lasersystems. Dieses Licht wird über eine Faserkopplung, in einen zweistufigen Faserverstärker geleitet (siehe Teil b)). Das verstärkte Licht wird durch einen periodisch gepolten Kristall zu einer Wellenlänge von 555 nm konvertiert (Teil c)). Für weitere Informationen wird auf den Text verwiesen.

3.3.1 Laserdiode mit einer Wellenlänge von 1110 nm

Den Ausgangspunkt dieses Lasersystems bildet eine Laserdiode²⁰ die bei einer Emissionswellenlänge um 1110 nm betrieben wird. Bei dieser Wellenlänge ist die maximal erreichbare Ausgangsleistung 123 mW. Dieses Licht wird durch zwei

²⁰(DL-Pro, #LD-1120-0100-AR-2, Toptica)

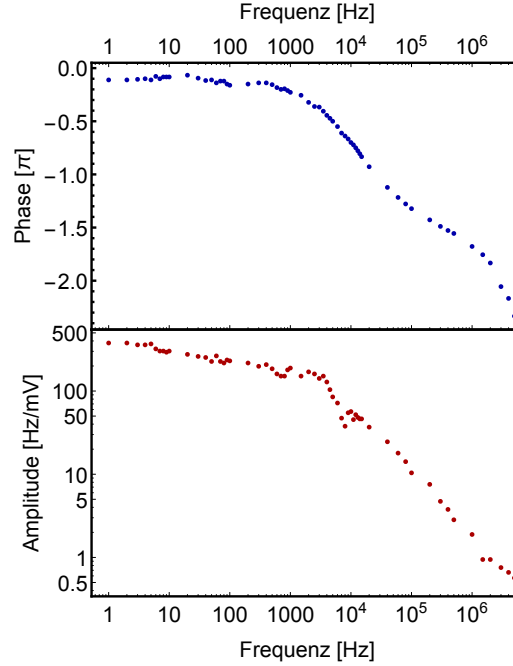


Abbildung 3.11: Frequenzantwort der Laserdiode mit einer Emissionswellenlänge von 1110 nm. Bode-Diagramm der Frequenzantwort der Laserdiode (#LD-1120-0100-AR-2) von Toptica. Für die Messung wurde ein sinusförmiges Steuersignal auf den Diodenstrom moduliert. Der kritische Phasenversatz von π , tritt bei dieser Diode schon bei Frequenzen um 10 kHz auf.

Strahlteiler aufgeteilt (siehe Abbildung 3.10 a)), und in drei Fasern eingekoppelt. Somit steht Licht für die Wellenlängenmessung im Wavemeter²¹ und für die aktive Frequenzstabilisierung zur Verfügung, wobei der Großteil des Lichtes in eine 20 m lange, polarisationserhaltende single-Mode Faser eingekoppelt wird. Nach dieser Faser stehen noch bis zu 50 mW Leistung (@ 1110 nm) zur Verfügung, die in den Faserverstärker eingekoppelt werden.

Stabilisierung auf Referenzresonator

Der Laserdiodenaufbau wurde im Rahmen der Arbeit [40] in das Lasersystem integriert. Dabei wurde gezeigt, dass eine Verringerung der spektralen Linienbreite des emittierten Lichtes der eingebauten Laserdiode (#LD-1150-0100-AR-1, Toptica) nicht möglich war.

Bei der aktuell verbauten Laserdiode (#LD-1120-0100-AR-2, Toptica), ist eine aktive Stabilisierung ebenfalls nicht möglich. In Abbildung 3.11 ist eine Messung der Frequenzantwort in Form eines Bode-Diagramms dargestellt. Dabei fällt auf, dass schon bei einer Modulationsfrequenz um 10 kHz ein π -Phasenversatz auftritt. Bei einer Linienbreitenmessung hat sich die Vermutung bestätigt, dass durch eine aktive Stabilisierung die Linienbreite nicht verringert werden kann.

²¹(WS/U-10U, HighFinesse)

Die spektrale Linienbreite der nicht stabilisierten Laserdiode konnte auf 75(14) kHz abgeschätzt werden, wobei hierbei die volle Halbwertsbreite gemeint ist. Diese Linienbreite ist für die bisher durchgeführten Spektroskopiemessungen vollkommen ausreichend. Um jedoch eine schmalere Linienbreite zu erreichen, muss die Laserdiode durch eine andere Diode ersetzt werden, die nicht diesen frühen Phasenversatz aufweist.

3.3.2 Faserverstärkersystem für Licht mit einer Wellenlänge um 1110 nm

Der verwendete Faserverstärker wurde im Rahmen der Arbeit [36,39] entwickelt. Es handelt sich hierbei um ein zwei-stufiges Faserverstärkersystem, um die geringe Leistung des Signal-Lichts auf > 10 W verstärken zu können.

In Abbildung 3.10 b) ist eine detaillierte Skizze des kompletten Verstärker-aufbaus gezeigt. Das Signal-Licht mit einer Wellenlänge von 1110 nm wird in die erste, mit Ytterbium dotierte Verstärkerfaser²² eingekoppelt. Die Länge der ersten Verstärkerfaser beträgt 30 m. Bei dieser Wellenlänge sind die Verluste in der Faser vernachlässigbar (siehe Abbildung 3.7), und so kann diese Faser auch bei Raumtemperatur betrieben werden. Die erste Stufe wird durch einen fasergekoppelten Hochleistungs-Diodenlaser²³ mit einer Leistung von 7 W bei einer Wellenlänge von 976 nm gepumpt. Somit wird verstärktes Signal-Licht mit einer Leistung von bis zu 300 mW erzeugt.

Dieses Signal-Licht wird in die zweite Verstärkerfaser²⁴ eingekoppelt, welche eine Länge von 8 m hat. Die zweite Stufe wird ebenfalls durch einen fasergekoppelten Hochleistungs-Diodenlaser²⁵ mit einer Leistung von 51 W gepumpt. Die damit erreichte Ausgangsleistung liegt bei bis zu 11 W von Licht mit der Wellenlänge um 1110 nm. Die zweite Verstärkerstufe wurde mit einem Temperatursensitiven Schutzschalter ausgestattet, der die Temperatur des Faserauskopplers misst. Erfahrungsgemäß heizt sich dieser Stecker bei langen Messtagen (bis zu 8 Stunden) auf ($> 40^{\circ}\text{C}$) und somit verschlechtert sich die Einkopplung des Pumplichtes. Dies kann zu einer Zerstörung der Faseroberfläche führen.

3.3.3 Frequenzverdopplung (1110 nm $\rightarrow$ 555 nm)

Für die Frequenzkonversion wird ein periodisch gepolter Lithiumniobat-Kristall²⁶ verwendet. Dabei wird das verstärkte Licht mit einer Wellenlänge von 1110 nm und einer Leistung von 11 W, in das dritte fundamentale Lichtfeld mit einer Wellenlänge von 555 nm und einer Leistung von 1,2 W konvertiert. Eine Skizze des Aufbaus ist in Abbildung 3.10 c) gezeigt.

²²(LMA-YDF-10/400, Nufern)

²³(HLU30-F200-LS-DL980-FB, LIMO)

²⁴(LMA-YDF-30/400)

²⁵(LU0975C060-51522A00, Lumics)

²⁶(pp-MgO:CLN, 15x3x3 mm, Nr.001427, GWU-Lasertechnik)

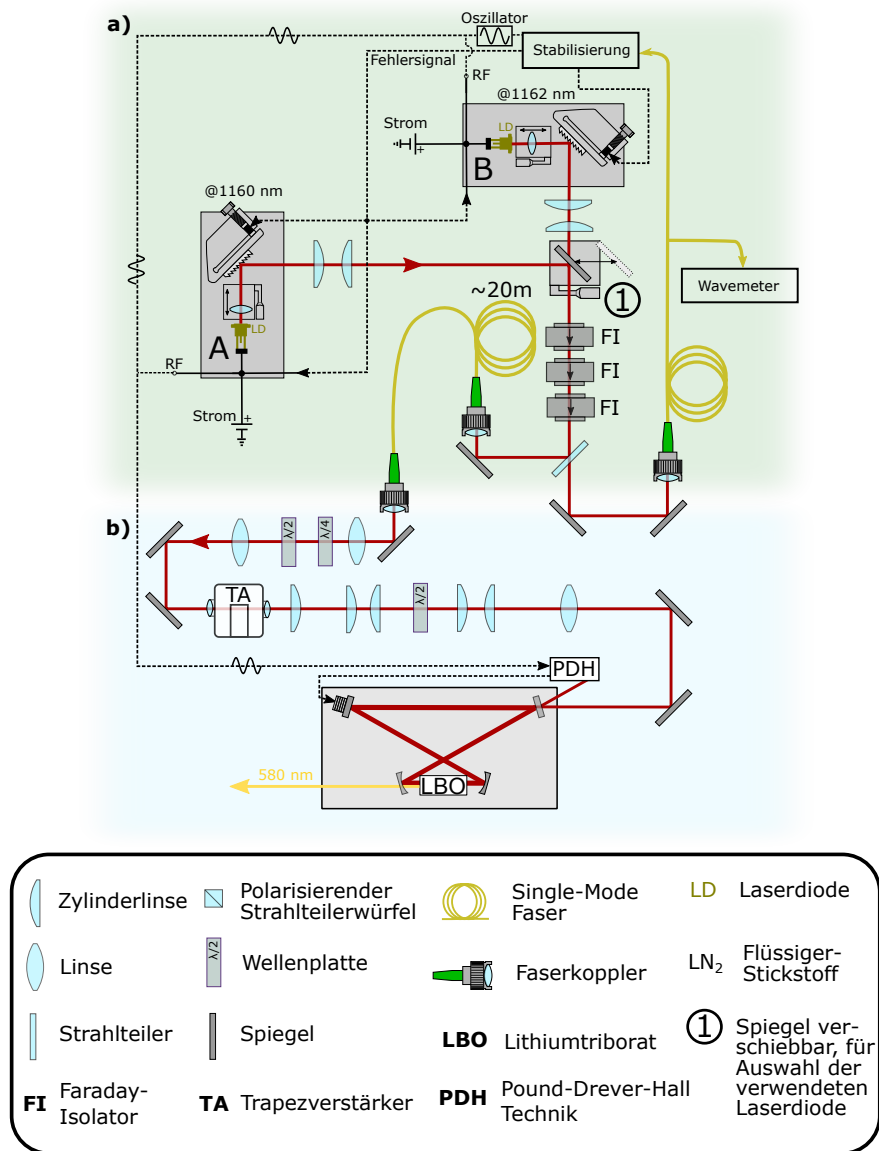


Abbildung 3.12: Detaillierte Skizze des Aufbau vom gelben Lasersystem (580 nm). In Teil a) ist der Aufbau der beiden verwendeten Laserdioden A und B, die Ausgangspunkte des Lasersystems, dargestellt. Durch den Spiegel (1), kann die Seedquelle getauscht werden. Somit kann schnell die Wellenlänge gewechselt werden. In Teil b) ist sowohl der Trapezverstärker, als auch die Frequenzverdopplung zu der Wellenlänge 580 nm skizziert. Für mehr Information wird auf den Text verwiesen.

3.4 Lasersystem für Strahlung bei 580 nm Wellenlänge

Eine weitere relevante dritte Resonanz in Quecksilber ist die 10^1P -Resonanz. Für den Übergang von $7^1S \rightarrow 10^1P$ wird eine Wellenlänge von 580 nm benötigt.

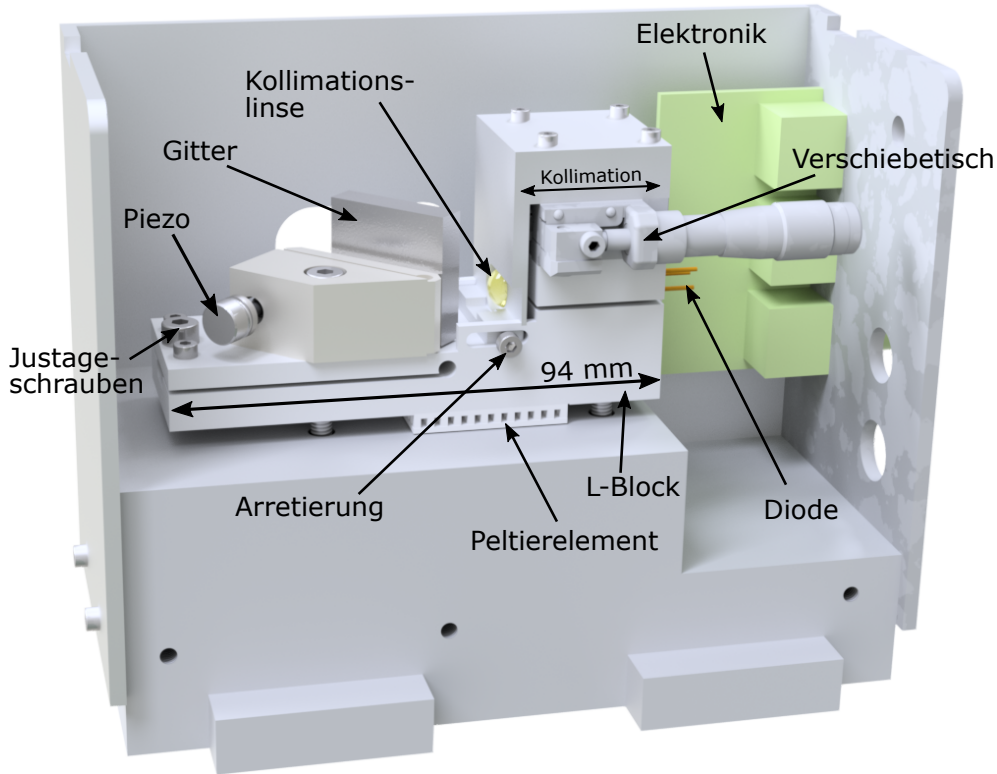


Abbildung 3.13: Laserdioden Aufbau für Laserdiode mit einer Emissionswellenlänge von 1160 nm. Der Aufbau der Diode orientiert sich am Ricci-Hänsch-Design. Im Vergleich zu dem bisherigen Laserdiodenaufbau, verfügt dieses Design über eine Kollimationslinsenhalterung, die mit einem Verschiebetisch angepasst werden kann.

Mit der Wellenlänge des erzeugten VUV-Lichtes von 123 nm, konnten $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen in einen Rydberg-Zustand mit einer Hauptquantenzahl $n = 22$ angeregt werden [78].

In Abbildung 3.12 ist eine detaillierte Skizze des Aufbaus gezeigt, mit dem das dritte fundamentale Lichtfeld mit einer Wellenlänge von 580 nm erzeugt wird. Die Entwicklung dieses Systems sowie die Implementierung in das VUV-Lasersystem, wurde im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt.

3.4.1 Aufbau High-Powerdioden

Der Ausgangspunkt dieses Lasersystems ist eine Laserdiode mit einer Emissionswellenlänge²⁷ von 1162 nm. Diese Laserdiode hat eine Antireflexbeschichtung, und es kann in einem externen Resonator eine maximale Ausgangsleistung von >250 mW erreicht werden. Auch diese Laserdiode ist in der Littrow-Konfiguration aufgebaut, wobei die besten Ergebnisse mit einem Blaze-Gitter²⁸ erreicht wurden.

²⁷(GC-1160-90-TO-200-A, Innolume GmbH)

²⁸(GR25-1208, Thorlabs)

Für den erfolgreichen Ein-Moden-Betrieb musste ein spezieller Diodenaufbau entwickelt werden. Mit den bisher verwendeten Kollimatoren, bei denen sowohl die Kollimationslinse als auch die Laserdiode in einem Zylinder gehalten wurden, war es nicht möglich eine gute Rückkopplung zu erreichen. Durch eine präzise Positionierung der Kollimationslinse in allen drei Achsen, konnte dieses Problem allerdings behoben werden. Ein gerendertes Bild des Aufbaus ist in Abbildung 3.13 gezeigt ist (Die erste Version des neuen Aufbaus ist in Abbildung D.1 dargestellt).

Für eine höhere mechanische Stabilität, wurde die Resonatorlänge verringert. Zudem sollte der Modensprung-freie Durchstimmbereich vergrößert werden, da der Drehpunkt des Gitters somit näher am optimalen Pivot-Punkt liegt [91].

Die Kollimationslinse²⁹ kann durch einen Verschiebetisch³⁰ in Strahlrichtung (z-Achse) bewegt werden. Dazu wird sie auf eine Halterung geklebt, die an dem Verschiebetisch befestigt wird und für weitere Stabilität auch an dem L-Block arretiert werden kann. Die xy-Positionierung der Linse kann im späteren Betrieb nicht mehr justiert werden, daher muss das Kleben sehr präzise ausgeführt werden.

Die Linse wird dazu an einem Draht befestigt, und mit einem Verschiebetisch an die Richtige Position gefahren. Bei dieser Justage ist die Laserdiode in Betrieb. Die richtige Position der Linse wird anhand des Strahlprofils (kollimiert, keine Strahllageänderung) festgestellt, welches mit einer Strahlprofilkamera überprüft wird. Ist die Position gefunden, wird die Linse mit einem Klebepunkt an dem Linsenhalter befestigt. Um die Ausrichtung in x- oder y-Richtung im späteren Betrieb zu justieren, muss die Linse wieder abgelöst werden.

Wie in der Abbildung 3.12 gezeigt wird, besteht das Laserdiodensystem für das dritte fundamentale Lichtfeld aus zwei Laserdioden. Der abgebildete Spiegel (1) ist auf einem Verschiebetisch befestigt. Mit ihm wird es möglich entweder Laserdiode A oder Laserdiode B in die Fasern einzukoppeln, und somit kann schnell zwischen zwei Wellenlängen gewechselt werden. In diesem Experiment wird diese Option bei der Suche nach neuen Rydberg-Resonanzen verwendet. Laserdiode A wird dabei fest auf der 22F-Resonanz gehalten, und zur täglichen Optimierung der Überlagerung des VUV-Strahles mit den Calcium Ionen verwendet. Die zweite Laserdiode B wird hingegen für die Suche nach den neuen Resonanzen bis zu mehreren 100 GHz weit verstimmt.

Die Laserschwelle konnte auf 58 mA optimiert werden, bei einer Emissionswellenlänge von 1160,83 nm. Es wird eine Diodentemperatur von 21 – 22°C und einem Diodenstrom von 500 – 550 mA verwendet, womit eine Ausgangsleistung von 230 mW erreicht werden konnte. Die Laserdioden sind durch 3 Faraday-Isolatoren³¹ vor Rückreflexen geschützt. Nach einem Strahlteiler wird ein kleiner Anteil des Lichtes in eine Faser eingekoppelt um die Wellenlänge überwachen zu können. Das restliche Licht wird in eine 20 m lange Faser eingekoppelt, welche das Licht weiter in einen Trapezverstärker leitet. Nach der Faserauskopplung stehen somit bis zu > 80 mW zur Verfügung.

²⁹(354330-C, $f = 3,1$ mm / NA = 0,68, Thorlabs)

³⁰(M-SDS25, Newport)

³¹(IO-4-1150-VLP, Thorlabs)

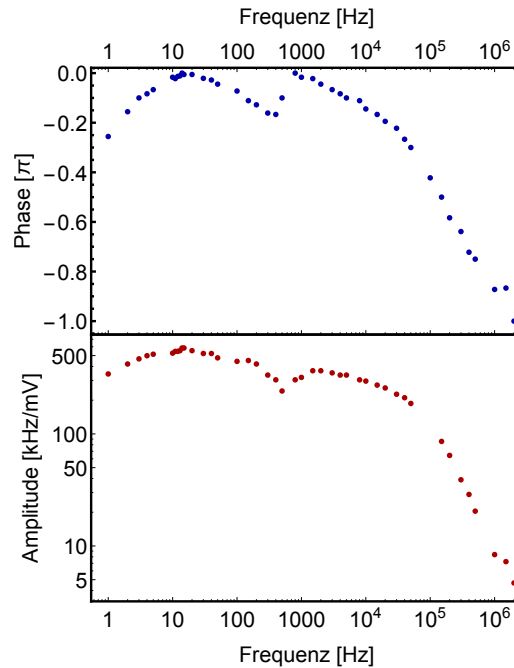


Abbildung 3.14: Frequenzantwort der Laserdiode mit einer Emissionswellenlänge von 1160 nm. Bode-Diagramm der Frequenzantwort der Laserdiode (GC-1160-90-TO-200-A) von Innolume. Für die Messung wurde ein sinusförmiges Steuersignal auf den Diodenstrom moduliert. Der kritische Phasenversatz von π , tritt bei dieser Diode bei Frequenzen um > 1 MHz auf.

Stabilisierung auf einen Referenzresonator

In der Abbildung 3.14 ist die Frequenzantwort der Laserdiode (GC-1160-90-TO-200-A) in einem Bode-Diagramm dargestellt. Der kritische Phasenversatz von π , tritt bei dieser Laserdiode erst bei > 1 MHz auf.

In Abschnitt 3.5 werden Messung zur spektralen Linienbreite dieses Lasersystems gezeigt. Die Ergebnisse zeigen, dass es durch die aktive Stabilisierung möglich ist die Linienbreite des Lichtfeldes zu verringern. Die gemessene spektrale Linienbreite des emittierten Lichtes bei einer Wellenlänge von 1160 nm im nicht stabilisierten Zustand ist 167(34) kHz und im stabilisierten Zustand 78(16) kHz.

3.4.2 Verstärkung in einem Trapezverstärker

Für die Verstärkung des Lichtfeldes mit einer Wellenlänge um 1160 nm, wird ein kommerziell erworbener Trapezverstärker³² von Toptica verwendet. Das Signal-Licht mit einer Leistung von 80 mW, wird somit auf 1,5 W verstärkt. Das Strahlprofil des Lichtfeldes aus dem Trapezverstärker, ist in der Abbildung 3.15 gezeigt. Die Form wird dabei stark von der Polarisation des Eingangslichtes, sowie dem verwendeten Pumpstrom beeinflusst.

³²(BoosTA pro, #TA-1170-1500-1, Toptica)

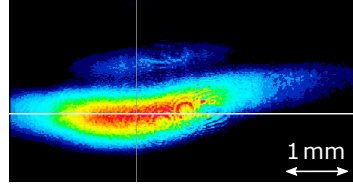


Abbildung 3.15: Strahlprofil vom Ausgangsstrahl des Trapezverstärkers (BoosTA pro @ 1160 nm). Das Strahlprofil wurde mit einer Strahlprofilkamera, hinter dem Verstärkergehäuse aufgenommen.

Dieser Strahl muss an den, für den Verdopplungsresonator benötigten, leicht elliptischen Strahl ($w_x = 243 \mu\text{m}$, $w_y = 315 \mu\text{m}$), angepasst werden. Dazu werden zwei Zylinderlinsen Teleskope und eine sphärische Linse verwendet. Letztere wird für die Modenanpassung des Strahls an den Verdopplungsresonator benötigt.

3.4.3 Frequenzverdopplung im Resonator

Für die Frequenzkonversion wurde ein Verdopplungsresonator in Bow-Tie Konfiguration entwickelt. Um die Resonatorgeometrie mit der Theorie aus Abschnitt 2.3.2 berechnen zu können, müssen ein paar Variablen festgelegt werden.

1. Für die Frequenzkonversion wird einen LBO Kristall³³ verwendet, wobei nicht kritische Phasenanpassung verwendet wird. Die Länge wird zu $L = 15 \text{ mm}$ gewählt. Die optimale Länge kann dadurch abgeschätzt werden, dass die Verluste des fundamentalen Lichtfeldes durch Absorption im Kristall, gleich den restlichen linearen Verlusten im Resonator gesetzt werden [28].
2. Damit im fokussierenden Arm genügend Platz für den Kristallofen bleibt, wird der Krümmungsradius der beiden fokussierenden Spiegel auf $R = 50 \text{ mm}$ festgelegt.
3. Der Einfallswinkel auf die fokussierenden Spiegel wird zu $\alpha = 10^\circ$ gewählt. Durch die Wahl eines großen Winkels wird im kollimierten Arm ein stark elliptisches Strahlprofil benötigt, was die Einkopplung erschwert und die Stabilität des Resonators verschlechtert.
4. Durch die Länge des Kristalls L , berechnet sich der Strahlradius im Kristall zu $w_0 = 24,7 \mu\text{m}$ (siehe Gleichung (2.64) mit dem Doppelbrechungsparameter $B=0$, da Temperaturphasenanpassung verwendet wird).

Nun können die beiden Resonatorlängen $l_1 = 58,649 \text{ mm}$ und $l_2 = 414,187 \text{ mm}$ berechnet werden. Dazu muss man sowohl für die sagittale als auch für die tangentielle Ebene eine ABCD-Matrix aufstellen, die mit den gegebenen Parametern zu dem richtigen Fokus in dem Kristall führt. Mit einem Computeralgebrasystem wie Mathematica von Wolfram Research kann diese Aufgabe leicht

³³(LBO-10002, 15x3x3 mm, AR-Coating 580 nm und 1160 nm, nortus Optronic GmbH)

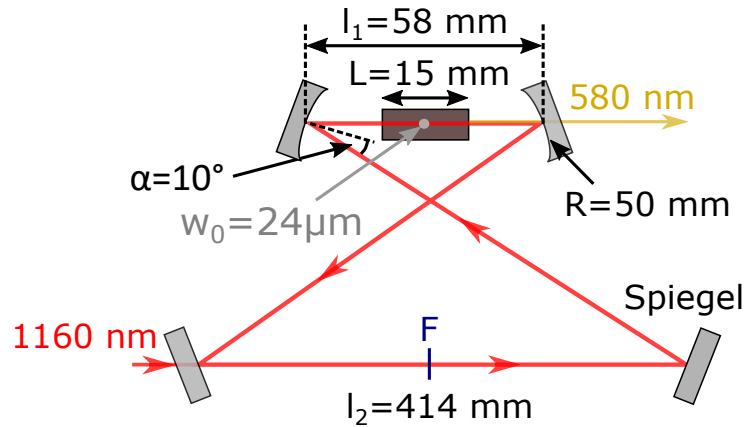


Abbildung 3.16: Berechneter Resonator in Bow-Tie Konfiguration. In dieser Abbildung ist die Skizze des berechneten Verdopplungsresonators in der Bow-Tie Konfiguration zu sehen, bei dem nicht kritische Phasenanpassung verwendet wird. Dabei sind l_1 und l_2 die Längen der relevanten Arme, und R ist der Krümmungsradius der Spiegel. Die Länge des Kristalls ist durch L dargestellt, der Fokus w_0 sollte in der Mitte des Kristalls liegen und der Einfallswinkel auf die gekrümmten Spiegel ist mit α eingezeichnet.

gelöst werden. Aus den berechneten Längen l_1 und l_2 , kann nun der Strahlradius im Fokus des langen Resonatorarms (F) berechnet werden: (tangential) $w_x = 314,806 \mu\text{m}$ und (sagittal) $w_y = 242,902 \mu\text{m}$. In Abbildung 3.16 ist eine Skizze des berechneten Resonators dargestellt.

In Abbildung 3.17 a) ist eine gerenderte Zeichnung des aufgebauten Resonators gezeigt. Um die Resonatorlänge zu ändern, ist der zweite Spiegel im Resonator auf einer Piezomechanik befestigt die bei der Stabilisierung angesteuert wird. Für die aktive Stabilisierung des Resonators wird die Pound-Drever-Hall Technik verwendet, wobei die benötigten Seitenbänder hierbei schon auf den Laserdiodenstrom moduliert werden (siehe Abbildung 3.12). Der LBO-Kristall ist in einem Ofen platziert, der wiederum mit einem xyz-Verschiebetisch justiert werden kann. Der verwendete Ofen ist als gerenderten Zeichnung, in Abbildung 3.17 b) dargestellt. Dabei wird der Kristall durch einen mit Federn vorgespannten Kristallhalter in Position gehalten. Die Goldbeschichtung dient als Korrosionsschutz. Um den Kristall auf die benötigte Phasenanpassungstemperatur zu bringen, werden Heizfolien verwendet. Um höhere Temperaturen erreichen zu können steht ein Einschub für Heizelemente zur Verfügung.

Der ganze Resonatoraufbau ist auf einer stabilen Plattform aus Edelstahl errichtet (Abbildung D.8 und D.9). Die Spiegelhalter werden für eine erhöhte Stabilität, direkt auf dieser Grundplatte befestigt. Das Gehäuse ist im Betrieb, bis auf die Ein- und Ausgangsöffnung, vollständig abgeschlossen. Mit diesem Resonator-design wird eine deutlich bessere Intensitätsstabilität (Fluktuationen der Intensität $< 10\%$) als mit dem bisher verwendeten Verdopplungsresonator-design erreicht.

Für eine Modenanpassung des einzukoppelnden, nah-infraroten fundamental

3. EXPERIMENTELLER AUFBAU DER VUV-LASERQUELLE

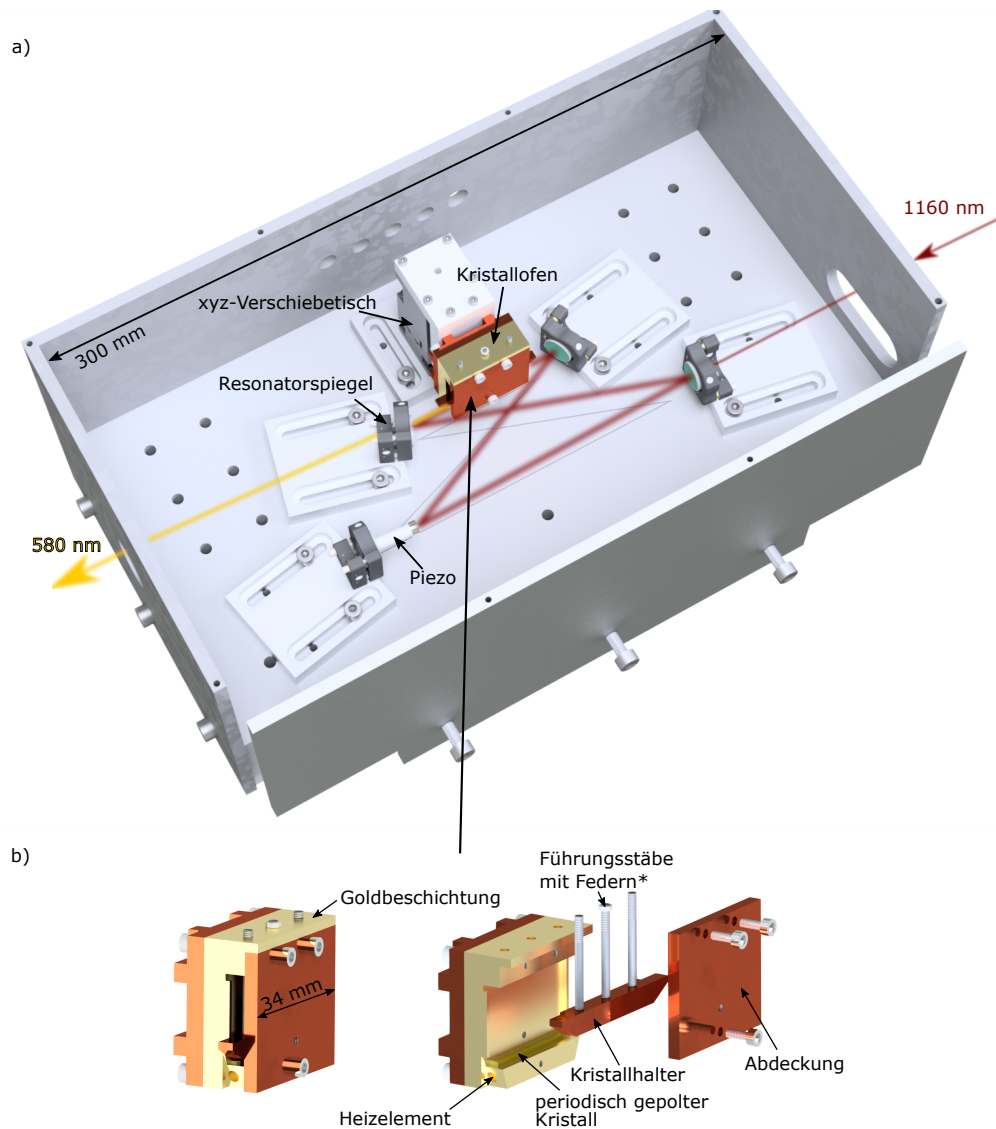


Abbildung 3.17: Gerenderte Zeichnung des Verdopplungsresonators für das gelbe Licht (@ 580 nm). In Abbildung a) ist der Resonator dargestellt, wobei die Grundplatte aus Edelstahl gefertigt ist. Die Resonatorspiegel sind direkt auf diese Platte befestigt, und geben dem Resonator dadurch eine höhere Stabilität. Der Kristall-Ofen (detaillierte Abbildung in ??) ist an einem xyz-Verschiebetisch befestigt, und wird durch Heizfolien auf die benötigte Phasenanstimmungstemperatur gebracht. Das Gehäuse ist, bis auf die Ein- und Ausgangsöffnung, vollständig geschlossen. Die Resonatorlänge kann durch den zweiten Spiegel, welcher an einer Piezomechanik befestigt ist, verändert werden. In Abbildungsteil b) ist auf der linken Seite ist eine gerenderte Zeichnung des zusammengesetzten Ofen dargestellt. Auf der rechten Seite ist eine Explosionszeichnung des selben zu sehen. Der Kristall wird durch einen mit Federn vorgespannten Kristallhalter in Position gehalten. Die Federn* sind in dieser Abbildung nicht dargestellt.

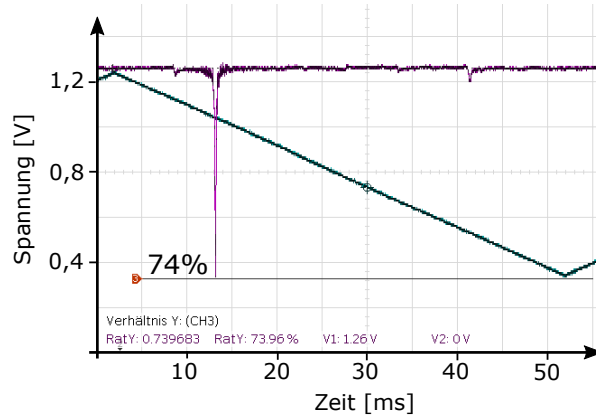


Abbildung 3.18: Reflexionssignal an Verdopplungsresonator. Es ist eine Oszilloskop-Aufnahme gezeigt. Dazu wurde die Resonatorlänge verändert (blaues Signal), und mit einer Fotodiode das reflektierte Lichtfeld (@ 1160 nm) detektiert (lila Kurve). Die Einkoppeleffizienz kann somit zu 74% bestimmt werden.

Lichtfeldes wurde der Strahlradius des einfallenden Lichtes an der Stelle F vermessen und an den berechneten Strahlradius angepasst. Wie schon erwähnt wurde, wird für die Modenanpassung eine sphärische Linse mit einer Brennweite von $f = 400$ mm verwendet.

Für eine gute Einkopplungseffizienz muss die Impedanz angepasst werden. Dazu wird eine Reflektivität von $\approx 98\%$ für den Einkoppelspiegel berechnet (siehe Gleichung (2.66) mit $d_{eff} = 0,847 \cdot 10^{-12} \frac{m}{V}$, einer Transmission an der Kristalloberfläche von 99,8% und Spiegelreflektivitäten von 99,9%). Durch die Moden- und der Impedanzanpassung konnten bis zu 74% des einfallenden fundamentalen Lichtfeldes in den Resonator eingekoppelt werden.

In Abbildung 3.18 ist eine Momentaufnahme des Oszilloskops gezeigt, bei dem zum einen das Signal des Piezoverstärkers angezeigt welches proportional zur Längenänderung des Kristalls ist (blau), und zum anderen das Signal der Fotodiode welche das am Resonator reflektierte Licht detektiert (lila). Mit einer fundamentalen Leistung von 1,5 W (1160 nm) konnte bei einer Kristalltemperatur von 58,6°C, eine Leistung von bis zu 630 mW im harmonischen Lichtfeld (580 nm) erzeugt werden. Dies entspricht einer Konversionseffizienz von $\approx 57\%$.

3.5 Frequenzstabilisierung der Lasersysteme

Für eine möglichst hohe Anregungsrate der schmalen Rydberg-Resonanzen und die Möglichkeit der kohärenten Rydberganregung, sollte das erzeugte VUV-Lichtfeld ebenfalls eine schmale spektrale Breite aufweisen. Die Linienbreite des VUV-Lichts wird durch die drei fundamentalen Lichtfelder gegeben, welche wiederum durch die Linienbreite der nah-infraroten Ausgangslichtquellen bestimmt werden. Aus diesem Grund werden die Frequenzen der drei Laserdiodensysteme (1015 nm, 1110 nm und 1160 nm) sowie das Ti:Sa-Lasersystem (815 nm) aktiv auf Referenzresonatoren stabilisiert.

Das Rausch-Spektrum der Frequenzschwankungen des zu betrachtenden Lichtfeldes, führt zu einer effektiven Linienbreite des Lichtes. Unter Linienbreite versteht man die Verbreiterung des Signals im elektromagnetischen Spektrum, um der zentralen Frequenz des Lichtes. Allerdings hängt die spektrale Linienbreite von der Betrachtungszeitspanne ab. Unter dem Begriff der Linienbreite werden häufig nur schnelle Frequenzfluktuationen, die oberhalb der spektroskopischen Wechselwirkungszeit ($10\ \mu\text{s}$ - $100\ \mu\text{s}$) liegen, beachtet. Langsamere Frequenzänderungen führen zu einer Schwankung der zentralen Lichtfrequenz bis hin zu einem langsamen Drift.

Die spektrale Linienverbreiterung von kohärenten Lichtfeldern wird durch Störungen hervorgerufen, die über einen großen Frequenzbereich hinweg auftreten. Mechanische Störungen treten hauptsächlich im Hz-Bereich auf, wohingegen elektrische Einflüsse im kHz-MHz Bereich dominant werden. Alle diese Störeinflüsse bilden das erwähnte Rausch-Spektrum. Das Ziel der Frequenzstabilisierung ist es, diesem Rauschspektrum entgegen zu wirken, und es zu kompensieren. In dem Laserdiodenaufbau stehen zur aktiven Kompensation zwei frequenzselektive Elemente zur Verfügung. Die langsamen Frequenzkorrekturen ($< 5\ \text{kHz}$) werden mit dem Piezo-betriebenen Reflexionsgitter ausgeführt, wohingegen die schnellen Störungen ($< 5\ \text{MHz}$) durch die Stromsteuerung korrigiert werden können. Um das Frequenzrauschen zu detektieren wird eine Frequenzreferenz benötigt. Dazu wird ein frequenzstabiler Resonator verwendet.

Der Aufbau dieses Referenzresonators ist ausführlich in der Arbeit [40] beschrieben. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden alle drei Laserdiodensysteme aktiv stabilisiert. Um den temperaturabhängigen Längenänderungen des Resonators entgegen zu wirken, wurde die Resonatorlänge zudem aktiv auf ein sehr stabiles Lichtfeld stabilisiert.

3.5.1 Aufbau der aktiven Stabilisierung

Der Resonator besteht aus einem Glaskeramik Werkstoff mit einem geringen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von $\alpha = 0 \pm 0,1 \cdot 10^{-6}\text{K}^{-1}$ ³⁴, auf den die Resonatorspiegel³⁵ geklebt werden. Dabei wird einer der Spiegel vorher an zwei gegeneinander arbeitende Piezomechaniken befestigt, was eine Längenänderung

³⁴(Zerodur Standard, Hellma Optik GmbH)

³⁵(Reflektivität @ 815+1015+1160 nm > 99,98%, Layertec)

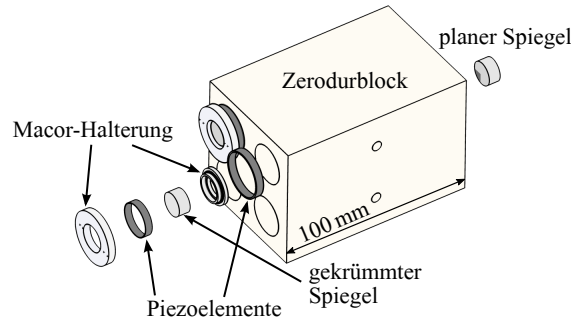


Abbildung 3.19: Explosionszeichnung der Referenzresonatoren.
Der gekrümmte Resonatorspiegel wird über zwei gegeneinander Arbeitende Piezomechaniken an den Zerodur-Block geklebt. In dem Block sind vier Resonatoren untergebracht. Bild aus [40].

des Resonators ermöglicht (siehe Abbildung 3.19). Der Resonator wird sowohl als thermische als auch akustische Isolierung in einer Vakuumkammer ($p \approx 10^{-7}$ mbar) positioniert. Die Finesse des Resonators wurde zu $\mathcal{F} \approx 1500$ bestimmt, der freie Spektralbereich ist durch $\nu_{FSR} \approx 1,5 \cdot 10^9$ Hz gegeben und damit ist die spektrale Breite des Resonators $\delta\nu \approx 1 \cdot 10^6$ Hz.

In der Abbildung 3.20 ist eine detaillierte Skizze des Stabilisierungs-Aufbaus gezeigt. Laser 1 (1160 nm / 1110 nm) wird sowie Laser 2 (1015 nm) in jeweils einen Resonator eingekoppelt, nachdem auf die Lichtfelder Seitenbänder aufmoduliert wurden. Dies geschieht entweder durch einen elektro-optischen Modulator³⁶ oder aber die Seitenbänder werden direkt auf den Diodenstrom moduliert (siehe jeweils die Erklärung der Laseraufbauten). Für die Modenanpassung des einzukoppelnden Strahl wird eine sphärische Linse verwendet. Das am ersten Resonatorspiegel reflektierte Lichtfeld, wird über einen polarisierenden Strahlteiler von einer Fotodiode detektiert, nachdem durch den zweifachen Durchgang einer $\lambda/4$ -Wellenplatte die Polarisation um 90° gedreht wurde. Das Fotodiodensignal wird mit dem Oszillatorsignal der Seitenbandmodulation gemischt, und an einen Regler geschickt der die frequenzselektiven Elemente des Lasers ansteuert. Diese Stabilisierungsmethode wird die Pound-Drever-Hall Methode (PDH) genannt [81,82]. Eine ebenfalls in der Arbeit [40] entwickelte Elektronik liefert dabei das Modulationssignal für die Seitenbänder bei 20 MHz. Dieses Signal wird nach einem Phasenschieber, mit dem Photodiodensignal der Reflexion am Referenzresonator gemischt. Als PID-Regler wird ein Regler von Toptica³⁷ verwendet.

Da sich die Resonanzfrequenz des Referenzresonators langsam verändert ($\approx$ kHz/s), wird die Resonatorlänge aktiv stabilisiert. Dazu wird ein sehr stabiles Lichtfeld (Verwendung des in Abschnitt 4.3.2 beschriebenen Ti:Sa-Lasers @ 729 nm) zusätzlich zu den bereits eingekoppelten Lichtfeldern, in die Resonatoren eingekoppelt. Da die Frequenzveränderungen sehr langsam sind, genügt es, die „side-of-fringe“-Technik zu verwenden, bei der die Flanke der Resonator-

³⁶(EO-PM-NR-C2, Thorlabs)

³⁷(Falc 110, Toptica)

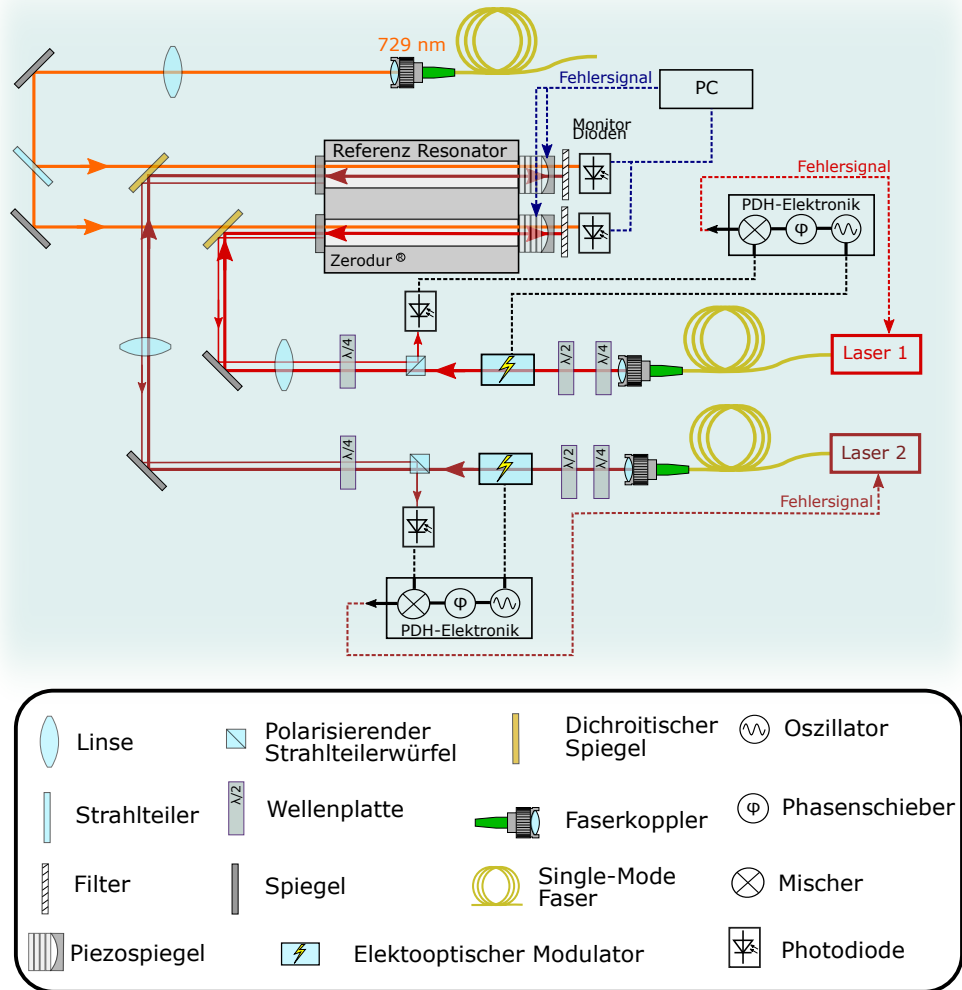


Abbildung 3.20: Detaillierte Skizze des Aufbaus der Laser Stabilisierung. Die beiden Lichtfelder von Laser 1 und 2 werden in zwei separate Resonatoren eingekoppelt. Für die Stabilisierung wird die PDH-Methode verwendet. Um die Resonatorlänge aktiv stabilisieren zu können, wird zudem ein sehr stabiles Lichtfeld (@ 729 nm) in beide Resonatoren eingekoppelt. Mit dem transmittierten Signal werden die Piezomechaniken angesteuert.

Resonanz als Frequenz Diskriminator verwendet wird. Das benötigte Fehlersignal kommt dabei von einer Fotodiode, die das vom Resonator transmittierte Signal detektiert. Die Regelung der Resonatorlänge wurde mit einer eigens dafür geschriebenen Computersteuerung realisiert. Angesichts dieser Stabilisierung ist es zur Zeit nicht notwendig eine zusätzliche aktive Temperaturstabilisierung des Referenzresonators vorzunehmen.

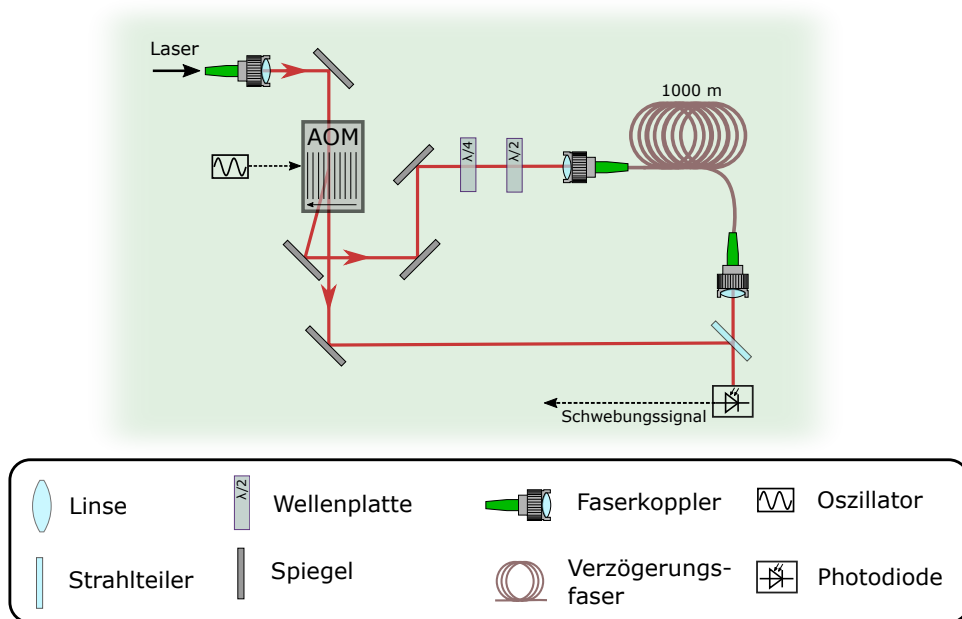


Abbildung 3.21: Skizzierter Aufbau der self-heterodynen Messmethode. Das Signal-Licht wird über eine Faser in das Messsystem eingekoppelt. Durch einen AOM (Akustooptischer Modulator) wird das Licht in zwei Strahlen aufgeteilt, wobei der eine Strahl um 100 MHz in der Frequenz verändert wird. Dieser Strahl wird in die 1000 m Verzögerungsfaser eingekoppelt, und danach wieder mit dem anderen Strahl, auf einer Fotodiode, überlagert. Aus dem Schwebungssignal kann die spektrale Linienbreite berechnet werden.

3.5.2 Linienbreitenmessung mit self-heterodyner Messung

Um eine genauere Aussage über die Linienbreite der einzelnen fundamentalen Lichtfelder machen zu können, wurde die self-heterodyne Messmethode [92–94] verwendet. Dabei wird das Lichtfeld durch ein Mach-Zehnder Interferometer geschickt, wobei der eine Interferometer-Arm eine sehr lange Verzögerungsstrecke aufweist. Der verwendete Aufbau dieser Messmethode ist in Abbildung 3.21 skizziert. Das Signal-Licht wird über eine Faser in das Interferometer eingekoppelt. Ein Akustooptischer Modulator (AOM) teilt das Licht in zwei Strahlen auf, wobei die Frequenz des gestreuten Strahles um ≈ 100 MHz verschoben wird. Dieser Lichtstrahl wird dann in die 1000 m lange Verzögerungsfaser eingekoppelt. Um ein Schwebungssignal zu erzeugen, wird der verzögerte mit dem nicht verzögerten Strahl, auf einer Fotodiode überlagert. Das Schwebungssignal wird mit einem Spektrumanalysator aufgenommen.

Bei dieser Messmethode spielt die Kohärenzlänge des Lichtfeldes eine große Rolle. Die Kohärenzlänge ist durch $L = c/(n \cdot \Delta f)$ gegeben, wobei n der Brechungsindex in der Faser ($n \approx 1,45$) und Δf die spektrale Linienbreite des zu messenden Lichtfeldes ist. Würde das Rausch-Spektrum des Laserlichts nur aus weißem Rauschen bestehen, könnte die Linienbreite mit dieser Messmethode trotz einer sehr kurzen Verzögerungsstrecke, noch sehr genau abgeschätzt

werden. Allerdings wurde gezeigt, dass vor allem Halbleiter-Laserdioden außer dem weißen-, ein starkes $1/f$ -Rauschen aufweisen [95–97]. Während das weiße-Rauschen hauptsächlich durch spontane Emission auftritt, wird das $1/f$ -Rauschen durch die Ladungsträger Schwankungen in der Diode ausgelöst. Ist die Verzögerungsfaser also kürzer als die Kohärenzlänge, dann wird das Rauschen unter der Frequenz $1/\tau_{Faser}$ (τ_{Faser} ist Verzögerungszeit der Faser) nicht aufgelöst. Da dieses Rauschen aber einen Einfluss auf die Linienbreite hat, wird diese somit unterschätzt. Ist hingegen die Verzögerungsstrecke länger als die Kohärenzlänge, dann kann das gemessene Frequenzspektrum durch eine Voigt-Funktion angepasst werden [40,96].

In den meisten hier gezeigten Messungen ist die Verzögerungsfaser kleiner als die Kohärenzlänge. Somit ist zum einen die Modellfunktion zur Abschätzung der Linienbreite komplizierter, zum anderen werden mit dieser Messung die Linienbreiten leicht unterschätzen.

Um aus dem gemessenen Frequenzspektrum eine Linienbreite zu erhalten, betrachtet man die Intensitäts-Autokorrelationsfunktion der Schwebung, welche durch

$$G_E^{(2)} = E_0^4 [(1 + \alpha^2)^2 + 2\alpha^2 \cos(\Omega \cdot \tau) \cdot W \cdot P] \quad (3.1)$$

gegeben ist [92,94]. Dabei ist E_0 die Amplitude des Feldes, α berücksichtigt den Leistungsunterschied in beiden Interferometerpfaden, Ω ist die Schwebungsfrequenz in diesem Fall also die Frequenz des AOMs, W beinhaltet das weiße- und P das $1/f$ -Rauschen. Bei der Wahl der Gewichtungsfaktoren des Rauschens zu k_0 und k_1 mit $[k_0 = [\text{Hz}], k_1 = [\text{Hz}^2]]$ und der Verzögerungszeit τ_0 in [s], werden die einzelnen Rauschterme durch

$$W = \begin{cases} e^{-k_0 \cdot |\tau|} & \text{für } \tau < \tau_0 \\ e^{-k_0 \cdot \tau_0} & \text{für } \tau \geq \tau_0 \end{cases} \quad (3.2)$$

und

$$P = |\tau + \tau_0|^{-\frac{k_1}{2\pi}|\tau+\tau_0|^2} \cdot |\tau - \tau_0|^{-\frac{k_1}{2\pi}|\tau-\tau_0|^2} \cdot \tau^{\frac{k_1}{\pi}\tau^2} \cdot \tau_0^{\frac{k_1}{\pi}\tau_0^2} \quad (3.3)$$

berechnet. Die Fouriertransformation der Funktion $G_E^{(2)}$ aus der Gleichung (3.1) wird dann, durch Variation der zwei Parameter k_0 und k_1 , an das gemessene Spektrum angepasst. Die Linienbreite des Lichtfeldes entspricht der vollen Halbwertsbreite

$$\Gamma_{\text{Voigt}} = 0,5 \left(1,0692 \cdot \Gamma_{\text{Lorentz}} + \sqrt{0,866639 \cdot \Gamma_{\text{Lorentz}}^2 + 4 \cdot \Gamma_{\text{Gauß}}^2} \right), \quad (3.4)$$

einer Voigt-Funktion. Das weiße Rauschen trägt dabei über eine Lorentzfunktion mit

$$\Gamma_{\text{Lorentz}} = \pi \cdot k_0 \quad (3.5)$$

zur Linienbreite bei, das $1/f$ -Rauschen über eine Gaußfunktion $\Gamma_{\text{Gauß}}$. Die Linienbreite hierbei wird durch

$$\Gamma_{\text{Gauß}} = 2\sqrt{2 \cdot \ln(2) \cdot 3,56 \cdot \frac{2}{(2\pi)^3} \cdot k_1} \approx 0,39896 \cdot \sqrt{k_1} \quad (3.6)$$

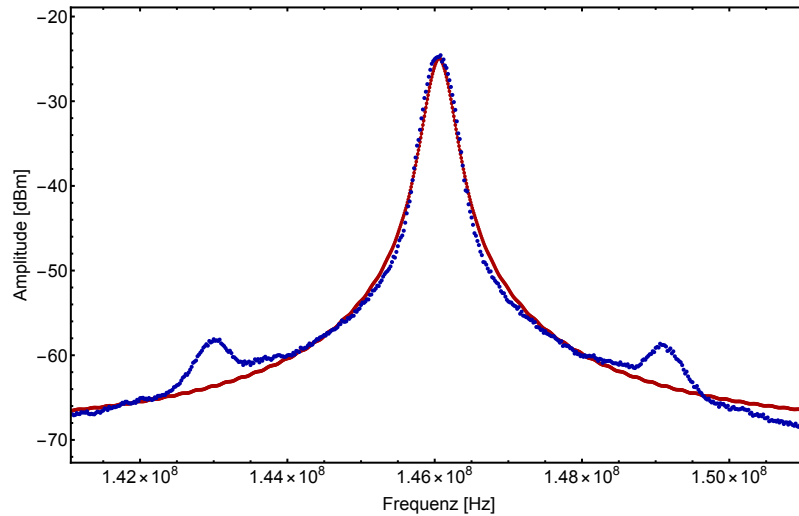


Abbildung 3.22: Linienspektrum der nicht stabilisierten 1015 nm-Laserdiode, aus self-heterodyner Messung. Die gewählten Rauschparameter sind $k_0 = 45(5) \cdot 10^3 \text{ Hz}$ und $k_1 = 330(5) \cdot 10^9 \text{ Hz}^2$. Dies entspricht einer vollen Halbwertsbreite von $\Delta\nu = 314 \text{ kHz}$, für die spektrale Linienbreite. Die Einstellungen des Spektrumanalysator waren: Auflösungsbandbreite = 30 kHz, Videobandbreite = 30 kHz, Durchlaufzeit = 19 ms, Bereich = 10 MHz.

berechnet [92,96].

Linienbreiten der fundamentalen Laserdioden

Im folgenden Abschnitt werden Linienbreitenmessungen von allen fundamentalen Laserdioden gezeigt, und dabei die Linienbreite im nicht stabilisierten als auch stabilisierten Zustand verglichen.

In Abbildung 3.22 ist die, mit einem Spektrumanalysator aufgezeichnete, self-heterodyne Messung der 1015 nm-Laserdiode, im nicht stabilisierten Zustand gezeigt. Das im vorherigen Abschnitt beschriebenen Modell wird an die Messdaten angepasst, und so werden die Rauschparameter ermittelt. Wie in den folgenden Abbildungen zu sehen ist, weist die Modellfunktion teilweise leichte Abweichungen von den Messwerten auf. Dies folgt vor allem aus der beschränkten Annahme, dass das Rauschspektrum lediglich aus weißem- und $1/f$ -Rauschen besteht. Dies führt dann auch zu einem Fehler in der Bestimmung der Rauschparameter.

Die Rauschparameter der Messung der nicht stabilisierten 1015 nm-Laserdiode werden zu $k_0 = 45(5) \cdot 10^3 \text{ Hz}$ und $k_1 = 330(5) \cdot 10^9 \text{ Hz}^2$ ermittelt. Dies entspricht einer vollen Halbwertsbreite von $\Delta\nu = 314(38) \text{ kHz}$, der spektralen Linienbreite. Die Fehler der Rauschparameter wurden im Rahmen der Kurvenanpassung abgeschätzt. In der jeweiligen Bildunterschrift werden die im Spektrumanalysator, für die jeweilige Messung verwendeten Einstellungen aufgelistet.

Sowohl bei dem gemessenen Spektrum der nicht stabilisierten sowie der stabilisierten 1015 nm-Laserdiode tauchen bei $\pm\delta\nu = 3 \text{ MHz}$ Seitenbänder auf. Die

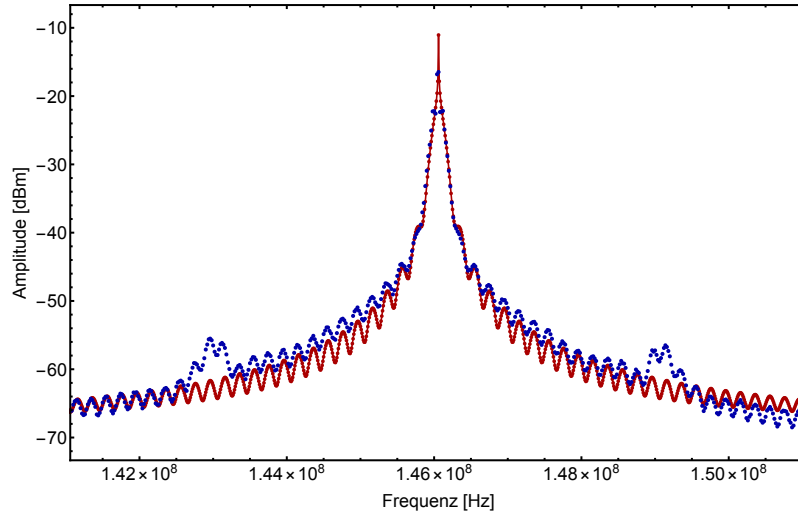


Abbildung 3.23: Linienspektrum der stabilisierten 1015 nm-Laserdiode, aus self-heterodyner Messung. Die gewählten Rauschparameter sind $k_0 = 30(3) \cdot 10^3 \text{ Hz}$ und $k_1 = 60(5) \cdot 10^9 \text{ Hz}^2$. Dies entspricht einer vollen Halbwertsbreite von $\Delta\nu = 158(34) \text{ kHz}$, für die spektrale Linienbreite. Die Einstellungen des Spektrumanalysators waren: Auflösungsbandbreite = 30 kHz, Videobandbreite = 30 kHz, Durchlaufzeit = 19 ms, Bereich = 10 MHz.

Ursache konnte bisher nicht eindeutig identifiziert werden. Da sie in beiden Fällen auftauchen, kann der Ursprung in der Regelelektronik ausgeschlossen werden und auch der Laser-Resonator konnte nicht als Fehlerquelle ausgemacht werden. Eine Vermutung ist, dass der Stromtreiber diese Seitenbänder durch ein konstantes Rauschen auf das Lichtfeld moduliert. Da sie aber $> 30 \text{ dB}$ unterdrückt sind, können sie vorerst vernachlässigt werden.

Bei den Messungen wird zudem die Erwartung bestätigt, dass die self-heterodyne Messmethode von der Kohärenzlänge des Lichtes abhängt. Lichtfelder die eine spektrale Linienbreite $> 200 \text{ kHz}$ aufweisen, haben eine Kohärenzlänge $< 1000 \text{ m}$, und somit sind die beiden Lichtfelder die auf der Fotodiode auftreffen nicht mehr kohärent. Wie in der Theorie vorhergesagt, wird aus der Messungen in Abbildung 3.22 deutlich, dass sich das Spektrum einem Voigt-Profil annähert. Die anderen Spektren, welche alle eine Linienbreite $\Delta\nu < 200 \text{ kHz}$ aufweisen, sind dahingegen nicht durch ein einfaches Voigt-Profil beschreibbar.

In Abbildung 3.23 ist das gemessene Spektrum der stabilisierten 1015 nm-Laserdiode dargestellt. Die ermittelten Rauschparameter sind hierbei $k_0 = 30(3) \cdot 10^3 \text{ Hz}$ und $k_1 = 60(5) \cdot 10^9 \text{ Hz}^2$ was einer vollen Halbwertsbreite von $\Delta\nu = 158(34) \text{ kHz}$. Die leichte Abweichung der Modellkurve von den Messwerten bei einer Frequenz um $\pm 1,4 \text{ MHz}$ (bzgl. der zentralen Resonanzfrequenz), kann durch eine leichte Übersteuerung des Regelkreises begründet werden.

Hier sollte nochmal erwähnt werden, dass die Verringerung der Linienbreite bei dem 1015 nm-Laserdiodensystem zur Zeit durch die auftretende Resonanz im Regelkreis bei $1,36 \text{ MHz}$ limitiert wird. Vernachlässigt man in dem Spektrum aus Abbildung 3.29 die Seitenbänder, dann kann mit dem Modell eine Linien-

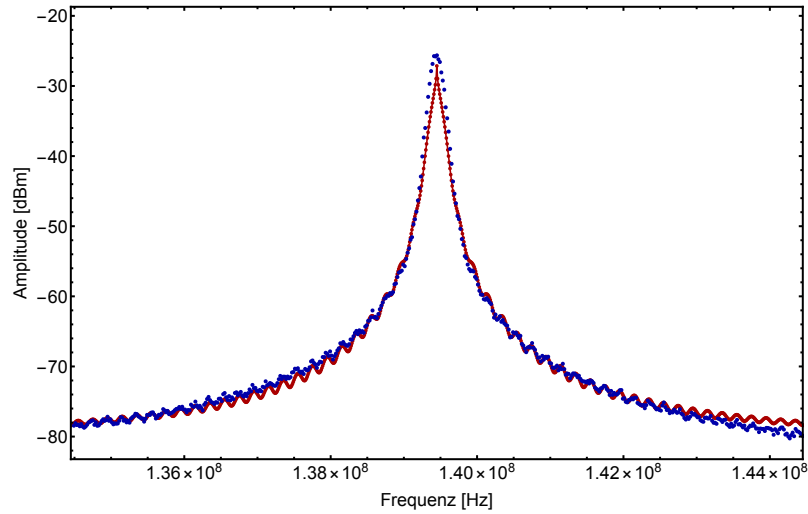


Abbildung 3.24: Linienspektrum der nicht stabilisierten 1160 nm-Laserdiode, aus self-heterodyner Messung. Die gewählten Rauschparameter sind $k_0 = 10(3) \cdot 10^3 \text{ Hz}$ und $k_1 = 140(5) \cdot 10^9 \text{ Hz}^2$. Dies entspricht einer vollen Halbwertsbreite von $\Delta\nu = 167(34) \text{ kHz}$, für die spektrale Linienbreite. Die Einstellungen des Spektrumanalysators waren: Auflösungsbandbreite = 10 kHz, Videobandbreite = 1 kHz, Durchlaufzeit = 1 s, Bereich = 10 MHz.

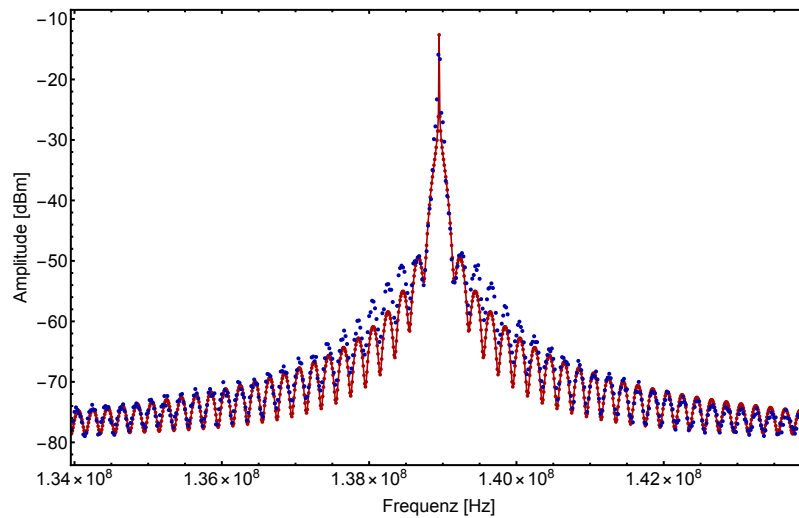


Abbildung 3.25: Linienspektrum der stabilisierten 1160 nm-Laserdiode, aus self-heterodyner Messung. Die gewählten Rauschparameter sind $k_0 = 12(2) \cdot 10^3 \text{ Hz}$ und $k_1 = 19(1) \cdot 10^9 \text{ Hz}^2$. Dies entspricht einer vollen Halbwertsbreite von $\Delta\nu = 78(16) \text{ kHz}$, für die spektrale Linienbreite. Die Einstellungen des Spektrumanalysators waren: Auflösungsbandbreite = 30 kHz, Videobandbreite = 30 kHz, Durchlaufzeit = 20 ms, Bereich = 10 MHz.

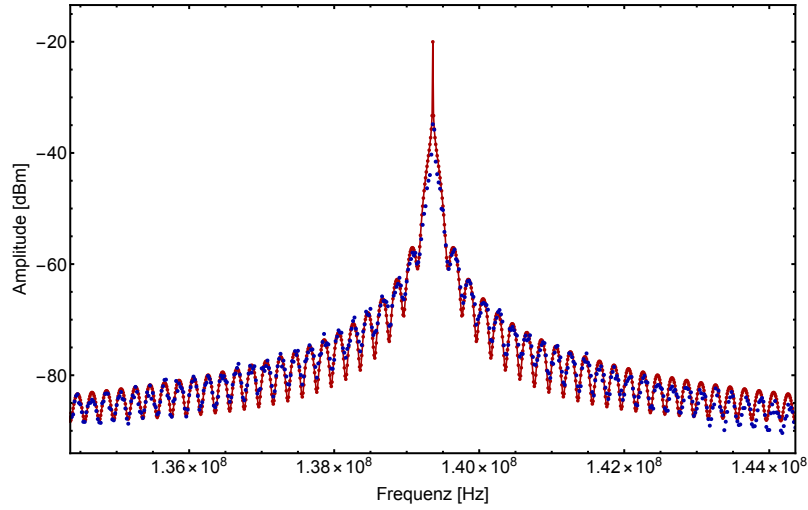


Abbildung 3.26: Linienspektrum der nicht stabilisierten 1110 nm-Laserdiode, aus self-heterodyner Messung. Die gewählten Rauschparameter sind $k_0 = 10(1) \cdot 10^3 \text{ Hz}$ und $k_1 = 20(1) \cdot 10^9 \text{ Hz}^2$. Dies entspricht einer vollen Halbwertsbreite von $\Delta\nu = 75(14) \text{ kHz}$, für die spektrale Linienbreite. Die Einstellungen des Spektrumanalysators waren: Auflösungsbandbreite = 3 kHz, Videobandbreite = 3 kHz, Durchlaufzeit = 2,25 s, Bereich = 10 MHz.

breite von $< 70 \text{ kHz}$ abgeschätzt werden.

In Abbildung 3.24 und 3.25 sind die Spektren der nicht stabilisierten sowie der stabilisierten 1160 nm-Laserdiode gezeigt. Die ermittelten Rauschparameter sind $k_0 = 10(3) \cdot 10^3 \text{ Hz}$ und $k_1 = 140(5) \cdot 10^9 \text{ Hz}^2$ respektive $k_0 = 12(2) \cdot 10^3 \text{ Hz}$ und $k_1 = 19(1) \cdot 10^9 \text{ Hz}^2$. Somit wird durch die aktive Stabilisierung die Linienbreite von $\Delta\nu = 167(34) \text{ kHz}$ auf $\Delta\nu = 78(16) \text{ kHz}$ verringert. Auch hier kann in der Messung des Spektrums der stabilisierten Laserdiode die leichte Abweichung des Modells von den Messwerte um $\pm 1 \text{ MHz}$, mit einer leichten Übersteuerung des Regelkreises begründet werden.

In der Abbildung 3.26 ist das Spektrum der nicht stabilisierten 1110 nm-Laserdiode dargestellt. Die damit ermittelten Rauschparameter sind $k_0 = 10(1) \cdot 10^3 \text{ Hz}$ und $k_1 = 20(1) \cdot 10^9 \text{ Hz}^2$, womit eine Linienbreite von $\Delta\nu = 75(14) \text{ kHz}$ abgeschätzt werden kann. Die Stabilisierung führt bei dieser Diode wie bereits erwähnt wurde nicht zu einer Verringerung der Linienbreite, weshalb an dieser Stelle auf ein gemessenes Spektrum verzichtet wird. In Tabelle 3.1 wurden noch einmal alle Linienbreiten zusammengetragen.

Sowohl durch die Frequenzstabilisierung der 1015 nm-Laserdiode als auch der 1160 nm-Laserdiode konnte die Linienbreite jeweils um einen Faktor zwei verbessert werden. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Spektroskopie-Messungen war die spektrale Linienbreite der fundamentalen Lichtfelder vollkommen ausreichend.

Die Linienbreite des frequenzstabilisierten VUV-Lichtfeldes (@ 123 nm) kann unter Beachtung der Frequenzverdopplungen zu 842(170) kHz abgeschätzt werden. Im unstabilisierten Fall wäre die spektrale Linienbreite des VUV-Lichtfeldes

Tabelle 3.1: Linienbreiten der fundamentalen Laserdioden. Auflistung der durch die Messung abgeschätzten Linienbreiten aller Laserdioden. Dabei konnte die Linienbreite der 1110 nm-Laserdiode nicht verringert werden. Für die Vollständigkeit wurde zudem die Linienbreite des Ti:Sa-Lasersystem aufgeführt. (*) Die nicht stabilisierte Linienbreite des Ti:Sa-Lasersystem wurde vom Hersteller Spezifiziert.

Laserdiode	$\Delta\nu$ (nicht stabilisiert)	$\Delta\nu$ (stabilisiert)
1015 nm	314(38) kHz	158(34) kHz
1110 nm	75(14) kHz	—
1160 nm	167(34) kHz	78(16) kHz
815 nm	< 4 MHz (*)	< 30 kHz

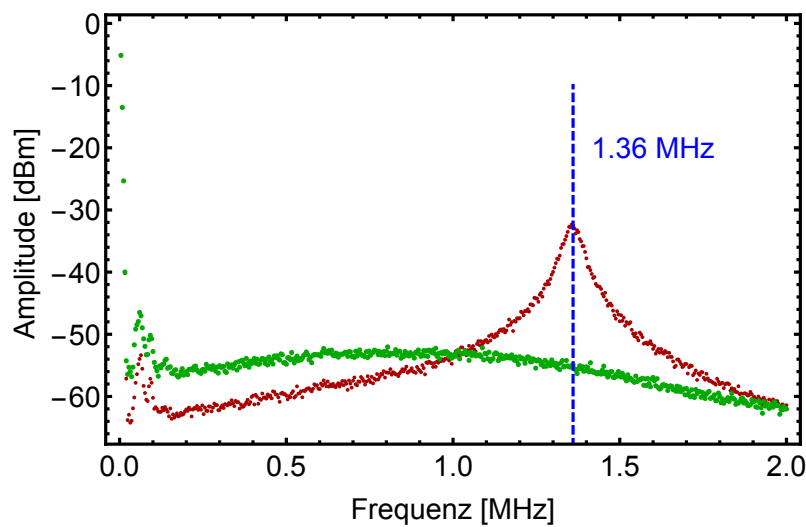


Abbildung 3.27: Rauschspektrum des Fehlersignals der stabilisierten Diode @1015 nm. Das grüne Signal zeigt das mit einem Spektralanalysator aufgenommene Rauschspektrum des Fehlersignals, während die Diode (@1015 nm) mit normal eingestellter Verstärkung stabilisiert wurde. Bei den roten Messwerten wurde die Regelung durch eine hohe Verstärkung zum Aufschwingen gebracht. Die Resonanz wird „Servo-bump“ genannt, und kann als Abschätzung der Regelbandbreite der Stabilisierung angesehen werden.

bei > 10 MHz. Damit wäre die Anregungsrate des Rydberg-Übergangs um den Faktor 10 verringert, was die Spektroskopie erschweren würde. Bei der Abschätzung wurde angenommen, dass die Linienbreite durch eine Frequenzverdopplung verdoppelt wird und die Linienbreite der fundamentalen Lichtfelder beim Summenfrequenzmischen addiert werden.

3.5.2.1 Bandbreitenmessung der Frequenzstabilisierung

Um die Regelbandbreite der verwendeten Stabilisierung abzuschätzen ist es hilfreich, sich das Rauschspektrum des Fehlersignals mit einem Spektralanalysator anzuschauen. In Abbildung 3.27 ist eine Messung dieses Rauschspek-

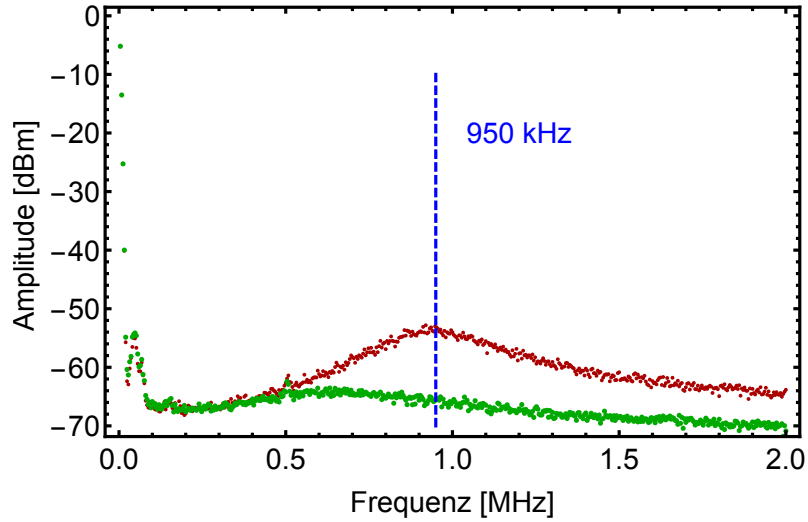


Abbildung 3.28: Rauschspektrum des Fehlersignals der stabilisierten Diode @1160 nm. Das grüne Signal zeigt das mit einem Spektralanalysator aufgenommene Rauschspektrum des Fehlersignals, während die Diode (@1160 nm) mit normal eingestellter Verstärkung stabilisiert wurde. Bei den roten Messwerten wurde die Regelung durch eine hohe Verstärkung zum Aufschwingen gebracht. Die Resonanz wird „Servo-bump“ genannt, und kann als Abschätzung der Regelbandbreite der Stabilisierung angesehen werden.

trum von der stabilisierten Diode mit einer Wellenlänge von 1015 nm gezeigt und in der Abbildung 3.28 ist das Rauschspektrum der stabilisierten Diode mit einer Emissionswellenlänge von 1160 nm gezeigt. Dabei ist die Rauschamplitude gegenüber der jeweiligen Frequenz aufgetragen. Die grüne Kurve zeigt dabei jeweils das Rauschspektrum des aufgenommenen Fehlersignals bei der jeweiligen stabilisierten Diode mit geringer Verstärkung im Regelkreis. Bei den roten Messwerten wurde die Verstärkung erhöht und damit die Regelung zum Aufschwingen gezwungen. Die Frequenz der auftretenden Resonanz kann als Regelbandbreite des Regelkreises abgeschätzt werden.

Mit der Messung kann die Bandbreite des Stabilisierungs-Regelkreises der 1015 nm-Laserdiode mit 1,36 MHz, und die Bandbreite der 1160 nm-Diode mit 950 kHz abgeschätzt werden. Diese Limitierung der Bandbreite wird hauptsächlich durch den auftretenden Phasenversatz der Frequenzantwort der jeweiligen Diode (Abbildung 3.6 und 3.14) hervorgerufen.

Insbesondere in der Abbildung 3.27 fällt auf, dass bei einer höheren Verstärkung der Regelkreis zwar aufschwingt, dafür aber im Frequenzbereich < 1 MHz das Rauschen deutlich stärker unterdrückt wird. Im Regelkreis der 1160 nm-Diode reichten die Verstärkungsreserven nicht aus, um diesen Effekt ebenfalls deutlich zu sehen.

In Abbildung 3.29 wurden mit Hilfe der self-heterodyn Methode die Linienspektren für beide oben erwähnten Fälle aufgenommen. Hierbei ist ebenfalls die Frequenz gegenüber der Amplitude aufgetragen. Für die grünen Messwerte wurde die Stabilisierung bei normaler Verstärkung betrieben, für die roten

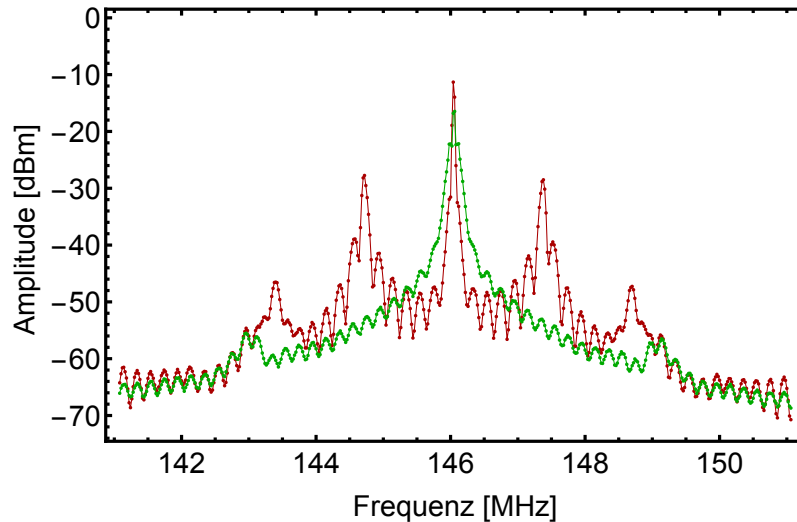


Abbildung 3.29: Linienform der 1015 nm-Laserdiode, bei unterschiedlicher Verstärkung im Regelkreis. Das Linienspektrum der 1015 nm-Laserdiode, bei den in Abbildung 3.27 gezeigten Rauschspektrum des Fehlersignals. Die grüne Kurve zeigt dabei den Stabilisierungsbetrieb mit normaler Verstärkung, die rote Messkurve hingegen bei einem aufschwingenden Regelkreis. Deutlich wird, dass die rote Kurve im Zentrum deutlich schmaler wird, was hauptsächlich durch das stärker unterdrückte $1/f$ -Rauschen unter 1 MHz kommt.

Messwerte wurde der Regelkreis übersteuert. Vergleicht man beiden Spektren, fällt bei der Messung mit dem übersteuerten Regelkreis die deutliche Reduktion der Linienbreite im Zentrum der Resonanz auf. Diese Reduktion der Linienbreite kommt hauptsächlich durch das stärker unterdrückte $1/f$ -Rauschen, was wiederum gut zu der Beobachtung im Rauschspektrum 3.27 passt. Durch die auftretenden Seitenbänder kann die Stabilisierung mit dieser Verstärkung im Experiment jedoch nicht verwendet werden. Noch zu erwähnen bleibt, dass die Frequenz der Seitenbänder zu der im Fehlersignal festgestellten Resonanzfrequenz passt und somit diese Resonanz als Auslöser der Seitenbänder betrachtet werden kann.

In [98] wird vorgeschlagen, in diesem Falle in den Regelkreis einen Phasenschieber zu implementieren, der den durch die Diode hervorgerufenen Phasenversatz kompensieren kann. Dies könnte helfen mit dem gegebenen Aufbau eine deutlich schmalere Linienbreite zu erreichen, da die bisher auftretende Resonanz damit im Regelkreis unterdrückt werden sollte.

3.5.3 Frequenzverstimmung des VUV-Lasersystems

Um die Wellenlänge des VUV-Lichtfeldes zu verstimmen, muss das dritte fundamentale Lichtfeld, und damit die nah-infraroten Lasersysteme (815 nm, 1015 nm, 1110 nm, 1160 nm), verstimmt werden. Trotz der Möglichkeit die Wellenlänge zu verändern, sollen diese Lasersysteme weiterhin auf einen Referenzresonator stabilisiert werden.

Für die Diodenlasersysteme stehen bisher zwei Möglichkeiten für die Verstimmung der Frequenz zur Verfügung.

- Die einfachste Möglichkeit die Emissionswellenlänge der aktiv stabilisierte Laserdiode zu verstimmen ist es, die Länge des Referenzresonators zu ändern. Das wird im Aufbau durch den, auf Piezomechaniken befestigten Spiegel möglich (siehe Abbildung 3.19). Der Hub der Piezomechaniken reicht für eine Verstimmung um bis zu 1,5 GHz. Beim Verwenden dieser Methode ist eine aktive Stabilisierung der Resonatorlänge nicht möglich. Da die Piezomechaniken zudem nach dem Verändern der angelegten Spannung nachschwingen, ist diese Methode sehr ungenau. Zudem sollen bei den in Zukunft verwendeten Referenzresonatoren keine Piezomechaniken mehr verbaut werden.
- Eine Methode mit der einer deutlich größeren Verstimmungsbandbreite ist die Offset-Stabilisierung [99]. Bei dieser Methode werden zwei EOM's verwendet, um zwei verschiedene Seitenbänder auf das Lichtfeld modulieren zu können. Der erste EOM moduliert Seitenbänder mit einer sehr hohen Frequenz auf das Lichtfeld. Wird nun eines dieser Seitenbänder in den Referenz-Resonator eingekoppelt und der Diodenlaser darauf stabilisiert, wird beim Verändern der Seitenband-Modulationsfrequenz direkt die Trägerfrequenz der Laserdiode verändert. Dazu wird ein Fasergekoppelten EOM³⁸ verwendet, welcher eine Bandbreite von bis zu 10 GHz besitzt. Der zweite EOM erzeugt die, für die Stabilisierung benötigten Seitenbänder bei 20 MHz. Somit kann der Laser trotz aktiver Stabilisierung verstimmt werden ohne die Länge des Referenzresonators ändern zu müssen.

Diese Methode wird nur durch die Modensprung-freie Verstimmung der Laserdiode sowie den freien Spektralbereich ν_{FSR} des Referenzresonators begrenzt. Letzteres Problem tritt dadurch auf, dass bei der Frequenz von $\nu_F/2$ sowohl das Seitenband $f + \Omega_{RF}$, als auch das Seitenband $f - \Omega_{RF}$ resonant zu einer longitudinalen Mode des Resonators sind (Mit f der Laserfrequenz und Ω_{RF} der Seitenbandfrequenz). Dieses Problem wurde mit einem Etalon gelöst, welches nach dem ersten EOM platziert wurde. Somit wird nur das benötigte eine Seitenband transmittiert. Das Etalon muss so gewählt werden, dass es einen großen freien Spektralbereich aufweist, da dies die Bandbreite bestimmt. Das verwendete Etalon ist 1 cm lang und hat damit einen freien Spektralbereich von 15 GHz. Dies ist ausreichend, da es schon deutlich größer als die Modulationsbandbreite des verwendeten EOM's ist.

3.6 Vierwellen-Mischen in Quecksilberdampf

Die im Experiment verwendete Vakuumapparatur besteht aus drei Zonen, die in der Skizze in Abbildung 3.30 a) schematisch dargestellt sind. In der ersten Zone,

³⁸(NIR-MPX-LN-10, Photline)

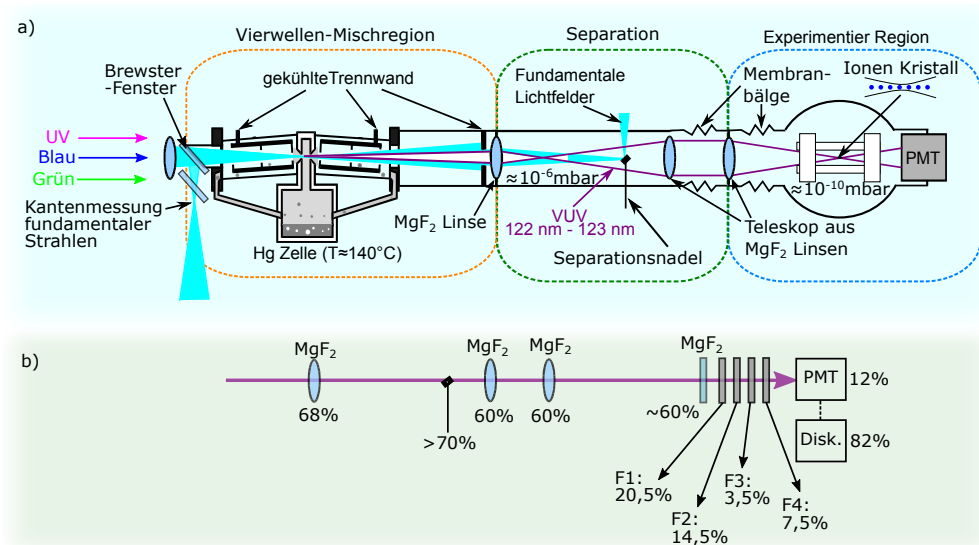


Abbildung 3.30: Schematische Skizze des Aufbaus der Vierwellen-Mischzone und der Vakuumkammer der Paul-Falle. In Teil a) ist die Quecksilberdampfzelle in der Vierwellen-Mischregion skizziert. In der Separationszone werden die fundamentalen Lichtfelder vom VUV-Lichtfeld getrennt, und das VUV-Licht wird über zwei MgF₂-Linsen in die Paul-Falle fokussiert welche in der Experimentier-Region untergebracht ist. Das durch die Paul-Falle transmittierte VUV-Licht wird von einem Photomultiplier (PMT) detektiert. In Teil b) sind die Verluste eingezeichnet, die das VUV-Licht auf dem Weg erfährt. Der Wert ist dabei die Transmission in Prozent. Der Wert für die Nadel musste abgeschätzt werden. Für mehr Information wird auf den Text verwiesen. Bildvorlage aus [20].

der Vierwellen-Mischregion, befindet sich die Quecksilberdampfzelle welche in den Arbeiten [34,35] aufgebaut wurde. Für weitergehende Informationen wird daher auf diese Arbeiten verwiesen.

Die drei fundamentalen Lichtfelder werden über eine unbeschichtete Linse³⁹ und ein Brewster-Fenster in die Mischregion eingestrahlt, nachdem sie durch dichroitische Spiegel überlagert wurden. An der Linse verlieren die drei fundamentalen Strahlen jeweils 7% – 8% an Leistung. Da die in dieser Arbeit angegebenen Leistungen der fundamentalen Lichtfelder vor dieser Linse gemessen wurden, muss dieser Verlust bei der Berechnung der maximal erreichbaren VUV-Leistung beachtet werden. Der durch die Linse erzeugte Fokus aller drei fundamentalen Lichtfelder liegt somit in der Mitte der Quecksilberdampfzelle, in der sich das benötigte nichtlineare Medium befindet.

Das Quecksilber wird aus einem auf 120°C – 150°C (je nach Phasen Anpassung) geheiztem Reservoir gewonnen, welches unterhalb der Zelle befestigt ist. Zu beiden Seiten hin befinden sich wassergekühlte Wände, sodass der Quecksilberdampf daran kondensieren kann. Das erzeugte kohärente VUV-Lichtfeld verlässt die Zelle zusammen mit den drei fundamentalen Lichtfeldern, und wird durch eine MgF₂-Linse in die Separations-Zone fokussiert. Der Brechungsindex

³⁹Quarzglas, $f = 150 \text{ mm}$

von MgF_2 für das VUV-Licht ($n \approx 1,6$) weicht deutlich von dem Brechungsindex für die drei fundamentalen Lichtfelder ($n = 1,40 - 1,38$) ab (siehe in Abschnitt C.3). Dies führt hinter der Linse zu einer Fokusposition $f_{\text{VUV}} \approx 130 \text{ mm}$ vom VUV-Lichtfeld, die deutlich vor dem Fokus der anderen Lichtfelder ($f_{254 \text{ nm}} \approx 20,1 \text{ mm}$, $f_{408 \text{ nm}} \approx 21,1 \text{ mm}$ und $f_{580 \text{ nm}} \approx 21,7 \text{ mm}$) liegt. Somit können die fundamentalen Lichtfelder an ihrer Fokusposition durch eine kleine polierte Nadel ($\varnothing 1 \text{ mm}$) aus der Vakuumkammer heraus reflektiert, und vom VUV-Licht getrennt werden. Durch diese Methode verliert man weniger als 30% an VUV-Leistung, die fundamentalen Strahlen können jedoch zu annähernd 100% unterdrückt werden. Das VUV-Lichtfeld wird dann durch ein Teleskop in die Paul-Falle fokussiert, die sich in der Experimentier-Zone befindet. Dieser Aufbau wird in Abschnitt 3.7 näher behandelt.

Das VUV-Lichtfeld wird nach dem Durchqueren der Paul-Falle mit einem Photomultiplier⁴⁰ detektiert. Das Signal des Photomultiplier wird verstärkt⁴¹ und die einzelnen Pulse, nach einem Diskriminator⁴², von einem Zähler⁴³ gezählt. Die Detektionseffizienz des Photomultipliers bei VUV-Strahlung wird vom Hersteller auf 12% spezifiziert. Der Diskriminator lässt von diesen Pulsen wiederum nur 82% passieren. Hierbei sollte aber beachtet werden, dass die gemessene Photonenrate aufgrund von Rauschen höher sein kann. Um ein Sättigen des Photomultipliers zu verhindern sowie Streustrahlung bei 254 nm herauszufiltern, werden vier Filter⁴⁴ vor dem Photomultiplier befestigt. Eine anschauliche Zusammenfassung aller Verluste ist in der Abbildung 3.30 b) gegeben.

Um mögliche Reflexe des VUV-Lichtfeldes an den Filtern nicht zurück in die Falle zu streuen, wird der Photomultiplier unter einem Winkel von 5° bezüglich der Vakuumkammer befestigt (Technische Zeichnung des verwendeten Halters in Abbildung D.4). Da die VUV-Filter Interferenzfilter sind, lag die Vermutung nahe, dass sich deren Transmission durch diesen Winkel verändert. Um den zusätzlichen Verlust abschätzen zu können, wurde die VUV-Leistung einmal mit, und einmal ohne den Winkel (mit Hilfe eines Adapters) gemessen. Bei dieser Messung konnte im Rahmen der angenommenen Fehler, keine Veränderung der gemessenen Effizienz festgestellt werden.

3.6.1 Strahlformung der fundamentalen Lichtfelder

Die Strahlformung der fundamentalen Lichtfelder ist essentiell, um im Vierwellen-Mischprozess eine hohe Effizienz zu erhalten. Um einen möglichst scharfen Fokus in der Vierwellen-Mischzone zu erreichen, müssen alle fundamentalen Lichtfelder durch optische Teleskope einem Gaußstrahl in der Grundmode angepasst werden. Zudem weisen alle drei fundamentalen Lichtfelder einen starken Astigmatismus auf welcher korrigiert werden muss.

⁴⁰(R6835, Hamamatsu)

⁴¹(Model SR440, Stanford Research Systems)

⁴²(Model SR430, Stanford Research Systems)

⁴³(53132A, Agilent)

⁴⁴(F1:122-XN-1D F2 (20,5%), F2:122-N-1D F3 (14,5%), F3:122-N-1D XF2 (3,5%), F4:122-XN-1D (7,5%), Acton)

Um die Fokusposition sowie die Fokusgröße bestimmen zu können, wird eine Kantenmessung die auch Knife-Edge Methode genannt wird [100] verwendet. Die Kantenmessung wird an dem Strahl vorgenommen, der von dem Brewsterfenster an der Quecksilberdampfzelle reflektiert wird (siehe dazu Abbildung 3.30). Um den Astigmatismus zu simulieren, der beim Durchgang durch das Brewsterfenster auftritt, wird in den reflektierten Strahl ebenfalls ein Brewsterfenster gestellt. Die dort gemessenen Strahltaillen w_0 der fundamentalen Strahlen, entsprechen somit den Foki wie sie in der Dampfzelle vorliegen. Um diese, bisher langwierige, halbautomatische Strahlradius Messung zu optimieren, wurde eine vollautomatische Messeinheit entwickelt. Dabei wird der Strahl an verschiedenen z-Positionen durch eine Rasierklinge vermessen, die mit motorisierten Verschiebetischen (Thorlabs) durch den Strahl gefahren wird. Der Intensitätsverlauf nach der Rasierklinge wird mit einer Photodiode aufgezeichnet und mit Hilfe der Steuerungssoftware wird aus den Messdaten der Strahlradius w_0 , die Fokusposition z und die Beugungsmaßzahl M^2 berechnet. Durch Anpassen der gaußschen Fehlerfunktion [101]

$$F(x) = \frac{P}{2} + \left(1 + \operatorname{erf} \left(\frac{\sqrt{2} \cdot (x - z)}{w_z} \right) \right) + \text{Off} \quad (3.7)$$

an den gemessenen Intensitätsverlauf einer z-Position, kann für diese Position der Strahlradius w_z bestimmt werden. Hierbei ist P die Amplitude des Lichtfeldes, $\operatorname{erf}(x)$ die Fehlerfunktion und Off ein verwendeter Messdatenoffset. Um die Fokusposition z_0 , sowie die Strahlgröße w_0 an der Fokusposition zu bestimmen, wird die Funktion

$$w(z) = w_0 \cdot \sqrt{1 + \left(\frac{(z - z_0) \cdot M^2 \cdot \lambda}{\pi \cdot w_0^2} \right)^2} \quad (3.8)$$

an die gesammelten Strahlgrößen bei den verschiedenen z-Positionen angepasst. Dabei ist M^2 die Beugungsmaßzahl die das Verhältnis vom vorliegenden Strahlparameterprodukt ($w_0 \Theta = M^2 \cdot (\lambda/\pi)$) zu dem des idealen Gaußstrahles angibt. Zudem ist λ die Wellenlänge, w_0 die Strahlgröße an der Fokusposition und Θ der Divergenzwinkel.

UV-Lichtfeld (254 nm)

Das UV-Lichtfeld erfährt auf dem Weg aus dem Verdopplungsresonator, durch die Teleskope hin zum Leistungsmessgerät Verluste in Höhe von $\approx 25\%$ bzgl. der Ausgangsleistung sowie weitere 8% hin zur Vierwellenmischzone.

In der Abbildung 3.31 a) ist die Kantenmessung des fundamentalen UV-Strahls gezeigt. Dabei fällt auf, dass dieser Strahl einen sehr scharfen Fokus besitzt und dabei nur leicht elliptisch ist. Die Beugungsmaßzahl ist mit $M_x^2 = 1,13(4)$ und $M_y^2 = 1,04(5)$ als sehr gut zu bezeichnen. Die bei der Messung auftretenden Fehler werden mit $\Delta w_{zx} = \Delta w_{zy} < 1 \mu\text{m}$ abgeschätzt, und werden in der Abbildung daher nicht aufgelöst. Die angegebenen Fehler kommen aus der Anpassung der Gleichung (3.8) an die Messwerte.

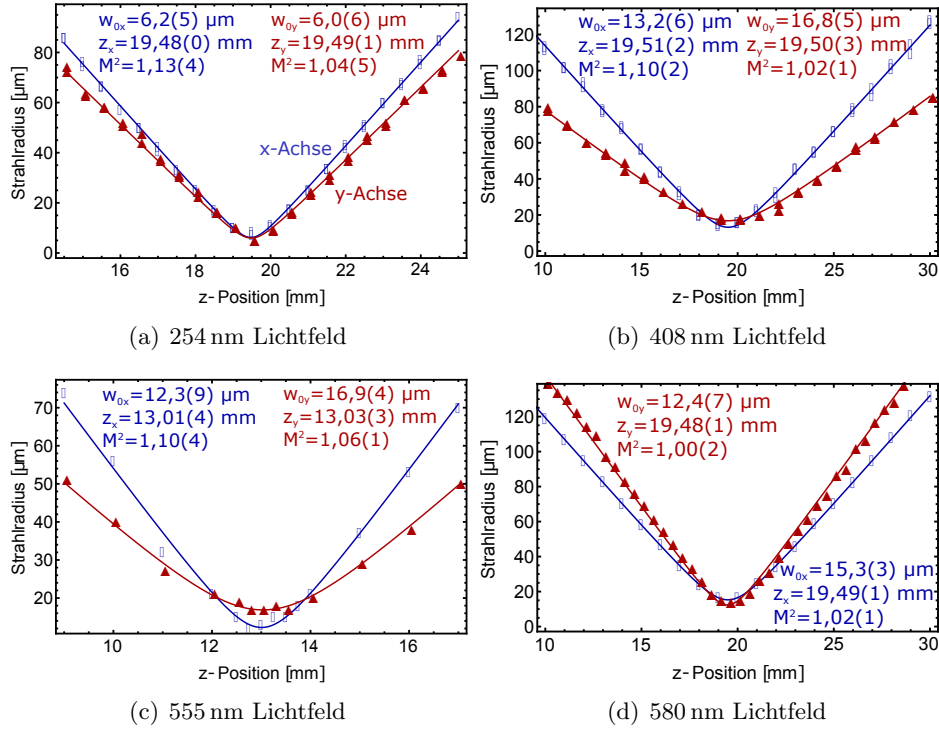


Abbildung 3.31: Kantenmessung der fundamentalen Strahlen. Die Messung zeigt den Strahlradius (blau/Quader = x-Achse, rot/Dreieck = y-Achse) am Ort der Vierwellen-Mischzone, an verschiedenen Punkten in Ausbreitungsrichtung (z-Achse). An die Messpunkte wird die Funktion 3.8 angepasst, wobei die ermittelten Parameter im Bild gezeigt werden. Die bei der Messung auftretenden Fehler (abgeschätzt mit $\Delta w_x = \Delta w_y < 1 \mu\text{m}$), werden in dieser Abbildung nicht aufgelöst. Die angegebenen Fehler kommen aus der Anpassung der Gleichung (3.8) an die Messwerte.

Blaues-Lichtfeld (408 nm)

Die Verluste auf dem Weg aus dem Verdopplungsresonator, durch die Teleskope hin zum Leistungsmessgerät belaufen sich bei diesem Lichtfeld auf $\approx 20\%$, bzgl. der Ausgangsleistung sowie weitere 7% hin zur Vierwellenmischzone.

Auch an dem fundamentalen Strahl mit einer Wellenlänge von 408 nm wurde eine Kantenmessung durchgeführt. In Abbildung 3.31 b) ist die Kantenmessung des blauen Lichtfeldes gezeigt. Der Strahl am Ort des Fokus ist leicht elliptisch, und der Radius dabei doppelt so groß ist wie der Radius des UV-Strahls am Ort des Fokus. Die Beugungsmaßzahl in der x-Achse ist mit $M_x^2 = 1,10(2)$ akzeptabel, wohingegen die Beugungsmaßzahl in der y-Achse mit $M_y^2 = 1,02(1)$ sehr gut ist. Auch hier kommen die Fehler aus der Anpassung der Gleichung (3.8) an die Messwerte.

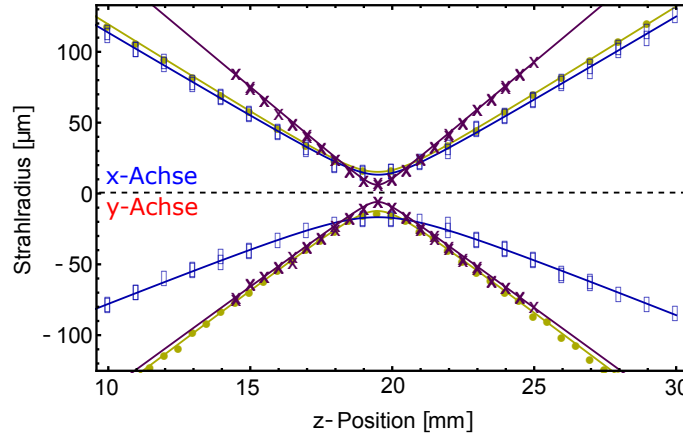


Abbildung 3.32: Kantenmessung aller drei fundamentalen Strahlen. Die Messung zeigt den Strahlradius am Ort der Vierwellen-Mischzone ($\lambda/\text{violett} = 254 \text{ nm}$, $\lambda/\text{blau} = 408 \text{ nm}$, $\lambda/\text{gelb} = 580 \text{ nm}$), an verschiedenen Punkten in Ausbreitungsrichtung (z -Achse). Der positive Bildabschnitt zeigt die Messungen des Radius in horizontaler Ebene (x -Achse). Der negative Bildabschnitt zeigt die Messungen in vertikaler Ebene (y -Achse). An die Messpunkte wird die Funktion 3.8 angepasst.

Grünes-Lichtfeld (555 nm)

Die Fokusgröße am Ort der Vierwellen-Mischzone wurde durch eine Kantenmessung zu $w_{0x} = 12,3(9) \mu\text{m}$ und $w_{0y} = 16,9(4) \mu\text{m}$ bestimmt. Die dabei auftretende Beugungsmaßzahl ist $M_x^2 = 1,10(4)$ und $M_y^2 = 1,06(1)$. Die Messung ist in Abbildung 3.31 c) gezeigt. Die angegebenen Fehler kommen aus der Anpassung der Gleichung (3.8) an die Messwerte.

Gelbes-Lichtfeld (580 nm)

Das Lichtfeld mit einer Wellenlänge um 580 nm erfährt Verluste von $\approx 14\%$ bezüglich der Ausgangsleistung, auf dem Weg vom Verdopplungsresonator durch die Teleskope bis hin zum Leistungsmessgerät und weitere 7% zur Vierwellen-Mischzone.

Nach dem Teleskop wurde ebenfalls eine Kantenmessung an dem dritten fundamentalen Strahl mit einer Wellenlänge von 580 nm durchgeführt. In der Abbildung 3.31 d) ist die Kantenmessung gezeigt. Auch dieser Strahl ist leicht elliptisch am Ort des Fokus, und die Fokusgröße ist annähernd doppelt so groß wie die des UV-Strahls. Dahingegen ist die Beugungsmaßzahl ($M_x^2 = 1,02(1)$, $M_y^2 = 1,00(2)$) sehr gut. Die angegebenen Fehler kommen aus der Anpassung der Gleichung (3.8) an die Messwerte.

Zusammenfassung

In der Gleichung (2.39) ist durch den b -Parameter deutlich ersichtlich, dass stärker fokussierte Strahlen zu einer höheren VUV-Leistung führen. Aus diesem Grund versucht man die Fokusgröße der fundamentalen Strahlen in der

Quecksilberdampf-Zelle auf einen möglichst kleine Wert zu bringen. Zudem sollten die drei fundamentalen Lichtfelder kollinear sein, die gleiche Fokusposition aufweisen und dabei keinen Astigmatismus besitzen. Für die Fokussierung aller Strahlen in die Vierwellen-Mischzone, wird eine sphärische Linse mit einer Brennweite von $f = 150$ mm verwendet. Somit muss der grüne Strahl anfokusiert werden und der UV-Strahl leicht divergent auf die Linse treffen, damit für alle fundamentalen Strahlen die gleiche Fokusposition erreicht werden kann. Damit die Fokusgröße zudem möglichst klein wird, werden die fundamentalen Strahlen durch die Teleskope vor der Linse aufgeweitet.

In Abbildung 3.32 sind die Kantenmessungen aller fundamentaler Strahlen Zusammengetragen und in Tabelle 3.2 sind der Übersicht halber nochmals alle gemessenen Strahlparameter Zusammengetragen. Dabei fällt auf, dass die Fokuspositionen z gut überlagert sind und die Beugungsmaßzahlen mit $M^2 < 1,1$ als gut betrachtet werden können. Eine Idee, um die Abweichung der Fokusgrößen zu verringern, ist es, eine asphärische Linse für die Fokussierung der fundamentalen Lichtfelder zu verwenden. Durch die Wahl unterschiedlicher Strahlradien auf dieser Linse, können die Fokusgrößen besser angepasst werden, da mit einer asphärischen Linse die Abbildungsfehler vernachlässigt werden können.

Tabelle 3.2: Kantenmessung aller fundamentaler Strahlen. Es ist jeweils der Strahlradius am Ort des Fokus (w_0), und die Fokusposition (z) der fundamentalen Lichtfelder aufgelistet. Die Messungen dazu, werden in jeweiligen Abschnitten der fundamentalen Lichtfelder diskutiert. Die Fokusposition z des Lichtfeldes mit einer Wellenlänge bei 555 nm, kann mit den anderen Messungen nicht verglichen werden, da die Werte einen unbekannten Offset aufweisen.

Wellenlänge	$w_{0x}[\mu\text{m}]$	$w_{0y}[\mu\text{m}]$	$z_x[\text{mm}]$	$z_y[\text{mm}]$	M_x^2	M_y^2
254 nm	6,2(5)	6,0(6)	19,48(0)	19,49(1)	1,13(4)	1,04(5)
408 nm	13,2(6)	16,8(5)	19,51(2)	19,50(3)	1,10(2)	1,02(1)
580 nm	15,3(3)	12,4(7)	19,48(1)	19,49(1)	1,02(1)	1,00(2)
555 nm	12,3(9)	16,9(4)	-	-	1,10(2)	1,02(1)

3.6.2 Effizienzmessung

Die Effizienzmessung des Vierwellen-Mischprozesses ist vor allem für die Abschätzung der erreichbaren Rydberg-Anregungsraten sowie der möglichen Rabi-Frequenzen interessant. Aus diesem Grund werden im folgenden Abschnitt gemessene Effizienzkurven um die 10^1P - sowie der 11^1P -Resonanz gezeigt. Für die Anpassung der Modellkurve an die Messwerte wurde ein bereits in der Gruppe vorliegenden Mathematica-Programm verwendet. Dem Programm liegt die in Abschnitt 2.3 beschriebene Theorie zu Grunde.

Mit den in Abbildung 3.30 b) aufgelisteten Verlusten, lässt sich aus der Photonenzählrate $n \cdot \text{cts/s}$ die für die Bestimmung der Effizienz benötigte VUV-Leistung abschätzen. Mit einer VUV-Photonenenergie von $E_{122\text{ nm}} \approx 1,63 \cdot 10^{-18}\text{J}$ und den Verlusten die das VUV-Lichtfeld von der Falle bis hin zum

Photomultiplier erfährt, kann die Zählrate der VUV-Photonen n mit

$$\begin{aligned} \text{Ca}^+: \quad n \cdot \frac{\text{cts}}{\text{s}} &\hat{=} \text{Zählrate} \cdot \frac{\text{Photon-Energie}}{\text{Verluste bis PMT}} = n \cdot \frac{1,63 \cdot 10^{-18} \text{ J}}{4,6 \cdot 10^{-6} \text{ s}} \\ &= n \cdot 3,54 \cdot 10^{-13} \text{ W} \end{aligned} \quad (3.9)$$

zu einer Leistung in der Paul-Falle abgeschätzt werden. Somit ist die dort auftretende VUV-Leistung ungefähr um einen Faktor 6 kleiner als in der Vierwellen-Mischzone. Die in der Vierwellen-Mischzone auftretende VUV-Leistung kann durch

$$\text{VWM:} \quad n \cdot \frac{\text{cts}}{\text{s}} \hat{=} n \cdot \frac{1,63 \cdot 10^{-18} \text{ J}}{7,9 \cdot 10^{-7} \text{ s}} = n \cdot 2,06 \cdot 10^{-12} \text{ W} \quad (3.10)$$

berechnet werden.

Diese Umrechnung ist allerdings nur für den aktuellen experimentellen Aufbau gültig. Da die Messung der Effizienz um die 11^1P -Resonanz (siehe Abbildung 3.33) zu einem früheren Zeitpunkt durchgeführt wurde, waren sowohl andere VUV-Filter, sowie andere MgF_2 -Fenster und -Linsen im Experiment verbaut. Daher wurde an dieser Stelle für die Berechnung der Effizienz die Umrechnung

$$\text{VWM}_{\text{alt}}: \quad n \cdot \frac{\text{cts}}{\text{s}} \hat{=} n \cdot 1,01504 \cdot 10^{-13} \text{ W} \quad (3.11)$$

verwendet. Hierbei ist die VUV-Leistung in der Paul-Falle ungefähr um einen Faktor 4 kleiner als in der Vierwellen-Mischzone.

Die im Experiment erreichbare Effizienz hängt mit einigen optimierbaren Parametern zusammen. Zum einen ist dies die Phasenanpassung, wobei diese sowohl mit der Quecksilber Temperatur als auch mit dem b-Parameter ($b = 2\pi \cdot w_0^2/\lambda$) der fundamentalen Gauß-Strahlen zusammenhängt. Die Erfahrungen zeigen, dass die Phasenanpassung im alltäglichen Betrieb des Lasersystems relativ stabil ist und nur selten einer Optimierung bedarf. Um für den Mischprozess eine möglichst hohe Intensität der fundamentalen Laserstrahlen zu erreichen, wird für die drei Strahlen allerdings nicht der gleiche b-Parameter verwendet. Stattdessen wird jeder fundamentale Strahl möglichst stark fokussiert.

Als weiterer optimierbarer Parameter hat die Überlagerung der fundamentalen Strahlen einen großen Einfluss auf die erreichbare Mischeffizienz. Im Gegensatz zur Phasenanpassung wird die Überlagerung der fundamentalen Laserstrahlen im alltäglichen Betrieb durch einige Faktoren verschlechtert. Dabei haben die teilweise stark schwankende Labortemperatur und die häufig notwendigen Justierungen an den Verdopplungsresonatoren der fundamentalen Lichtfelder, den größten negativen Einfluss. Um möglichst mit der maximal erreichbaren Effizienz arbeiten zu können, muss die Überlagerung täglich angepasst werden. Dazu wird für jeden fundamentalen Strahl ein durch Piezoaktuatoren betriebener Spiegel verwendet. Da mit einem Spiegel allerdings nicht alle Freiheitsgrade zur Verfügung stehen, ist eine Optimierung auf diese Weise nur eingeschränkt möglich. Da sich mit der Zeit sowohl die Lage als auch der Winkel der fundamentalen Strahlen verändert, nimmt die maximal erreichbare Effizienz mit der

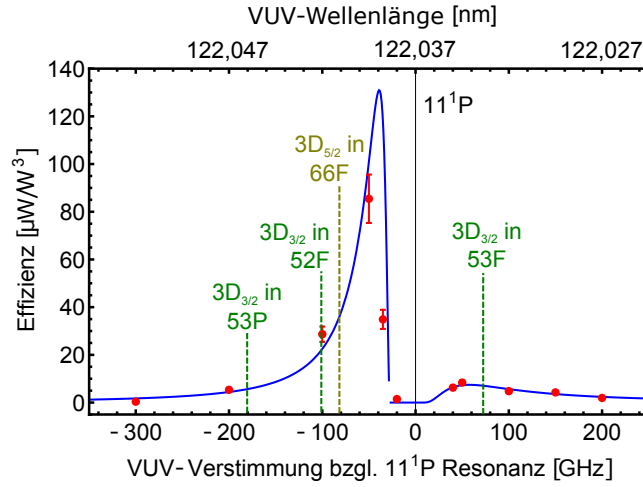


Abbildung 3.33: Effizienzmessung um 11^1P -Resonanz mit einer UV-Verstimmung von 134 GHz. Die roten Punkte sind gemessene Werte der Effizienz in $\mu W/W^3$. Der Fehler wurde aus Leistungsschwankungen sowohl der fundamentalen Lichtfelder, als auch der VUV-Zählrate abgeschätzt. Die blaue Kurve wurde mit dem in Kapitel 2.3 vorgestellten Modell erzeugt. Dabei wurde die gemessene UV-Verstimmung von 134,2 GHz und der gemessene b-Parameter von 1,27 mm angenommen. Die Phasenanspassungstemperatur des Quecksilbers wurde zu 143 °C bestimmt. Bei dieser Messung wurde die Emissionswellenlänge der 1110 nm-Laserdiode durchgestimmt.

Zeit ab. Da eine Optimierung der Strahlüberlagerung sehr zeitaufwendig ist und oft eine Justierung der verwendeten Teleskope in den fundamentalen Lichtfeldern benötigt, wird diese Optimierung nicht regelmäßig durchgeführt. Die im alltäglichen Betrieb erreichte Mischeffizienz kann somit erfahrungsgemäß bis zu einer Größenordnung von der maximal erreichbaren Effizienz abweichen.

Im folgenden werden zwei gemessene Effizienzkurven gezeigt. Für diese Messungen wurde die Wellenlänge des dritten fundamentalen Lichtfelds in die Nähe der Quecksilber-Resonanzen 10^1P und 11^1P verstimmt und die jeweilige VUV-Photonenzählrate sowie die Leistung aller fundamentalen Lichtfelder pro Messpunkt aufgenommen. Die Effizienzwerte, welche aus der Messung gewonnen werden, spiegeln aus vorher genannten Gründen die im alltäglichen Durchschnitt, nicht die maximal erreichbaren Effizienzen wieder. Dabei sei aber zu erwähnen, dass die Qualität der Strahlüberlagerung näherungsweise als einfacher Skalierungsfaktor in die Effizienz eingeht. Am Ende dieses Abschnittes werden zudem die dokumentierten Höchstwerte an erreichter Effizienz aufgelistet.

11^1P Quecksilber Resonanz

Für die Anregung in die hohen Rydberg-Niveaus ($n > 50$), wird VUV-Licht mit einer Wellenlänge um 122 nm benötigt. Um dieses Licht zu erzeugen muss die 11^1P -Resonanz in Quecksilber vom dritten fundamentalen Lichtfeld ausgenutzt werden. Dafür wird das in 3.3 vorgestellte Lasersystem verwendet.

Für den Fall, dass die VUV-Verstimmung groß ist, kann für eine UV-Verstimmung zur 6^3P -Resonanz von $\Delta UV = 134$ GHz, eine optimale Phasenanpassungstemperatur von $T = 140^\circ\text{C}$ berechnet werden. In [37] wird ausführlich diskutiert, dass sich für kleine VUV-Verstimmungen bezüglich der Quecksilber-Resonanz, die optimale Phasenanpassungstemperatur dramatisch verändert. In diesem Fall muss für jede VUV-Wellenlänge und fester UV-Verstimmung, die optimale Phasenanpassungstemperatur berechnet oder experimentell ermittelt werden.

Für die folgenden Messungen wurde die Quecksilber Temperatur auf die optimale Phasenanpassung für den fern resonanten Fall eingestellt und jeder Messpunkt mit der gleichen Temperatur aufgenommen. In Abbildung 3.33 ist die Messung der VUV-Effizienz um die 11^1P -Resonanz des Quecksilbers gezeigt, wobei die UV-Verstimmung dabei auf $\Delta UV = 134$ GHz eingestellt war. Die Fehler wurden aus den Leistungsschwankungen der fundamentalen Lichtfelder sowie der VUV-Zählrate berechnet.

Die angepasste Kurve ist eine Modellkurve, die mit Hilfe der in Abschnitt 2.3 vorgestellten Theorie berechnet wurde. Dabei muss die UV-Verstimmung zur 6^3P -Resonanz (ΔUV), der mittlere b-Parameter der fundamentalen Lichtfelder und die Phasenanpassungstemperatur in die Berechnung eingefügt werden [35]. Die Überlagerung der fundamentalen Strahlen, sowie deren schlechte Strahlqualität werden durch einen einfachen Skalierungsfaktor U in der Berechnung der Effizienz berücksichtigt. Um auch Absorption von VUV-Strahlung außerhalb der kurzen Mischzone zu berücksichtigen, wird eine variable Absorptionslänge A bei gleichbleibender Quecksilberdichte als Parameter integriert. Somit wird die Effizienz vor allem in der Nähe der Resonanz reduziert

Von diesen Parametern kann die UV-Verstimmung (134,2 GHz) sowie die Temperatur (145(5) °C) gemessen werden. Der mittlere b-Parameter wird mit $b = 1,29(16)$ mm abgeschätzt. Dazu wurde die Größe des VUV-Strahls in der Vierwellen-Mischzone mit der Gleichung [102]

$$w_{VUV} = \frac{1}{\sqrt{w_{UV}^{-2} + w_{blau}^{-2} + w_{gelb}^{-2}}} \approx 6 \mu\text{m}, \quad (3.12)$$

und den gemessenen Fokusgrößen der fundamentalen Strahlen abgeschätzt. Da die beiden Konstanten A und U nicht gemessen werden können, müssen sie in der Modellberechnung angepasst werden.

In der Abbildung 3.33 wird deutlich, dass die berechnete Modellkurve gut mit den gemessenen Werten übereinstimmt. In dieser Abbildung sind zudem die bereits verifizierten Rydberg-Resonanzen $52F$, $53F$ und $66F$ [61], sowie die VUV-Wellenlänge der vermuteten Rydberg-Resonanz $53P$ eingetragen. In der Tabelle 3.3 sind die bei den Wellenlängen der Rydberg-Resonanzen gemessenen Effizienzen, sowie die dort erreichbare VUV-Leistung zusammengetragen.

10¹P Quecksilber Resonanz

Um in die niedrigen Rydberg Niveaus ($n \approx 20$) anregen zu können, wird ein VUV-Lichtfeld mit einer Wellenlänge um 123 nm benötigt. Das dafür verwen-

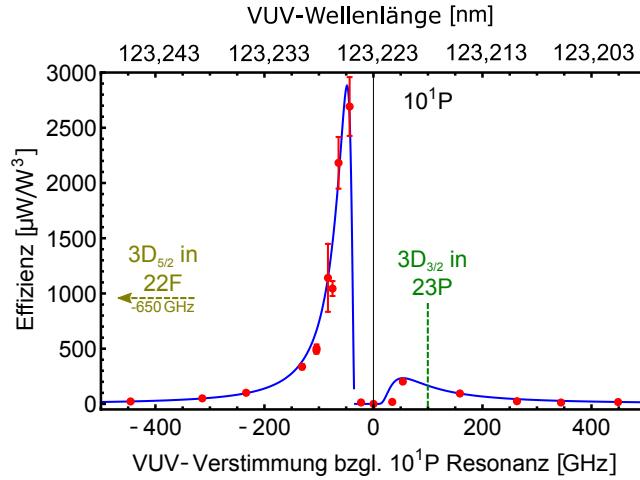


Abbildung 3.34: Effizienzmessung um 10^1P -Resonanz mit einer UV-Verstimmung von 50 GHz. Die roten Punkte sind gemessene Werte der Effizienz in $\mu W/W^3$. Der Fehler wurde aus Leistungsschwankungen sowohl der fundamentalen Lichtfelder, als auch der VUV-Zählrate abgeschätzt. Die blaue Kurve wurde mit dem in Kapitel 2.3 vorgestellten Modell erzeugt. Dabei wurde die gemessene UV-Verstimmung von 51,5 GHz und der gemessene b-Parameter von 1,20 mm angenommen. Die Phasenanstimmungstemperatur des Quecksilbers wurde zu 121 °C bestimmt. Bei dieser Messung wurde die Emissionswellenlänge der 1160 nm-Laserdiode durchgestimmt.

detes Lasersystem wird in Abschnitt 3.4 beschrieben.

Das VUV-Lasersystem wird für verschiedene Experimente verwendet. Da eines dieser Experimente eine UV-Verstimmung von $\Delta UV = 50$ GHz benötigt, wird eben diese Verstimmung verwendet. Folglich wurde die folgende Messung auch mit dieser Verstimmung durchgeführt. Die dafür berechnete optimale Phasenanstimmungstemperatur für den fern resonanten Fall liegt bei 120 °C.

Der mittlere b-Parameter des VUV-Lichtfeldes wurde mit der Gleichung (3.12) zu $b = 1,27(16)$ mm abgeschätzt.

Um die optimale Phasenanstimmung im Experiment einzustellen, wurde zudem eine Messung der optimalen Phasenanstimmungstemperatur bei einer UV-Verstimmung von $\Delta UV = 50$ GHz durchgeführt. Die dabei ermittelte Temperatur lag bei 150 °C und weist damit eine deutliche Diskrepanz zur theoretisch ermittelten Phasenanstimmungstemperatur von 120 °C auf. In Abbildung 3.34 sind die Messwerte der Misch-Effizienz um der 10^1P -Quecksilber Resonanz, über die VUV-Verstimmung bezüglich dieser Resonanz aufgetragen. Dabei wurde im Experiment die von der Theorie abweichende Temperatur von 150 °C eingestellt. Um die Modellfunktion allerdings an die Messpunkte anpassen zu können, muss in der Berechnung eine Phasenanstimmungstemperatur von 120 °C angenommen werden. Dies deutet darauf hin, dass die eingestellte Temperatur im Experiment nicht mit der realen Temperatur des Quecksilbers und damit des Dampfdruckes übereinstimmt.

Um diese Annahme näher zu untersuchen wurde eine weitere Effizienz-Messung,

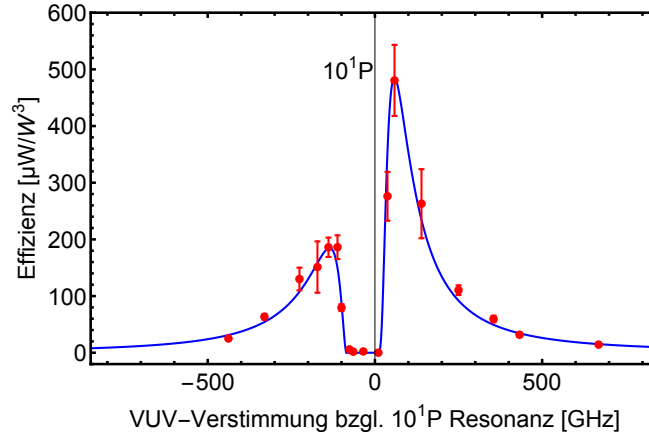


Abbildung 3.35: Effizienzmessung um 10^1P -Resonanz mit einer UV-Verstimmung von 134 GHz. Die roten Punkte sind gemessene Werte der Effizienz in $\mu W/W^3$. Der Fehler wurde aus Leistungsschwankungen sowohl der fundamentalen Lichtfelder, als auch der VUV-Zählrate abgeschätzt. Die blaue Kurve wurde mit dem in Kapitel 2.3 vorgestellten Modell erzeugt. Dabei wurde die gemessene UV-Verstimmung von 134,2 GHz und der gemessene b-Parameter von 1,25 mm angenommen. Diese Kurve wurde nicht Temperatur-Phasenangepasst (siehe Text). Bei dieser Messung wurde die dritte Wellenlänge durchgestimmt.

mit einer UV-Verstimmung von $\Delta UV = 134$ GHz durchgeführt. In der Abbildung 3.35 ist diese Messung gezeigt, und auch hier musste für das Modell eine Quecksilber Temperatur von $120^\circ C$ anstelle der eingestellten $150^\circ C$ angenommen werden. Somit scheint die Annahme richtig, dass die reale Temperatur um ca. $-30^\circ C$ von der eingestellten Temperatur abweicht. Schon in früheren Messungen wurden Temperaturabweichung von bis zu $-10^\circ C$ festgestellt [103]. Diese Abweichung kann damit erklärt werden, dass der Dampfdruck im geheizten Quecksilber-Reservoir aufgrund der Entfernung, vom Dampfdruck in der Mischzone abweicht. Die nun detektierten größeren Temperaturabweichung könnte damit erklärt werden, dass sich zudem die Fokus-Positionen der fundamentalen Strahlen durch deren Justage an den Rand der Mischzone verschoben haben. Durch die wassergekühlten Blenden fällt der Quecksilberdampfdruck zu den Rändern hin ab, und führt somit zu falschen Phasenangepassttemperaturen.

Wie in der Abbildung 3.34 zu erkennen ist, wurde bei einer VUV-Verstimmung um -50 GHz eine Effizienz von $\approx 2,7 \frac{mW}{W^3}$ erreicht. Dies ist die höchste Effizienz die bisher mit einer kontinuierlichen VUV-Lichtquelle erreicht wurde. In der Abbildung 3.34 ist die bereits verifizierte Rydberg-Resonanz $22F$ [78], sowie die vermutete VUV-Wellenlänge der $23P$ -Resonanz eingetragen.

Zusammenfassung

In der Tabelle 3.3 sind gemessenen Effizienzwerte für die verschiedenen Übergänge in Rydberg-Niveaus zusammengetragen. Dabei wurden die aus den Messungen gewonnen Werte verwendet. Die zudem aufgelistete VUV-Leistung wurde mit

den bisher maximal erreichten Leistungen in den fundamentalen Lichtfeldern berechnet. Die Leistungen der fundamentalen Lichtfelder wurde nochmal in der Tabelle 3.4 zusammengestellt. Es ist der maximal erreichte Wert der Leistung direkt nach dem jeweiligen Frequenzverdopplungssystem, der maximal erreichte Wert nach den Teleskopen der Strahlformungen sowie der im Durchschnitt erreichte Leistungswert vor der Quecksilberdampfzelle aufgelistet. Die letzten beiden Werte wurde vor der letzten Fokussierlinse gemessen, somit muss jeweils ein Verlust von 7% - 8% eingerechnet werden, um die Leistung in der Vierwellen-Mischzone zu erhalten.

Tabelle 3.3: Gemessene Vierwellen-Mischeffizienzen bei der VUV-Wellenlänge der Rydberg-Resonanzen. Aufgelistet sind die Effizienzen die aus den gezeigten Messungen gewonnen werden konnten. Die aufgelistete VUV-Leistung P_{VUV} wurde mit den momentanen maximal erreichbaren Ausgangsleistung der Lasersysteme abgeschätzt (254 nm : 0,41 W / 408 nm : 1,2 W / 555 nm : 1,0 W / 580 nm : 0,51 W). Um die Leistung am Ort des Ion zu berechnen, muss P_{VUV} durch 6 geteilt werden (siehe Verluste Abschnitt 3.6). ([†] Diese Resonanz wurde bisher nicht verifiziert. Sie wird aber bei der angegebenen Wellenlänge erwartet.)

Übergang	λ_{VUV}	Effizienz	P_{VUV}
$3D_{5/2} \rightarrow 22F$	123,256 nm	$\sim 10 \mu\text{W}/\text{W}^3$	$2,5 \mu\text{W}$
$3D_{3/2} \rightarrow 23P$	123,218 nm [†]	$\sim 150 \mu\text{W}/\text{W}^3$	$37,6 \mu\text{W}$
$3D_{3/2} \rightarrow 53P$	122,046 nm [†]	$\sim 7 \mu\text{W}/\text{W}^3$	$3,4 \mu\text{W}$
$3D_{3/2} \rightarrow 52F$	122,042 nm	$\sim 26 \mu\text{W}/\text{W}^3$	$12,8 \mu\text{W}$
$3D_{5/2} \rightarrow 66F$	122,041 nm	$\sim 42 \mu\text{W}/\text{W}^3$	$20,7 \mu\text{W}$
$3D_{3/2} \rightarrow 53F$	122,033 nm	$\sim 6 \mu\text{W}/\text{W}^3$	$3,0 \mu\text{W}$

Tabelle 3.4: Zusammenstellung der erreichten Leistungen in den fundamentalen Lichtfeldern. Die aufgelistete Leistung P aus der Verdopplung entspricht der maximal erreichten Leistung P des jeweiligen fundamentalen Lichtfeldes direkt aus der Frequenzverdopplung. Die maximale Leistung P sowie die durchschnittliche Leistung wurden, wie im Text beschrieben, mit einem Leistungsmessgerät vor der letzten fokussierenden Linse gemessen. Daher muss für die Berechnung der VUV-Leistung noch folgende Verluste auf die angegebenen Werte berechnet werden: 254 nm $\approx$ 8%, 408 nm + 555 nm + 580 nm $\approx$ 7%.

Wellenlänge	$P_{\text{Verdopplung}}$ [W]	P_{max} [W]	$P_{\text{durchschnittl.}}$ [W]
254 nm	0,56	0,45	0,35 - 0,4
408 nm	1,6	1,3	0,75 - 0,78
555 nm	1,2	1,1	0,9 - 1,0
580 nm	0,63	0,55	0,3 - 0,35

Tabelle 3.5: Höchstwerte der erreichten Vierwellen-Mischeffizienzen. Aufgelistet sind Höchstwerte der in diesem Experiment dokumentierten Effizienzen. Die aufgelistete VUV-Leistung P_{VUV} wurde mit den momentanen maximal erreichbaren Ausgangsleistung der Lasersysteme abgeschätzt (254 nm : 0,41 W / 408 nm : 1,2 W / 555 nm : 1,0 W / 580 nm : 0,51 W). Um die Leistung am Ort des Ion zu berechnen, muss P_{VUV} durch 6 geteilt werden (siehe Verluste Abschnitt 3.6). ([†] Diese Resonanz wurde bisher nicht verifiziert. Sie wird aber bei der angegebenen Wellenlänge erwartet.)

Übergang	λ_{VUV}	Effizienz	P_{VUV}
$3D_{5/2} \rightarrow 22F$	123,256 nm	$\sim 20 \mu\text{W}/\text{W}^3$	$5,0 \mu\text{W}$
$3D_{3/2} \rightarrow 53P$	122,046 nm [†]	$\sim 89 \mu\text{W}/\text{W}^3$	$43,8 \mu\text{W}$
$3D_{3/2} \rightarrow 52F$	122,042 nm	$\sim 270 \mu\text{W}/\text{W}^3$	$132,8 \mu\text{W}$

Wie bereits erwähnt wurde, unterliegt die Mischeffizienz alltäglichen Schwankungen und einer allmählichen Verringerung. Die in Tabelle 3.3 aufgelisteten Werte entsprechen eher den typischerweise im alltäglichen Betrieb des Lasersystems erreichten Effizienzwerten. Zum Vergleich sind in Tabelle 3.5 die bisher dokumentierten Höchstwerte der Effizienz aufgelistet. Die Erfahrungen an diesem Experiment zeigen, dass die Schwankungen der Effizienz hauptsächlich durch eine nicht optimale Überlagerung der fundamentalen Lichtfelder herrühren. Somit wird deutlich, dass die Strahlüberlagerung sowie deren Langzeitstabilität von großer Bedeutung ist, um eine hohe VUV-Leistung zu gewährleisten. In Abschnitt 6.1.3 wird eine mögliche Verbesserung an dem bestehenden System diskutiert, um eine Langzeitstabilität der Effizienz zu erreichen.

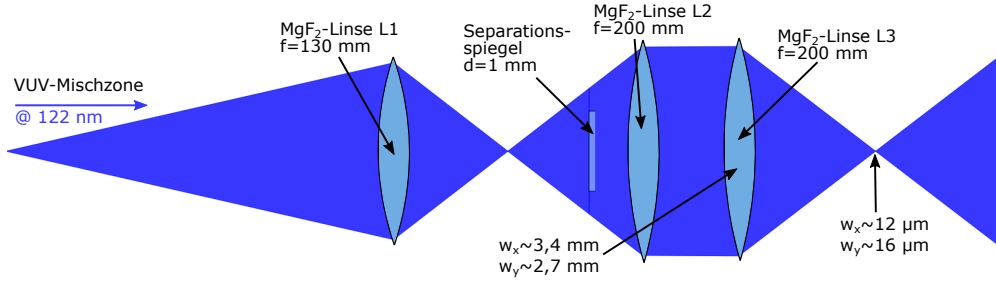


Abbildung 3.36: Skizze des Teleskops für die Fokussierung der VUV-Strahlung. Das VUV-Lichtfeld wird zuerst durch eine MgF_2 -Linse L1 fokussiert (Brennweite $f=130$ mm), damit die fundamentalen Lichtfelder durch den Separationspiegel abgetrennt werden können. Durch eine weitere MgF_2 -Linse L2 ($f=200$ mm) wird der Strahl kollimiert (Strahlradius w_x und w_y auf Linse gemessen), und durch eine dritte MgF_2 -Linse L3 ($f=200$ mm) in die Falle fokussiert. Auch dieser Wert für die Fokusgröße wurde gemessen.

3.7 Fokussierung der kohärenten VUV-Strahlung

Eine große Herausforderung in diesem Experiment ist das Verknüpfen der VUV-Lichtquelle mit der Paul-Falle. Um eine hohe VUV-Intensität am Ort der $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen zu erreichen, ist insbesondere die Fokussierung des VUV-Strahles von großer Bedeutung. Dazu wird ein Teleskop (siehe Abbildung 3.36) bestehend aus zwei MgF_2 -Linsen⁴⁵ verwendet. Da die Strahlparameter des VUV-Strahl vorgegeben sind, muss die Brennweite der ersten Linse L2 so angepasst werden, dass der VUV-Strahl kollimiert wird. Die zweite Linse L3 wird an einem Flansch befestigt, der von beiden Seiten durch einen Membranbalg mit dem Vakuum verbunden wird (siehe Abbildung 4.2). Durch diesen Aufbau wird es möglich die zweite Linse L3 zu bewegen, und so den Fokus des VUV-Strahls in der Paul-Falle mit dem Ion zu überlagern. Zudem kann unter diesen Umständen angenommen werden, dass die Bewegung der Linse L3 exakt mit der Bewegung des Fokus in der Paul-Falle übereinstimmt.

3.7.1 Sphärische Aberration

Das Strahlparameterprodukt $\Theta \cdot w_0 = \text{konst.}$ der gaußschen Optik lässt einem lediglich zwei Möglichkeiten um die Fokusgröße w_0 nach einer Linse zu verringern. Zum einen kann man eine Linse mit kleinerer Brennweite wählen und damit Θ vergrößern. Dies ist in dem Aufbau aus technischen Gründen nicht möglich. Somit bleibt nur der Weg über die Vergrößerung des Strahlradius auf der Linse, was ebenfalls das Θ vergrößert. Hierbei darf man allerdings nicht vergessen, dass die erreichbare Fokusgröße durch die sphärische Aberration limitiert wird. In [104] wird eine Rechnung vorgestellt, mit der man die Änderung der Beugungsmaßzahl M^2 in Abhängigkeit der Strahlgröße, durch eine Linse berechnen kann. Das Ergebnis zeigt, dass dies abhängig von der Wellenlänge des Lichtfeldes und der Brennweite der Linse ist. Die Berechnung in

⁴⁵($f = 200$ mm, B. Halle)

der Veröffentlichung von A. Siegman wurde als Grundlage für die Berechnung des Teleskops gewählt.

Zuerst wird der dimensionslose Aberrations-Parameter

$$C_4 = \frac{n^3 + (3n + 2)(n - 1)^2 p^2 + (n + 2)q^2 + 4(n^2 - 1)pq}{32n(n - 1)^2 f^3}, \quad (3.13)$$

berechnet. Dabei ist $n = 1,63$ der Brechungsindex der Linse bei der gewählten Wellenlänge $\lambda = 122 \text{ nm}$. Für einen kollimierten Strahl welcher durch die Linse fokussiert wird, wählt man $p = -1$. Im umgekehrten Fall, wenn der Strahl durch die Linse kollimiert wird, ist $p = 1$. Außerdem wird für eine bikonvexe Linse $q = 0$, für eine plan-konvexe Linse $q = -1$ und für eine konvex-plane Linse $q = 1$ gewählt. Die Brennweite der Linse beträgt $f = 200 \text{ mm}$. Nun kann die Beugungsmaßzahl δM^2 berechnet werden

$$\delta M^2 = \frac{2^{3/2} \cdot \pi C_4 \cdot w^4}{\lambda}, \quad (3.14)$$

welche auf die Ausgangs-Beugungsmaßzahl M_0^2 addiert wird. Dabei ist w die Strahlgröße auf der Linse. In Abbildung 3.37 ist die somit berechnete Beugungsmaßzahl $M^2 = M_0^2 + \delta M^2$ gegenüber des Strahlradius auf der Linse gezeigt. Die Beugungsmaßzahl wird nach dieser Rechnung, ab einem Strahlradius von 4 mm deutlich schlechter. Daher wurde der Aufbau des Teleskops so optimiert, dass der VUV-Strahlradius sowohl auf der ersten MgF_2 -Linse L2 (M_2^2) als auch auf der zweite Linse L3 (M_3^2) diesen Wert nicht überschreitet. Hierbei wurde allerdings angenommen, dass der VUV-Strahl eine Ausgangs-Beugungsmaßzahl von $M_0^2 = 1$ aufweist. Die VUV-Beugungsmaßzahl am Ort der Ionen kann durch Addition der drei Beugungsmaßzahlen an den drei Linsen $M_{\text{Gesamt}} \approx \delta M_0^2 + \delta M_1^2 + \delta M_2^2 + \delta M_3^2$ abgeschätzt werden. Die Größe des Strahles auf der Linse L1 konnte nicht gemessen werden, und wurde mit der aus Gleichung (3.12) bekannten VUV-Fokusgröße auf $w_1 = 3 \text{ mm}$ abgeschätzt. Somit können die in der Tabelle 3.6 aufgelisteten Veränderungen der Beugungsmaßzahl δM_n^2 an den drei Linsen abgeschätzt werden. In der Tabelle ist zudem der erwartete Strahlradius w_{ideal} im VUV-Fokus ohne der sphärische Aberration aufgelistet. Durch die Beugungsmaßzahl M_{Gesamt} wird der Strahlradius im VUV-Fokus deutlich verschlechtert und somit erhält man den abgeschätzten Strahlradius $w_{\text{aberration}}$ bei dem die sphärischen Aberration miteinbezogen ist. Bei diesen Berechnungen wurde der Einfluss durch die Separationsspiegel vernachlässigt.

Wie bereits erwähnt wurde, bietet es sich an die Fokusgröße des VUV-Strahles weiter zu verringern. Um eine Fokusgröße von $w_0 = 1 \mu\text{m}$ zu erreichen, müsste der Strahlradius auf der Linse L3 $w = 7,77 \text{ mm}$ groß sein. Wie aus dem Graphen in Abbildung 3.37 ersichtlich wird, führt dass zu einer Verschlechterung der Beugungsmaßzahl von $\delta M^2 = 11,31$, zu der noch $\delta M_1 + \delta M_2$ addiert wird. Somit ist es nicht möglich mit dem aktuellen Experiment diese Fokusgröße zu erhalten.

In Abbildung 3.38 ist ein Graph gezeigt, aus dem die für eine Fokusgröße von $w_0 = 1 \mu\text{m}$ benötigte Brennweite der Fokussierlinse ersichtlich wird. In dem

Tabelle 3.6: Berechnete Strahlparameter Entwicklung für den VUV-Strahl. Der Strahlradius w_{ideal} ist die erwartete Fokusgröße ohne sphärische Aberration. Es sind die jeweiligen δM^2 -Werte gegeben die jede Linse beiträgt. Dabei wurde die Größe des VUV-Strahls auf der ersten Linse auf $w_1 \approx 3 \cdot 10^{-3}$ mm abgeschätzt, und die Werte für die zweite sowie dritte Linse (aufgrund der Kollimation) als gleich angenommen. Diese werden aus der Messung 3.40 entnommen und sind $w_{2x} = w_{3x} = 3,4$ mm und $w_{2y} = w_{3y} = 2,7$ mm. Die Indizes stehen für die jeweilige Linse L1, L2 und L3. Der Strahlradius $w_{\text{aberration}}$ ist die erwartete Fokusgröße mit der sphärischen Aberration.

	x-Achse	y-Achse
w_{ideal}	$2,3 \mu\text{m}$	$2,9 \mu\text{m}$
δM_1^2	1,14	1,15
δM_2^2	1,24	1,10
δM_3^2	1,24	1,10
M_{Gesamt}^2	3,62	3,35
$w_{\text{aberration}}$	$8,3 \mu\text{m}$	$9,6 \mu\text{m}$

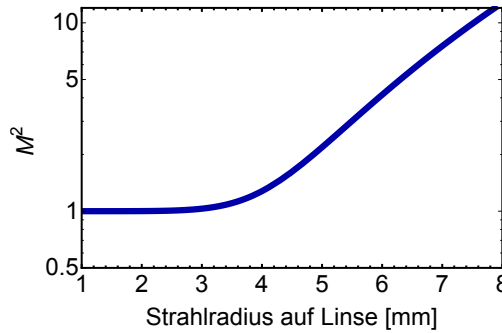


Abbildung 3.37: Berechnung der Beugungsmaßzahl M^2 nach einer Linse. Es ist die Beugungsmaßzahl $M^2 = M_0^2 + \delta M^2$ (logarithmisch), gegen des Strahlradius w auf der Linse aufgetragen. Für die Berechnung wurde eine MgF_2 -Linse mit einer Brennweite $f = 200$ mm gewählt. Für die Wellenlänge des Lichtes wurde 122 nm gewählt. Dabei wird deutlich, dass die Beugungsmaßzahl ab einem Strahlradius von 4 mm deutlich zunimmt.

Graphen ist die Beugungsmaßzahl M^2 gegenüber der Brennweite der Linse aufgetragen, wobei immer ein kollimierter Eingangsstrahl und eine Fokusgröße von $w_0 = 1 \mu\text{m}$ angenommen wurde.

Um dabei eine Beugungsmaßzahl von $M^2 < 1,5$ zu erreichen, sollte die Brennweite der Linse kleiner als $f = 10$ mm gewählt werden. Der VUV-Strahl müsste bei einer Rechnung mit $f = 5$ mm, einen Strahlradius von $w = 0,19$ mm auf der Linse aufweisen. Hierbei muss allerdings beachtet werden, dass diese Abschätzung nur richtig ist wenn der Strahl vor dieser Fokussierlinse eine gute Beugungsmaßzahl aufweist.

Im Experiment könnte eine VUV-Fokusgröße von $1 \mu\text{m}$ durch eine kleine MgF_2 -Linse vor der Falle realisiert werden. Eine Vorschlag für eine experimentelle Umsetzung wird im Ausblick 6.1.2 gegeben.

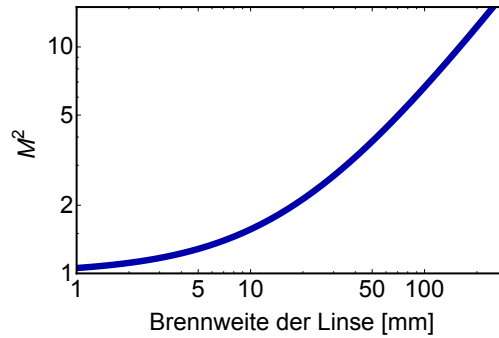


Abbildung 3.38: Beugungsmaßzahl bei verschiedenen Brennweiten der Linse. Bei einer festen Fokusgröße von $w_0 = 1 \mu\text{m}$ und einem kollimierten Eingangsstrahl, verändert sich die Beugungsmaßzahl je nach verwendeter Linse. Es ist M^2 (logarithmisch) gegenüber der Brennweite der verwendeten Linse (logarithmisch) aufgetragen. Eine schlechtere Beugungsmaßzahl als $M^2 = 1$ führt dazu, dass die gewünschte Fokusgröße nicht mehr erreicht wird.

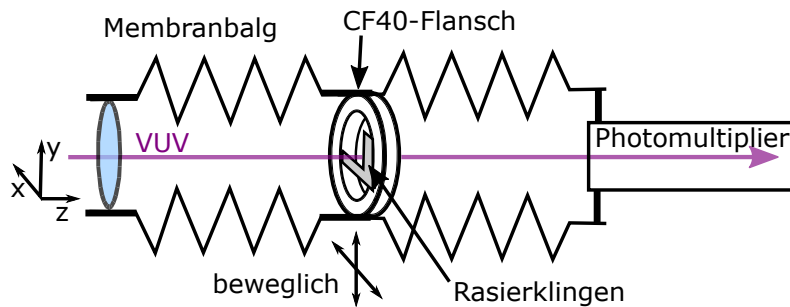


Abbildung 3.39: Aufbau für die VUV-Kantenmessung ohne Paul-Falle. Die Rasierklinge wird an einem CF40-Flansch befestigt. Dieser Flansch wird an einem Verschiebetisch befestigt, sodass die Rasierklinge präzise bewegt werden kann. Aus dem Intensitätsverlauf der Zählrate des Photomultiplier kann der Strahlradius berechnet werden.

3.7.2 Kantenmessung des VUV-Strahls

Um das VUV-Lichtfeld besser charakterisieren zu können, wurde eine Kantenmessung des VUV-Strahles ohne die Paul-Falle durchgeführt. Die Methode der Kantenmessung wird schon in Abschnitt 3.6.1 näher beschrieben, daher soll hier nur kurz der Aufbau der vorliegenden Messung beschrieben werden. Dieser wird in Abbildung 3.39 skizziert, wobei hierbei die Rasierklinge an einem CF40-Flansch befestigt wird. Dieser Flansch wird so an einer Konstruktion aus Verschiebetischen befestigt, dass er in alle drei Raumrichtungen bewegt werden kann. Der Photomultiplier welcher das Messsignal liefert, wird durch einen Membranbalg an diesem Flansch befestigt. Mit diesem Aufbau kann der VUV-Strahl auch an verschiedenen z -Positionen vermessen werden. Diese Messung wurde auch direkt nach der ersten MgF_2 -Linse L2 durchgeführt und so konnte gezeigt werden, dass der VUV-Strahl ausreichend gut kollimiert ist. Die Messung dazu wird in der Abbildung 3.40 gezeigt. Der Radius des kollimierten

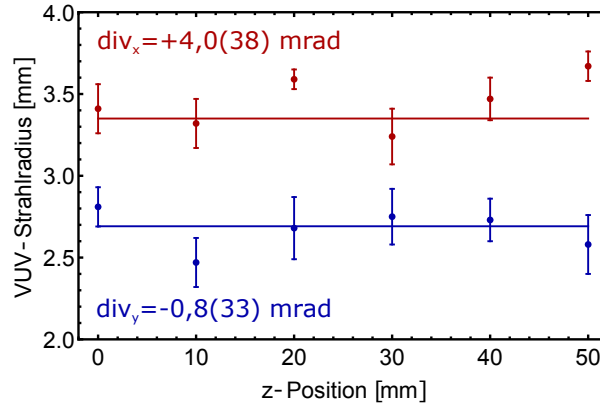


Abbildung 3.40: Kantenmessung des kollimierten VUV-Strahls ohne Paul-Falle. Die Messdaten wurden mit dem in Abbildung 3.39 gezeigten Aufbau aufgenommen. Dabei wurde lediglich die erste MgF_2 -Linse L2 verwendet. Es ist der Strahlradius über der z-Position (Ausbreitungsrichtung) aufgetragen. Die Werte der horizontalen Achse sind rot/Dreiecke, und die der vertikalen blau/Quadrate. Die Fehler der Messpunkte kommen von der veränderlichen Photonenzählrate, die zu einem Fehler in der Berechnung des Strahlradius führte. Die Photonenmessrate wurde bei dieser Messung über 5 s gemittelt. Um die Divergenz (div_x und div_y) zu bestimmen, wurde eine lineare Funktion an die Messwerte angepasst.

Strahls kann auf $w_x = 3,4(1)$ mm und $w_y = 2,7(1)$ mm abgeschätzt werden. Aufgrund des zu kleinen Messbereichs in Abbildung 3.40, konnte die Gleichung (3.8) nicht an die Werte angepasst werden. Die beiden angepassten Geraden zeigen deutlich, dass der Strahl in dem gemessenen Bereich keine große Divergenz aufweist.

Nach der zweiten Linse L3, konnte mit dieser Messung die Strahlgröße des VUV-Strahls am Ort des Fokus zu $w_x = 12(1) \mu\text{m}$ und $w_y = 16(3) \mu\text{m}$ bestimmt werden. Die Messwerte, sowie die angepasste Modellfunktion sind in der Abbildung 3.41 dargestellt.

Hierbei fällt auf, dass die gemessenen Werte leicht von den berechneten Werten (siehe $w_{\text{aberration}}$ Tabelle 3.6) abweichen. Wenn man allerdings beachtet, dass sowohl die VUV-Strahlgröße in der Vierwellen-Mischregion nur abgeschätzt wurde, die Beugungsmaßzahl dabei auf $M^2 = 1$ gesetzt wurde, die Größe des Strahles auf der ersten Linse ebenfalls abgeschätzt wurde und der Separationsspiegel nicht in die Berechnung miteinbezogen wurde, so kann die Abschätzung der Fokusgröße in Abschnitt 3.7.1 als ausreichend gut betrachtet werden. Diese Theorie kann für die Weiterentwicklung des Systems herangezogen werden, um eine Abschätzung über die erreichbare Fokusgröße zu erhalten.

Kantenmessung in der Paul-Falle

Um im laufenden Experiment eine Aussage über den Strahlfokus des VUV-Lichtfeldes machen zu können, wurde eine bewegliche Nadel in die Nähe der Falle platziert. Diese kann durch eine, mit drei Schrauben befestigte Justiereinheit, bewegt werden. Der Aufbau davon ist in der Abbildung 3.42 a) skizziert. Im

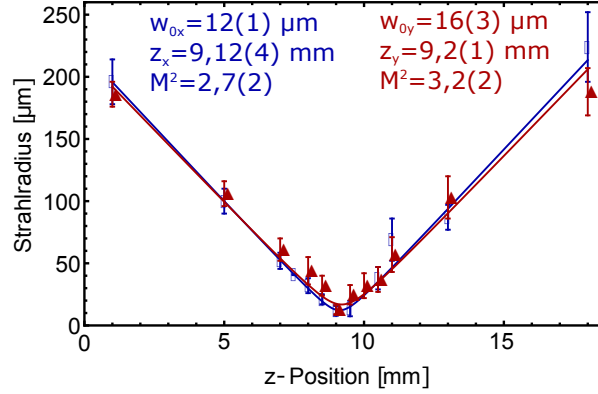


Abbildung 3.41: Kantenmessung des VUV-Strahls ohne Paul-Falle. Die Messdaten wurden mit dem in Abbildung 3.39 gezeigten Aufbau aufgenommen. Dabei wurden beide MgF_2 -Linsen L2+L3 verwendet um den Fokus des VUV-Strahles vermessen zu können. Es ist der Strahlradius über der z-Position (Ausbreitungsrichtung) aufgetragen. Die Werte der horizontalen Achse sind rot/Dreiecke, und die der vertikalen blau/Quadrate. Die Fehler der Messpunkt kommen von der veränderliche Photonen-zählrate. Diese wurde bei dieser Messung über 5 s gemittelt. Die angegebenen Fehler kommen aus der Anpassung der Gleichung (3.8) an die Messwerte.

Teil b) dieser Abbildung ist eine schematische Skizze der Funktionsweise dieser Nadel dargestellt. Zuerst wird die Nadel mit Hilfe der EMCCD-Kamera (skizziert in Abbildung 4.10) auf die Position der Ionen bewegt. Ein Kamerabild dieser Justage ist in Abbildung 3.42 c) gezeigt, wobei die Ionen als Größenvergleich in das Bild retuschiert wurden. Die Knife-Edge Messung wird nun durch bewegen der zweiten MgF_2 -Linse am VUV-Strahl durchgeführt. Hierbei konnte ein Strahldurchmesser an der Fokusposition von $w_x = 10(1) \mu\text{m}$ und $w_y = 12(2) \mu\text{m}$ bzw. $13,4(2) \mu\text{m}$ gemessen werden.

Da die Nadel in y-Richtung (vertikal) zwei Kanten hat, entspricht das Ergebnis in y-Richtung dem einer normalen Knife-Edge Messung. In der x-Richtung (horizontal) hat die Nadel hingegen nur eine Spitze, warum das Messergebnis von dem einer Kantenmessung abweicht und der gemessene Strahlradius somit ungenau ist. Die Messwerte sind in der Abbildung 3.43 gezeigt.

In der Anfangszeit des Experimentes wurde die Nadel zudem dazu verwendet, den VUV-Strahl auf die Ionen auszurichten. Diese Ausrichtung wird hauptsächlich durch die Genauigkeit der Nadelpositionierung eingeschränkt. Dabei ist die horizontale Ausrichtung, bedingt durch die Kameraauflösung, auf einige μm genau. Die vertikale Ausrichtung weist mit $\approx 30 \mu\text{m}$ eine deutlich höhere Ungenauigkeit auf. Dies kommt daher, dass die Nadel allein auf die Tiefenschärfe des Kamerabildes eingestellt wird. In dem aktuellen Experiment wird der VUV-Strahl nur noch auf die Anregungsrate der 22F -Resonanz ausgerichtet, und somit wird eine optimale Ausrichtung erreicht. Dabei wird die VUV-Wellenlänge auf die Resonanzwellenlänge eingestellt und die Anregungsrate über 50 Messzyklen gemittelt. Die Linse L3 wird in kleinen Abständen bewegt bis die Anregungsrate maximal ist.

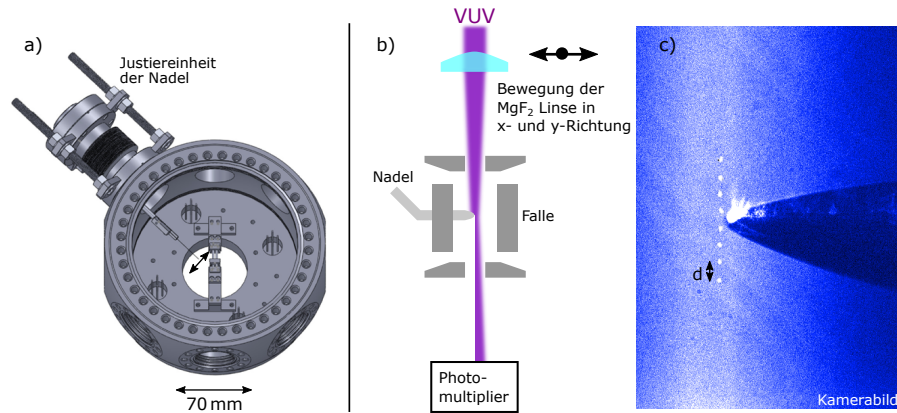


Abbildung 3.42: Kantenmessung des VUV-Strahls in der Paul-Falle. In a) ist eine gerenderte Skizze der Vakuumkammer mit der Paul-Falle gezeigt. Zudem ist die Nadel und die Justiereinheit dargestellt. In b) ist eine Skizze gezeigt, in der die Funktionsweise der Kantenmessung mit der Nadel verständlich wird. In c) ist ein Bild der EMCCD-Kamera von der, in die Paul-Falle eingeführten Nadel, zu sehen. Die Nadel hat einen Durchmesser von $250\text{ }\mu\text{m}$. Die Ionen wurden für einen Größenvergleich in das Bild retuschiert. Dabei ist der Ionenabstand d üblicherweise $5 - 10\text{ }\mu\text{m}$. Bild aus [59].

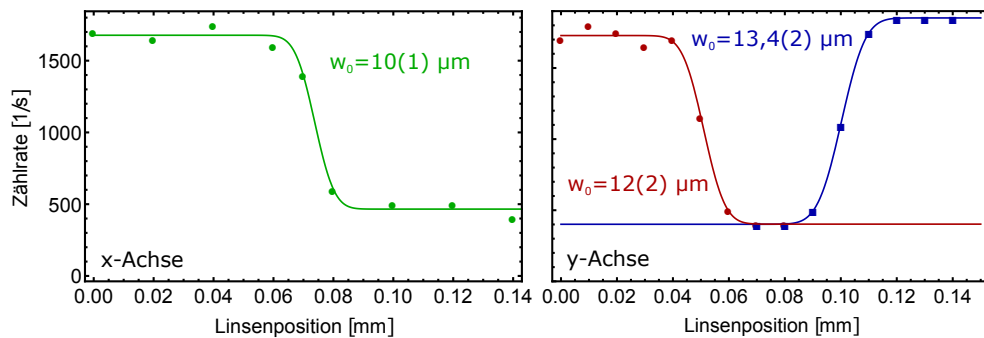


Abbildung 3.43: Kantenmessung des VUV-Strahls in der Paul-Falle. Die Messdaten wurden mit dem in Abbildung 3.42 gezeigten Aufbau aufgenommen. Dazu wurde die Nadel in die Falle eingeführt. Um den gezeigte Intensitätsverlauf zu erhalten wurde die zweite MgF_2 -Linse bewegt. Es ist die Photonen-zählrate über der Linsenposition (x-Richtung (grün), y-Richtung (blau und rot)) aufgetragen. Die angegebenen Fehler kommen aus der Anpassung der Gleichung (3.7) an die Messwerte. Somit erhält man den Strahlradius des VUV-Strahls am Ort des Fokus.

EXPERIMENTELLER AUFBAU DER IONENFALLEN

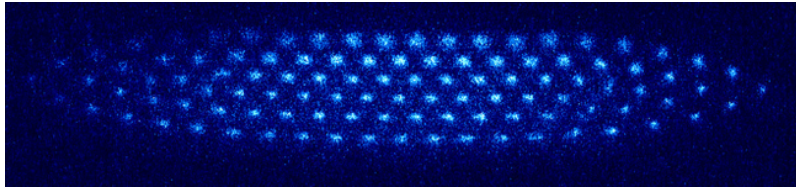


Abbildung 4.1: Großer Ionenkristall in einer Paul Falle. Dieses Bild wurde in der ersten Falle (F1) aufgenommen.

Um die $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen in einen Rydberg-Zustand anregen zu können, wurden für die Bereitstellung der Ionen selbst entwickelte und aufgebaute Paul-Fallen verwendet. In Abbildung 4.1 ist ein Foto eines gespeicherten Ionen Kristalls zu sehen, welcher über Fluoreszenz sichtbar gemacht wurde.

Bei der Entwicklung einer Falle in der Rydberganregung durchgeführt werden sollen, muss die hohen Empfindlichkeit auf elektrische Felder und die makroskopische Größe des Ionenorbitals bedacht werden. Bedingt durch die hohe Polarisierbarkeit der Rydberg-Ionen, führt der Stark-Effekt schon bei kleinen elektrischen Feldern, zu einer Verschiebung der Resonanzfrequenz sowie einer erheblichen Linienverbreiterung. In Kapitel 2.1 wird näher auf die Eigenschaften von Rydberg-Ionen, deren Verhalten in Paul-Fallen sowie allgemein auf das Prinzip der Paul-Falle eingegangen.

Zusätzlich zu dem oszillierenden Feld der Falle, werden durch VUV-Licht induzierte Oberflächenladung auf den Elektroden zusätzliche Störfelder erzeugt, die es zu verhindern gilt. Dazu müssen alle Fallenoberflächen vor VUV-Strahlung geschützt werden, und zusätzliche Elektroden zur Verfügung stehen mit denen Störfelder kompensiert werden können. Besonders wichtig ist zudem der sehr präzise Zusammenbau der Falle. Geometrische Ungenauigkeiten im Aufbau der Falle führen dazu, dass die Ionen im Fallenzentrum nicht einem verschwindenden elektrischen Feld ausgesetzt sind und so eine axiale Mikrobewegung erzeugt wird. Durch das VUV-Licht werden selbst bei Drücken um 10^{-10} mbar noch Atome aus dem Hintergrundgas ionisiert und durch sympathetisches Kühlen in

die Ionenfalle geladen. Diese führen dann zu Fehlstellen im Ionenkristall. Daher bietet es sich an, das Ladevolumen der Falle möglichst klein zu halten um den Effekt zu minimieren. Weiterhin können die Fallenelektroden durch den Calcium Atomstrahl kontaminiert werden, sodass sich eine Calciumschicht auf der Fallenoberfläche bildet. Die VUV-Streustrahlung löst durch den Photoeffekt Elektronen aus dieser Calciumschicht, welche ein Störfeld für die gespeicherte Ionen erzeugen. Dies ist ein weiterer Grund, die Fallenoberfläche vor der VUV-Strahlung, aber auch vor dem Calcium Atomstrahl, zu schützen. Die meisten dieser Anforderungen wurden im Laufe unseres Experimentes ermittelt. Aus diesem Grund wurden die Fallen stetig weiterentwickelt, und somit ist nun die dritte Falle (F3) in Betrieb.

Die Fallen (F1, F2, F3) wurden im wesentlichen von von anderen Kollegen entwickelt und zusammengesetzt [59,105]. Die Implementierung der dritten Falle (F3) in unser Experiment ist maßgeblich im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt worden. Insbesondere wurde dabei die dritte Falle bis hin zu den ersten gespeicherten Ionenkristallen in Betrieb genommen. Im folgenden Kapitel wird dennoch auf alle drei Fallen sowie das für den Betrieb der Fallen benötigte Lasersystem eingegangen, um in dieser Arbeit eine vollständige Beschreibung des Experimentes zu ermöglichen. Eine tiefer gehende Beschreibung der verwendeten Fallen und des dazu benötigten Lasersetups sind in der Dissertation von Thomas Feldker [59] zu finden.

4.1 Vakuumkammer für Paul-Falle

Im Gegensatz zur VUV-Erzeugung, braucht man für den Betrieb einer Paul-Falle Ultra-Hoch Vakuum (UHV) mit einem Druck $p < 10^{-10}$ mbar. Nur so werden Kollisionen der kalten Ionen mit Atomen des Hintergrundgases verhindert. Um diesen Druck zu erreichen, wird eine Nextorr 100-D (SAES Getters) Vakuumpumpe verwendet, die direkt an der Vakuumkammer befestigt ist. Die Vakuumkammer besteht aus Edelstahl, hat acht seitliche Öffnungen (CF40-Flansch) und ist sowohl oben als auch unten durch einen CF150-Flansch zugänglich. Die Falle ist am oberen Flansch befestigt, an welchem auch die benötigten elektrischen Durchführungen angebracht sind. Zudem befindet sich dort auch die optische Durchführung (Quarzglas) für die fluoreszenzdetektierende Kamera sowie für den Lichtstrahl mit einer Wellenlänge von 729 nm, der für die Einzel-Ionen Adressierung verwendet wird. Da sowohl die VUV-Erzeugung nur in Vakuum stattfinden kann und auch das erzeugte VUV-Licht in Luft absorbiert werden würde, müssen das VUV-Vakuumsystem sowie die Vakuumkammer der Falle miteinander verbunden werden. Da beide Systeme aber unterschiedlichen Druck aufweisen ($p_{VUV} < 10^{-6}$, $p_{Falle} < 10^{-10}$), ist eine Separation notwendig. Dies wird durch die zweite MgF_2 -Linse des VUV-Teleskops möglich (siehe Abbildung 4.2), die auf einen Halter aus Titan geklebt ist und somit beide Systeme voneinander trennt. Die Vakuumkammer der Falle wird zusammen mit dieser Linse vor der Inbetriebnahme ausgeheizt. Dabei wurde die Erfahrung gemacht, dass die Klebedichtung bei Verwendung eines Linsenhalters aus Edelstahl undicht werden kann. Daher wurde Titan als Material gewählt, da es ein vergleichbaren

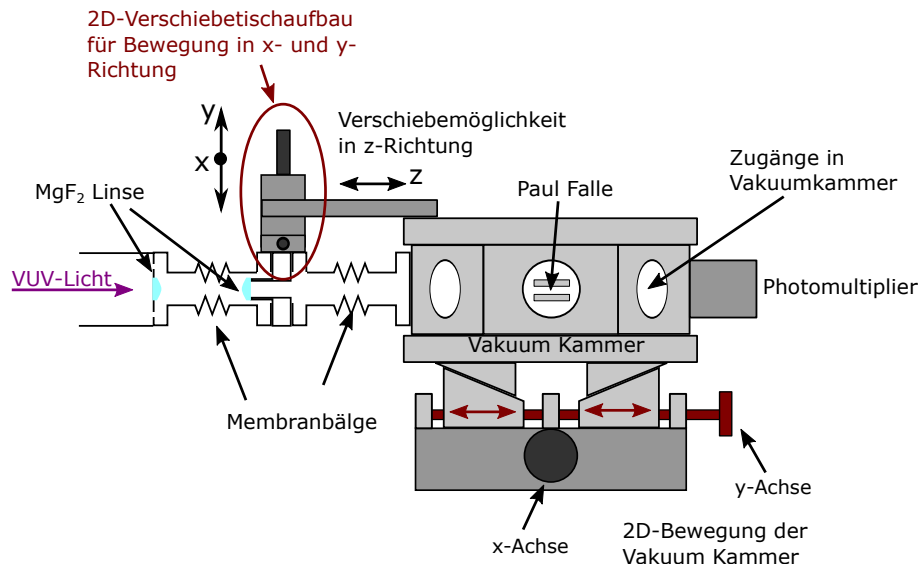


Abbildung 4.2: Skizze der Vakuumkammer. Das VUV-Lichtfeld wird durch ein Vakuumrohr in die Vakuumkammer geleitet. Ein Teleskop bestehend aus zwei Magnesium-Fluorid Linsen fokussiert diesen Strahl auf das Ion. Für die grobe Ausrichtung des VUV-Strahls auf das Ion, kann die Vakuumkammer auf der x- und y-Achse bewegt werden. Für die genaue Justage kann die zweite Linse auf der x- y- und z- Achse bewegt werden. Der Photomultiplier ist mit dem in Abbildung D.4 gezeigten Befestigungsadapter, an der Vakuumkammer montiert. Bildvorlage aus [59].

Wärmeausdehnungskoeffizienten aufweist wie Magnesiumfluorid (siehe Tabelle 4.1). Die beim Ausheizen auftretenden Spannungen an der Klebedichtung werden somit minimiert.

Wie in der Abbildung 4.2 schematisch gezeigt wird, ist die Vakuumkammer auf einer Konstruktion befestigt, mit welcher die komplette Kammer sowohl in x- als auch y-Richtung verschoben werden kann. Dies wird für die erste grobe Positionierung der Fallenachse, bezüglich des VUV-Strahls benötigt. Für die präzise Ausrichtung des VUV-Strahls dient ein Aufbau aus zwei Verschiebetischen, mit der die zweite MgF_2 -Linse, und damit auch der VUV-Strahl, sowohl in x- als auch y-Richtung bewegt werden kann. Dabei sind die Verschiebetische an der Vakuumkammer befestigt, und können dort zusätzlich in z-Richtung verschoben werden um auch den Fokus des VUV-Strahls bewegen zu können.

Tabelle 4.1: Thermische Ausdehnungskoeffizienten. In der Tabelle sind die thermischen Ausdehnungskoeffizienten dreier verwendeter Materialien aufgelistet.

Material	Ausdehnungskoeffizient α [$\frac{\mu\text{m}}{\text{mK}}$]	Quelle
MgF_2	8,9	[106]
Titan	8,5 - 9	[107]
Edelstahl (316)	16	[107]

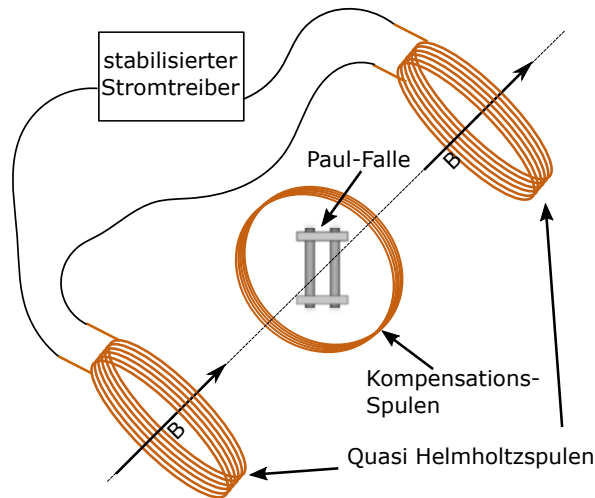


Abbildung 4.3: Erzeugung des Magnetischen Feldes. Das magnetische Feld zur Erzeugung der Quantisierungsachse wird durch zwei Spulen in der Quasi-Helmholtz Konfiguration erzeugt. Eine weitere Spule unter der Falle dient als Kompensations-Spule. Bildvorlage aus [59].

Am anderen Ende der Vakuumkammer ist ein MgF_2 -Fenster (CF40, Alletra) befestigt, hinter dem mit Hilfe eines Photomultiplier (R6835, Hamamatsu) die VUV-Leistung gemessen wird. Sowohl das MgF_2 -Fenster als auch der Photomultiplier sind unter einem Winkel von 5° bezüglich der Vakuumkammer befestigt (siehe Abbildung D.4). Somit werden mögliche Reflexe von VUV-Licht nicht in die Falle zurück gestreut. Die anderen Zugänge zur Vakuumkammer werden für die Vakuumpumpe, die Nadel für die Kantenmessung des VUV-Strahls (siehe Kapitel 3.7) und für die Lichtstrahlen zum Kühlen und Initialisieren benötigt. Um in dem Experiment eine Quantisierungsachse vorgeben zu können, wird ein stabiles Magnetfeld benötigt. In der Abbildung 4.3 ist eine Skizze vom Aufbau der zwei Quasi-Helmholtzspulen gezeigt. Durch die Ausrichtung des Magnetfeldes in einem 45° Winkel zur Fallen Achse, sind die Laserstrahlen für die Kühlung sowie Initialisierung entweder parallel oder im rechten Winkel zum Magnetfeld ausgerichtet, wodurch deren Nutzung vereinfacht wird. Eine kleine Spule unter der Vakuumkammer wird für Magnetfeldkompensation verwendet. Die von uns verwendeten Paul-Fallen sind vollständig Computer gesteuert, wobei die Steuerungssoftware (MCP - master control program) in der Gruppe von F. Schmidt-Kaler (Universität Mainz) entwickelt wurde. Ausgeführte Experimente werden typischerweise in Sequenzen aufgeteilt, am Ende derer ein Fluoreszenzbild ausgewertet wird.

4.2 Verwendete Fallen

Wie schon in der Einleitung erwähnt, wurden die verwendeten Paul-Fallen stetig weiterentwickelt und damit auftretende Probleme behoben. Die erste Falle (F1) wurde ausgetauscht, da dort durch kleine Ungenauigkeiten in der Herstel-

lung die einzelnen Elektroden nicht perfekt ausgerichtet waren (siehe Abschnitt 4.2.1). Für die zweite Falle (F2) wurde daher das präzisere Design der segmentierten Mikrofaller verwendet (siehe Abschnitt 4.2.2).

Sowohl in der ersten Falle (F1) als auch in der zweiten Falle (F2) konnten die hohen Rydberg-Niveaus ($n > 50$) nach einigen Monaten nicht mehr detektiert werden. Vermutlich lag dies an mit Calcium kontaminierten Elektroden, weshalb die dritte Falle (F3) nun eine Ofenblende sowie eine von der Messregion separierte Laderegion aufweist (siehe Abschnitt 4.2.3). Alle drei Fallen ermöglichen es, dass VUV-Licht in Richtung der Fallenachse einzustrahlen. Im folgenden soll kurz auf jede einzelne Falle eingegangen werden.

4.2.1 Lineare Stabfalle (F1)

Die erste verwendete lineare Paul-Falle ist in Abbildung 4.4 gezeigt. Das Design besteht aus vier zylinderförmigen Elektroden aus Edelstahl, mit einem Durchmesser von $d = 2,5 \text{ mm}$. Der Abstand von der Elektrodenoberfläche zum Fallenzentrum ist $w = 1,1 \text{ mm}$. Da die Elektroden in den Endkappen befestigt sind, weisen die Elektroden einen Winkel von bis zu 5 mRd auf. Dieses führt zu einer axialen Mikrobewegung der Ionen [108], die nicht kompensiert werden kann. Mit den vier kleinen Edelstahlnadeln hinter den Elektroden können Streufelder kompensiert werden. Durch das Design der Endkappen ist es möglich, sowohl auf der Fallenachse das VUV Licht, als auch unter einem Winkel von 45° die übrigen Laserstrahlen einzustrahlen. An zwei gegenüberliegenden Elektroden wird das elektrische Wechselfeld mit einer Amplitude bis zu $U_{rf} = 10 - 300 \text{ V}$ und einer Frequenz von $\Omega_{rf}/2\pi = 3,5 - 10 \text{ MHz}$ angelegt, während die anderen beiden Elektroden geerdet werden. Damit entsteht das in radialer Richtung einschließende Fallenfeld. Der Einschluss in axialer Richtung wird durch eine an den Endkappen

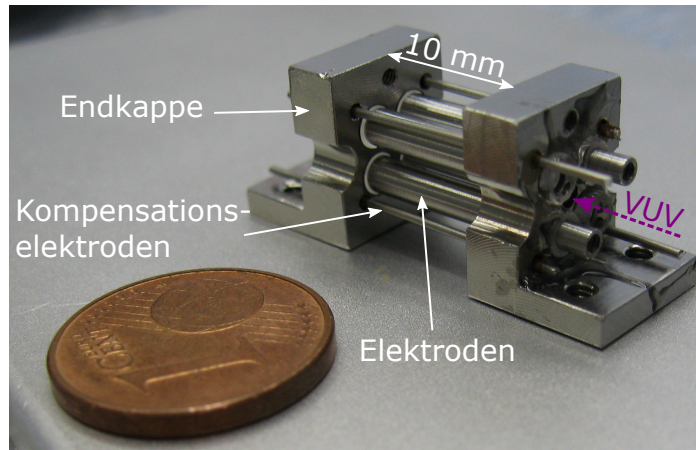


Abbildung 4.4: Bild der ersten Falle (F1). Die Falle wird durch zylinderförmige Elektroden erzeugt. Dabei werden zwei gegenüberliegende Stäbe als RF-Elektroden verwendet. Die kleineren Stäbe werden als Kompensationselektroden verwendet. Das VUV-Licht wird auf der Fallenachse eingestrahlt.

angelegte Spannung von $U_{dc} = 300 - 400 \text{ V}$ erreicht. Der Calciumofen ist ein Edelstahlzylinder mit einem Durchmesser von $d = 2 \text{ mm}$ der mit Calciumgranulat befüllt wird. Durch anlegen eines Stromes zwischen $I = 3 - 6 \text{ A}$ wird der Zylinder erhitzt und Calcium wird in Form eines Atomstrahls freigesetzt, und in die Falle geleitet.

Ein Nachteil dieser Falle sind die kleinen axialen Fallenfrequenzen ($\omega_{ax}/2\pi \leq 120 \text{ kHz}$) zusammen mit dem große Fallenvolumen, welches das Laden von Hintergrundgasatomen begünstigt. Für die Rydberganregung sind prinzipiell aber kleinere Antriebsfrequenzen erstrebenswert. Denn eine kleinere Antriebsfrequenz Ω_{rf} ermöglicht kleinere Fallenfrequenzen ω und da $\omega_i \propto \gamma_i/\Omega_{rf}$ (siehe Abschnitt 2.1.1), führt dies durch ein schwächeres Potential γ zu kleineren elektrischen Feldern am Ort des Rydberg-Ion.

4.2.2 Lineare segmentierte Mikrofalle (F2)

Das Design der zweiten Falle wurde von G. Jacob entwickelt [109,110]. Ein Bild der verwendeten Falle ist in Abbildung 4.5 zu sehen. Der klare Vorteil dieser Falle ist das kleinere Fallenvolumen, die bessere Fertigungsgenauigkeit sowie die segmentierten Elektroden. Der Vorteil der segmentierten Elektroden wird in Abbildung 4.6 deutlich. Durch anlegen einer unabhängigen Spannungen $U_{dc} = -10 \text{ V} - 10 \text{ V}$ an jede einzelnen Elektrode werden die Ionen in axialer Richtung eingeschlossen. Vielmehr wird es aber möglich, ein beliebiges Potential zu formen und sogar die Ionen in Richtung der Fallenachse zu bewegen. Die Endkappen sind in dieser Falle geerdet. Die einzelnen Elektroden bestehen aus mit Gold beschichteten, $125 \mu\text{m}$ dicken Keramikschneiden. Jede Elektrode besteht aus elf Segmenten die jeweils $180 \mu\text{m}$ lang sind. Die Falle hat zusammen mit der Isolation zwischen den Segmenten somit eine Gesamtlänge von $d = 2,28 \text{ mm}$. Der Abstand von den Elektrodenoberflächen zum Fallenzentrum

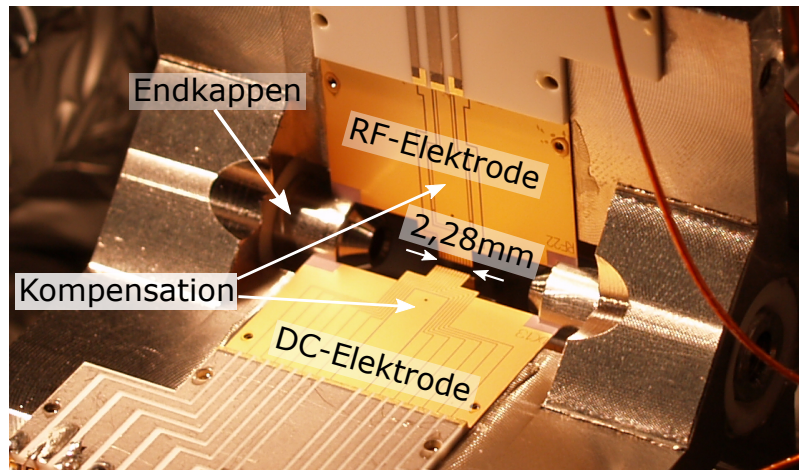


Abbildung 4.5: Bild der zweiten Falle (F2). Die Fallenklingen sind Kreuzförmig angeordnet, sodass sich die beiden RF- und die DC-Elektroden jeweils gegenüber stehen. Die Kompensationselektrode ist auf den jeweiligen Fallenklingen integriert.

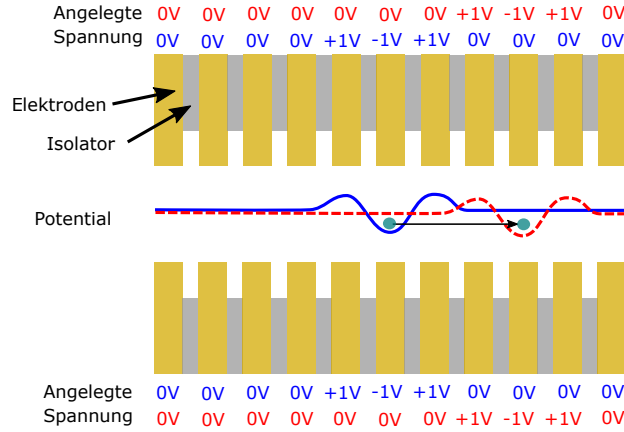


Abbildung 4.6: Skizze der Arbeitsweise der segmentierten DC-Elektroden. An jedes Segment der DC-Elektroden wird eine Spannung von $U_{dc} = -10\text{ V} - 10\text{ V}$ angelegt. Somit entsteht ein für die Ionen in axialer Richtung einschließendes Potential. Somit kann ein beliebiges Potential eingestellt werden. Durch eine kontinuierliche Veränderung der Spannungen wird somit sogar der Transport der Ionen in Richtung der Fallenachse möglich.

beträgt $w = 480\text{ }\mu\text{m}$. Auch in dieser Falle wird der radiale Einschluss der Ionen durch ein an die zwei gegenüberliegenden RF-Elektroden angelegtes Wechselfeld erreicht. Auf jeder Fallenklinge ist eine zusätzliche Kompensationselektroden integriert die mit einer Spannung von $U = \pm 10\text{ V} - \pm 100\text{ V}$ angesteuert werden.

4.2.3 Lineare segmentierte Mikrofalle mit mehreren Zonen (F3)

Wie bereits erwähnt wurden auch in der zweiten Falle (F2) nach einigen Monaten des Betriebs keine Rydberg-Resonanzen ($n > 50$) mehr detektiert. Da in der zweiten Falle aber trotzdem eine Detektion von Rydberg-Resonanzen mit $n < 22$ möglich war liegt die Vermutung nahe, dass die Resonanzen mit einer hohen Hauptquantenzahl in der Falle nicht mehr stabil sind beziehungsweise eine starke Linienverbreiterung aufweisen. Vermutlich handelt es sich bei diesem auftretenden Problem um auf den Fallenelektroden abgelagertes Calcium, da dies zusätzlich als ein Betriebszeitabhängiger Effekt beobachtet wurde. Sowohl bei den Experimenten in der ersten als auch in der zweiten Falle ist der Ofen im Betrieb durchweg geheizt worden sodass dauerhaft Calcium auf die Elektroden aufgetragen wurde. Da die Austrittsarbeit von Calcium mit $2,87\text{ eV}$ deutlich unter Energie von einem VUV-Photon mit $\approx 10\text{ eV}$ liegt, werden durch VUV-Streustrahlung etliche Elektronen aus dem Calcium auf den Elektroden gelöst. Diese verursachen ein elektrisches Störfeld und führen zu einer Linienverbreiterung der Rydberg-Resonanzen.

Um dieses Problem zu lösen wurde ein neues Fallenkonzept entwickelt. Ein Bild der Falle ist in Abbildung 4.7 zu sehen. Eine große Änderung ist die Einteilung

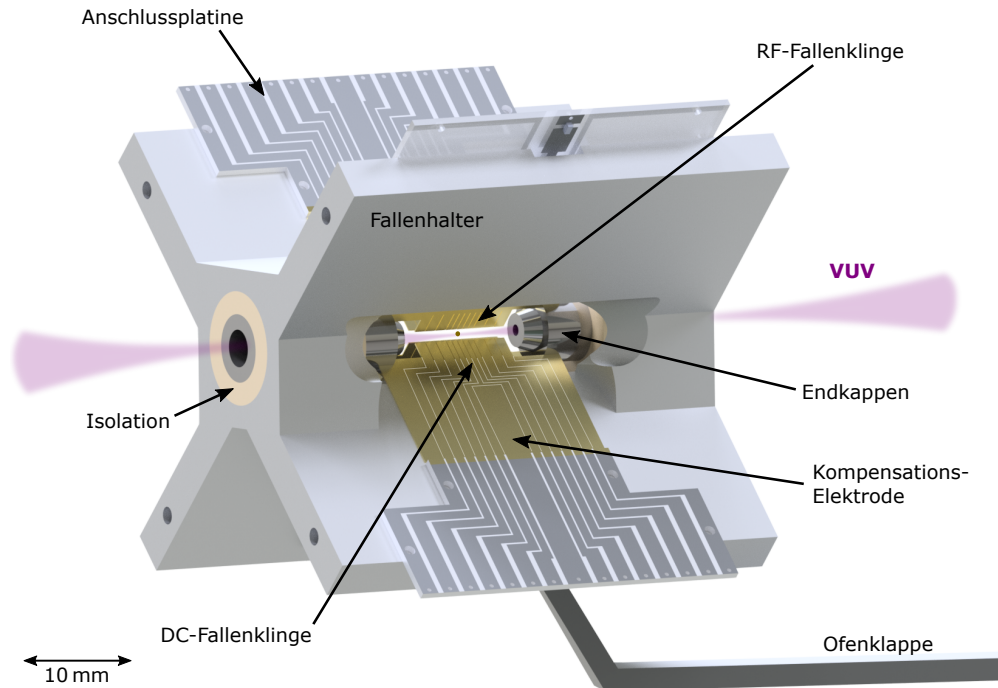


Abbildung 4.7: Bild der dritten Falle (F3). Die Elektroden bestehen aus elf Segmenten, wobei jeweils die äußeren drei eine Laderegion bilden. Von dort werden die Ionisierten und gekühlten $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen in die Mitte der Falle bewegt. Dort bilden fünf Segmente die Experimentierregion, die vollständig vom Calcium Atomstrahl abgeschirmt ist. Zudem wird nun eine Ofenklappe verwendet um den Calciumofen bei bedarf schließen zu können. Die Elektronik dieser Falle unterscheidet sich nicht von der zweiten Falle (F2). Auch bei dieser Falle sind die Kompensationselektroden auf den Fallenklingen integriert. Der VUV-Strahl wird auf der Fallenachse eingestrahlt.

der Falle in unterschiedliche Zonen. Somit bilden nun jeweils die äußeren drei Segmente eine Lade-Zone in der Calcium ionisiert und gekühlt wird, und die fünf mittleren Segmente formen das Potential in dem die Experimente mit den Calcium Ionen durchgeführt werden. Um die gleiche Anzahl an Segmenten zu behalten, wurden die Breiten der einzelnen Segmente verändert. In der Abbildung 4.8 ist eine Skizze der neuen Falle veranschaulicht. Die Gesamtlänge der Falle ist $d = 9 \text{ mm}$, die Lade-Zonen haben eine Länge von $d = 3 \text{ mm}$ und die Experimentier-Zone $d = 2,5 \text{ mm}$. Der Abstand der Elektrodenoberflächen zum Fallenzentrum wurde auf $w = 750 \mu\text{m}$ erhöht, sowie die Löcher in den Endkappen auf einen Durchmesser von $\varnothing = 1 \text{ mm}$ verkleinert (bei F2 $\varnothing = 1,5 \text{ mm}$) damit die Elektroden besser vor VUV-Streustrahlung geschützt sind. Um weitere Streustrahlung zu minimieren wurde zudem das MgF_2 -Austrittsfenster, sowie auch der Photomultiplier unter einem Winkel angebracht, um damit mögliche Reflexionen nicht zurück auf die Falle fallen zu lassen. Eine weitere Änderung ist die Goldbeschichtung der einzelnen Fallenklingen, die auf eine Dicke von $10 \mu\text{m}$ vergrößert wurde und somit zu einer geringeren Heizrate führt. Im Gegensatz zur zweiten Falle (F2) werden die Fallenklingen nicht auf den Halter

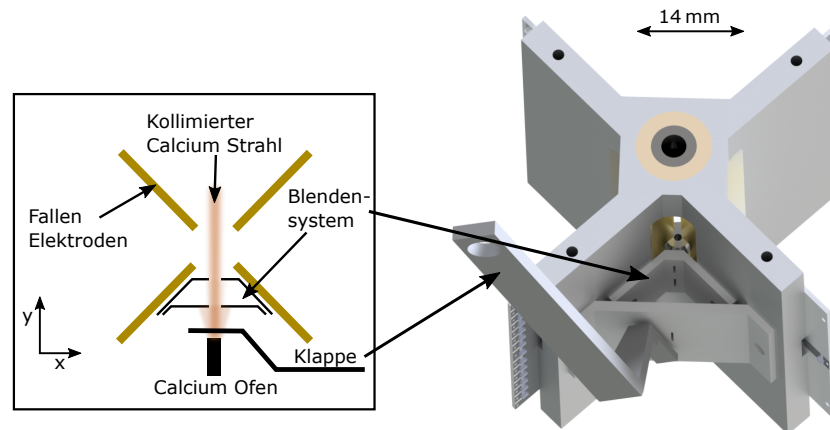


Abbildung 4.9: Blendensystem für Calcium Atomstrahl. Um eine Kontamination der Elektroden mit Calcium zu verhindern, wurde das abgebildete Blendensystem entwickelt. Somit gelangen die Calcium Atome in der Lade-Zone nachweislich nicht auf die Elektroden. Auf der rechten Seite ist eine gerenderte Zeichnung dargestellt, in der die unter der Falle angebrachten Blenden zu sehen sind.

854 nm) bleiben unverändert auf die Fallenmitte ausgerichtet. Um die in der Ladezone ionisierten und gekühlten Ionen in die experimentier-Zone zu bringen, wurde die Steuerungssoftware um eine Sequenz erweitert. Bei dieser werden die Ionen aus der Lade-Zone in die experimentier-Zone transportiert, indem die an die einzelnen Segmente der DC-Elektrode angelegte Spannungen kontinuierlich verändert werden (siehe Abbildung 4.6). Bisher konnte mit dieser Falle die Detektion der ^{22}F -Rydberg-Resonanz erfolgreich reproduziert werden.

4.3 Lasersysteme für die Ionenkontrolle

Um die in den vorherigen Abschnitten vorgestellten Paul-Fallen betreiben zu können werden Lasersysteme für die Ionisation, das Kühlung, die Detektion und die Initialisierung benötigt. In Abbildung 4.10 ist eine Skizze der im Abschnitt 4.1 vorgestellten Vakuumkammer zu sehen. Zudem wurden alle verwendeten Laserstrahlen, sowie deren Richtung in diese Grafik eingezeichnet. Auf die einzelnen dargestellten Lichtfelder soll im folgenden kurz eingegangen werden.

4.3.1 Lasersystem für Ionisation

Um die Calcium Atome in der Falle zu ionisieren, wird ein zwei Photonen Übergang verwendet (siehe Abbildung 4.11). Zuerst wird das Atom mit einem resonanten Lichtfeld (423 nm) auf dem Übergang $4S \rightarrow 4P$ angeregt. Mit dem zweiten Lichtfeld bei einer Wellenlänge von 375 nm wird das angeregte Atom daraufhin ionisiert. Für eine effiziente Ionisationsrate sind Leistungen von $P = 0,5 \text{ mW}$ für die beiden Lichtfelder vollkommen ausreichend. Das Lichtfeld bei einer Wellenlänge um 423 nm wird mit einem selbstgebaute Laser im Littrow-Design und einer Laserdiode von Toptica (LD 0425 0120) erzeugt [111]. Für

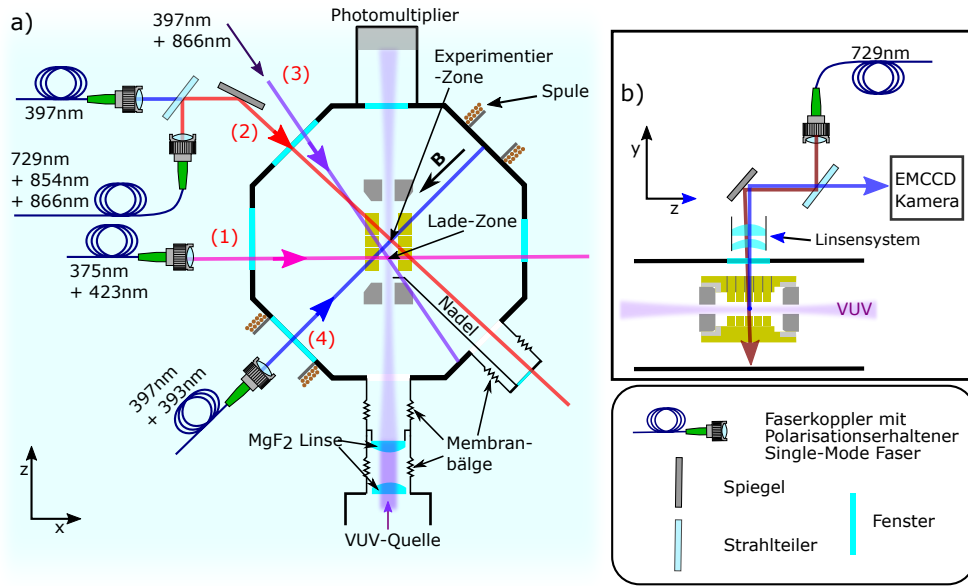


Abbildung 4.10: Skizze der Vakuumkammer mit eingezeichneten Laserstrahlen. Im Teil a) ist eine Skizze der Vakuumkammer gezeigt, und alle verwendeten Laserstrahlen sowie deren Richtung durch die Vakuumkammer (für nähere Erklärung der Lichtfelder siehe Text). Hierbei ist zu beachten, dass hier bereits das Arrangement der Laser gezeigt ist, wie es für die dritte Falle mit den verschiedenen Zonen verwendet wird. Der Strahlengang (4) wurde bei der ersten, sowie zweiten Falle (F1 und F2) nicht benötigt und der Strahlengang (1) wurde bei diesen Fällen durch die Fallenmitte gelegt. Die eingezeichnete Nadel wird für die Kantenmessung des VUV-Strahls verwendet um das Strahlprofil bestimmen zu können. In Teil b) ist die Vakuumkammer aus einer anderen Perspektive dargestellt, bei der das von oben eingestrahlte Lichtfeld, sowie die Fluoreszenz Detektion eingezeichnet sind.

das zweite Lichtfeld bei einer Wellenlänge um 375 nm wird eine freilaufende Laserdiode (NDU 4116, Nichia) verwendet, da hier die genau Wellenlänge keine Rolle spielt. Beide Strahlen werden überlagert und zusammen in eine Faser eingekoppelt, und senkrecht zum VUV-Licht (Abbildung 4.10 bei (1)) in die Vakuumkammer eingestrahlt.

4.3.2 Lasersystem für Ionen-Kühlung

Um die thermische Bewegung der Ionen zu minimieren, wird die Technik des Doppler-Kühlen und des Seitenbandkühlen verwendet [112]. Für das Doppler-Kühlen wird ein zum $4S_{1/2} \rightarrow 4P_{1/2}$ rotverstimmtes Lichtfeld bei einer Wellenlänge um 397 nm verwendet (siehe Abbildung 4.12). Da die Ionen aus diesem Zustand nicht nur in den Grundzustand, sondern auch in den metastabilen $3D_{3/2}$ -Zustand zerfallen, wird ein Lichtfeld mit einer Wellenlänge bei 866 nm als Rückpumper verwendet. Das Fluoreszenzlicht welches bei einem Zerfall in den Grundzustand entsteht, wird für die Ionendetektion mit einer EMCCD

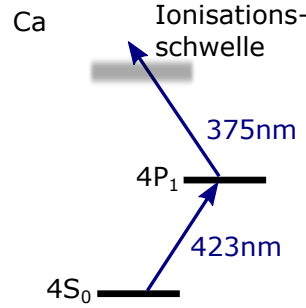


Abbildung 4.11: Lasersystem für Ionisation von Calcium. Das Calcium Atom wird mit Licht bei der Wellenlänge 423 nm angeregt, um dann mit einem zweiten Lichtfeld bei einer Wellenlänge von 375 nm ionisiert zu werden. Es ist ein reduziertes Schema von Calcium gezeigt.

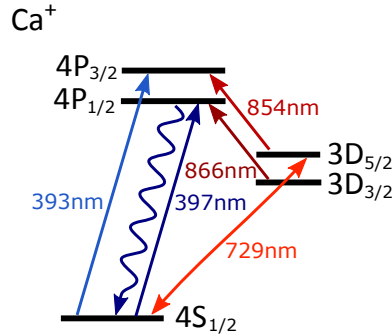


Abbildung 4.12: Verwendete Lichtfelder für die Kühlung von $^{40}\text{Ca}^+$ Für die Dopplerkühlung wird ein rotverstimmtes Lichtfeld zum $4S_{1/2} \rightarrow 4P_{1/2}$ Übergang, bei einer Wellenlänge von 397 nm, eingestrahlt. Die Lichtfelder mit Wellenlängen um 866 nm und 854 nm werden als Rückpumper benötigt da die Zustände $3D_{3/2}$ und $3D_{5/2}$ metastabil sind. Durch kohärente Anregung auf dem $4S_{1/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ Übergang wird das Seitenbandkühlen möglich. Das Lichtfeld bei einer Wellenlänge von 393 nm wird für die Initialisierung in den $3D_{5/2}$ Zustand eingestrahlt.

Kamera (IXon3 897, Andor) aufgenommen. In Abbildung 4.10 b) ist eine schematische Skizze von diesem Aufbau gezeigt, bei dem das Fluoreszenzlicht über ein Teleskop auf die Kamera abgebildet wird. Die beiden blauen Laser mit Wellenlängen bei 393 nm¹ und 397 nm² sind kommerzielle Lasersystem mit einer Ausgangsleistung von über $P = 10$ mW. Für den Aufbau der infraroten Lasersysteme mit Wellenlängen bei 866 nm³ und 854 nm⁴, wurde das Littrow-Design verwendet [59]. Die Ausgangsleistungen beider Lasersysteme liegen bei über $P > 50$ mW. Für die Laserkühlung werden in der Frequenz stabile sowie schmalbandige Lichtfelder benötigt. Aus diesem Grund sind die beiden für die Kühlung verwendeten Lasersystem mit Wellenlängen bei 397 nm als

¹(DL pro, LD-0395-0120-1, Toptica)

²(DL pro, LD-0397-0030-1, Toptica)

³(LD-0870-0100-2, Toptica)

⁴(HL8342MG, opnext)

auch 866 nm, aktiv auf einen Resonator mit einer Finesse von $\mathcal{F} = 300$ stabilisiert. Um die Lichtfelder weiterhin in der Frequenz verstimmen zu können, sind die Resonatorspiegel auf Piezomechaniken befestigt damit die Resonatorlänge verändert werden kann. Die erreichte Linienbreite liegt bei unter 1 MHz, was ausreichend ist.

Für das Seitenbandkühlen auf dem $4S_{1/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ -Übergang (siehe auch Abbildung 5.5) sowie für die kohärente Initialisierung der Calcium Ionen in einen der $3D$ -Zustände, wird ein schmalbandiges Lichtfeld ($\Delta\nu \ll 1$ kHz) mit einer Wellenlänge von 729 nm verwendet. Dieses kommt aus einem Titan:Saphir-Laser⁵ [88], welcher von seinem Standort über eine 100 m lange Glasfaser an unser Experiment geleitet wird. In unserem Experiment steht somit eine Leistung von $P = 50$ mW zur Verfügung.

Alle vier in diesem Abschnitt erwähnten Lichtfelder können über computergesteuerte AOM's⁶ geschaltet werden. Wie schon in Abbildung 4.10 skizziert ist, werden die S-Polarisierten Lichtfelder mit den Wellenlängen 866 nm und 854 nm, mit dem P-Polarisierten Lichtfeld der Wellenlänge 397 nm und dem Lichtstrahl mit einer Wellenlänge von 729 nm überlagert und in eine Faser eingekoppelt. Das Licht wird senkrecht zum magnetischen Feld in die Vakuumkammer eingestrahlt (Abbildung 4.10 bei (2)) und da der $\mathbf{k}$ -Vektor eine Projektion auf jede Fallenachse besitzt, können effektiv alle Bewegungsmoden gekühlt werden.

Bei der dritten Falle wurde zudem der Pfad (3) implementiert. Bei diesem wird, über eine Freistrahlstrecke, die zum kühlen benötigten Lichtfelder bei Wellenlängen von 866 nm und 397 nm in die Lade-Zone gestrahlt.

Wie erwähnt wird ein Lichtfeld bei einer Wellenlänge von 729 nm für das Seitenbandkühlen sowie die kohärente Initialisierung verwendet. Das über Pfad (2) in die Falle eingestrahlte Licht besitzt dabei einen Strahlradius von $w_0 \approx 50 \mu\text{m}$ am Ort der Ionen. Somit beleuchtet dieser Strahl den ganzen Ionenkristall. Um einzelne Ionen mit dem Lichtfeld bei einer Wellenlänge von 729 nm zu initialisieren zu können, wird das Lichtfeld außerdem in eine Faser eingekoppelt, welche mit dem Kamerasystem verbunden ist. Dort wird der Strahl mit dem Fluoreszenzsignal der Ionen überlagert und kann mit einem Strahlradius von $w_0 \approx 4 \mu\text{m}$ am Ort der Ionen, einzelne Ionen beleuchten.

4.3.3 Lasersystem für Initialisierung der Ionen

Bei den von uns durchgeführten Rydberg Experimenten wird das Ion vor jeder Messung in einen Zustand initialisiert. Dies kann der Grundzustand oder einer der metastabilen Zustände $3D_{3/2}$ oder $3D_{5/2}$ sein. Um das Ion im Grundzustand zu initialisieren, werden die beiden infraroten Lichtfelder mit einer Wellenlänge von 866 nm und 854 nm verwendet (siehe Abbildung 4.12). Somit werden die metastabilen Qubit Zustände entleert. Eine Initialisierung in den $3D_{3/2}$ -Zustand, wird mit optischen Pumpen über den $4S_{1/2} \rightarrow 4P_{1/2}$ -Übergang (397 nm) erreicht. Der Zustand $3D_{5/2}$ kann dahingegen über zwei Möglichkeiten initialisiert werden. Zum eine durch optischen Pumpen über den $4S_{1/2} \rightarrow 4P_{3/2}$ -Übergang

⁵(Matisse TX, Sirah)

⁶(BRI-QFZ-80-20-395 [blau], BRI-TEF-80-20-860 [infrarot])

(393 nm), zum anderen kann mit dem dem schmalbandigen Licht bei einer Wellenlänge um 729 nm eine kohärente Anregung ausgeführt werden.

Die für die Initialisierung verwendeten Lichtfelder mit Wellenlängen um 397 nm und 393 nm werden in eine Faser gekoppelt (zirkular Polarisiert), und parallel zum Magnetfeld in die Vakuumkammer (Abbildung 4.10 bei (4)) eingestrahlt.

RYDBERGANREGUNG GESPEICHERTER $^{40}\text{Ca}^+$ -IONEN

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse vorgestellt und diskutiert, welche im Rahmen der vorliegenden Arbeit gemessen und in [61] und [78] publiziert wurden. Dabei wurden zwei verschiedene lineare Paul Fallen verwendet, die in Abschnitt 4.2.1 und 4.2.2 beschrieben sind. Es wird zudem die erste Rydberganregung in der neuen Falle F3 gezeigt, die in Abschnitt 4.2.3 beschrieben wird. Auf die Erzeugung des für die Anregung verwendete VUV-Lichtes wird in Kapitel 3 eingegangen.

In der ersten Falle wurde der Rydberg-Zustand 52F spektroskopiert, wohingegen in der zweiten Falle zusätzlich die Zustände 53F, 66F und 22F angeregt werden konnten. Die jeweilige Hauptquantenzahlen und der dazugehörige Quantendefekt wurden aus den im folgenden Kapitel gezeigten Messungen bestimmt. Durch die vom Stark Effekt induzierte Linienverbreiterung, konnte zudem die Polarisierbarkeit experimentell bestimmt werden. Dazu wurde ein Linienmodell entwickelt und im folgenden näher erklärt, mit Hilfe dessen die Linienform gut beschrieben werden kann. Darüber hinaus wurde eine Lichtquelle mit einer Wellenlänge von 729 nm in dem Aufbau implementiert, mit dem nun eine kohärente Initialisierung der $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen in den $3D_{5/2}$ -Zustand möglich ist. Somit wird das Seitenbandkühlen der gespeicherten Ionen, selektive Rydberganregung einzelner Ionen und die Rydberganregung aus einzelnen Zeemann-Unterniveaus möglich. Auch diese Dinge wurden experimentell gemessen, und werden im folgenden Kapitel behandelt.

5.1 Rydberg-Zustände 52F, 53F und 66F

Mit diesem Experiment konnte die ersten jemals durchgeführten Rydberganregungen von einzelnen, in einer Paul-Falle eingeschlossenen Ionen durchgeführt werden. Die Ergebnisse dieser ersten Messungen wurden in [61] veröffentlicht. Für die Rydberganregung in das 52F sowie das 53F Niveau wurden die $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen zuvor in den metastabilen Zustand $3D_{3/2}$ angeregt. Bei der Rydberganregung in das 66F Niveau, war der Zwischenzustand das $3D_{5/2}$ Niveau. Diese metastabilen Zwischenzustände ermöglichen zum einen Rydberg-Zustände mit

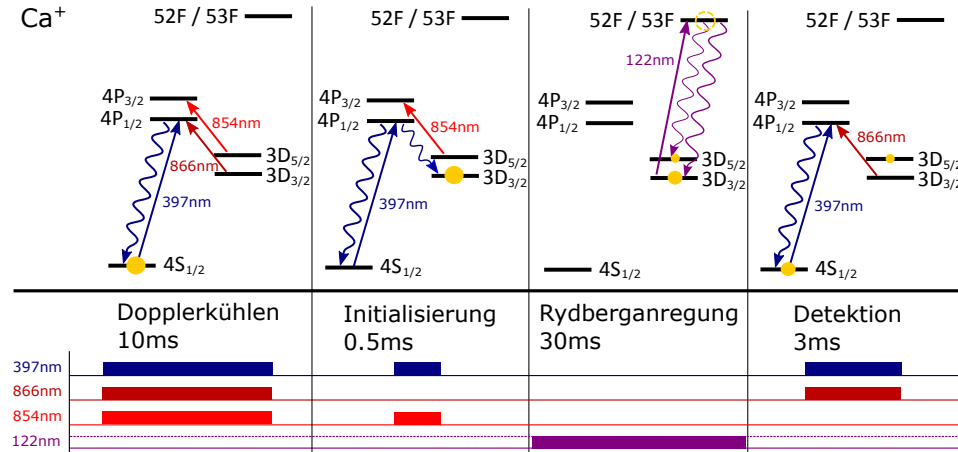


Abbildung 5.1: Messsequenz für die Anregung und Detektion von Rydberganregung in das 52F und 53F Niveau. Zuerst werden die Ionen in der Paul-Falle Lasergeköhlt. Um die Rydberganregung durchführen zu können, werden die Ionen dann durch optisches Pumpen in den $3D_{3/2}$ -Zustand initialisiert. Daraufhin folgt der 30 ms lange VUV-Puls für die Rydberganregung. Dabei muss erwähnt werden, dass das VUV-Licht während der ganzen Sequenz eingeschaltet bleibt und bei der Anregungssequenz lediglich alle anderen Laser ausgeschaltet sind. Für die Detektionssequenz wird das Fluoreszenzsignal aufgenommen, welches für eine erfolgreiche Rydberganregung dunkel ist. Der Rydberg-Zustand zerfällt zu ungefähr $1/16$ in den $3D_{5/2}$ -Zustand.

einem Lichtfeld einer erreichbaren Wellenlänge um 122 nm anzuregen, zum anderen wird die Detektion dieser Anregungen möglich. Im Kapitel 3 wird die experimentelle Realisierung des VUV-Lasersystems erläutert, mit dem ein Lichtfeld bei einer Wellenlänge um 122 nm-123 nm erzeugt wird.

Messsequenz für Rydberganregung

Die verwendete Messsequenz, von der Initialisierung der Ionen bis hin zur Detektion der Rydberganregung, ist in Abbildung 5.1 dargestellt:

- i) **Laserkühlen:** Zuerst werden die Ionen über das $4P_{1/2}$ -Niveau, bei Einstrahlung eines Lichtfeld mit einer Wellenlänge bei ungefähr 397 nm, Dopplergeköhlt. Die Lichtfelder bei 866 nm und 854 nm verhindern eine Besetzung der metastabilen Zustände $3D_{3/2}$ und $3D_{5/2}$. Diese Sequenz dauert 10 ms.
- ii) **Initialisieren:** Das Ion wird mit Hilfe von optischem Pumpen aus dem Grundzustand $4S_{1/2}$ in den $3D_{3/2}$ -Zustand Initialisiert. Dazu werden für 0,5 ms die Lichtfelder bei 397 nm und 854 nm eingestrahlt.
- iii) **Rydberganregung:** Daraufhin folgt die 30 ms lange Rydberganregung, bei der nur das VUV-Lichtfeld auf das Ion gestrahlt wird. Da es in dem Aufbau bisher nicht möglich ist das VUV-Licht schnell zu schalten, ist dieses zur Zeit nicht nur in dem 30 ms Puls sondern in der ganzen Sequenz eingeschaltet. Innerhalb der 30 ms zerfällt die Rydberganregung aus dem F-Zustand vollständig in den $3D_{5/2}$ oder $3D_{3/2}$ Zustand. Für diesen Zerfall wird das Verzweungsverhältnis

von 1:16 ($3D_{5/2} : 3D_{3/2}$) abgeschätzt. Dazu wurden $F \rightarrow D$ Übergänge bei $^{40}\text{Ca}^+$ mit niedrigen Hauptquantenzahlen ($7F_{5/2}, 8F_{5/2}, 9F_{5/2}, 10F_{5/2}$) betrachtet [113], die alle dieses Verzweungsverhältnis aufweisen. Die Detektionseffizienz wird durch dieses Verhältnis limitiert.

iv.1) Dieser Sequenzabschnitt wird nur für die Detektion von Rydberganregung in ein $P_{1/2}$ -Niveau benötigt, da diese hauptsächlich in den Grundzustand zerfallen. Um trotzdem ein Signal messen zu können, wird die Grundzustandsbesetzung vor der Detektions-Sequenz mit einem 393 nm Puls in den $3D_{5/2}$ -Zustand umgepumpt.

iv.2) Detektion: Das für die Detektion verwendete „Electron shelving“ macht das Besetzungsverhältnis der Zustände $3D_{3/2}$ und $3D_{5/2}$ sichtbar. Bei der 3 ms andauernden Detektionssequenz wird eine Besetzung des $3D_{3/2}$ -Zustand mit Lichtfeldern bei 397 nm und 866 nm als Fluoreszenzsignal detektiert. Ist die Rydberganregung erfolgreich gewesen und befindet sich das Ion danach im $3D_{5/2}$ -Zustand, verschwindet das Fluoreszenzsignal. Um eine aussagekräftige Messung zu erhalten, wird die ganze Sequenz für jeden Messpunkt mehrmals durchgeführt und das Fluoreszenzsignal gemittelt.

Messergebnisse der Rydberganregungen

Die mit dieser Sequenz gemessenen Rydberg-Linien sind in der Abbildung 5.2 dargestellt, wobei das an die Messpunkte angepasste Linienmodell im Abschnitt 5.5 näher diskutiert wird. Allgemein wurde hier die Besetzung des $3D_{5/2}$ -Niveaus, gegenüber der Wellenlänge des VUV-Lichtfeldes aufgetragen ist. Im Teil a) ist die Rydberganregung in das 52F-Niveau, bei einer Wellenlänge von 122.041913(5) nm ausgehend vom $3D_{3/2}$ -Niveau, gezeigt. Bei dieser Messung wurde der Sequenzabschnitt **iv.1)** ausgeführt. Dies führt zu dem Untergrundsignal um 3%, da der Grundzustand auch nach dem Initialisieren oder keiner erfolgten Rydberganregung besetzt sein kann. In Teil b) der Abbildung 5.2 ist ebenfalls eine Messung der 52F-Linie dargestellt, allerdings wurde diese Messung ohne den Sequenzabschnitt **iv.1)** durchgeführt, weshalb hier kein Untergrundrauschen zu sehen ist. Das die Linie auch ohne **iv.1)** detektiert werden konnte ist ein Hinweis, dass es sich bei dieser Rydberg-Linie um ein F-Niveau handeln muss. Die Halbwertsbreite der Anregung variiert zwischen 60 und 400 MHz, abhängig von den eingestellten Fallenparametern. Beide Messungen wurden mit der ersten Falle (siehe Abschnitt 4.2.1) durchgeführt welche mit einer Antriebsfrequenz von $\Omega_{rf}/2\pi = 3,5$ MHz betrieben wurde. Die daraus resultierenden Fallenfrequenzen wurden mit $\omega_{ax,rad}/(2\pi) = (90, 200)$ kHz gemessen. In Teil c) der Abbildung 5.2 ist die Anregung ist das 53F-Niveau, bei einer Wellenlänge von 122,032384(10) nm ausgehend vom $3D_{3/2}$ -Niveau, gezeigt. Diese Messung wurde in der zweiten Falle (Abschnitt 4.2.2) durchgeführt, die mit einer Antriebsfrequenz von $\Omega_{rf}/2\pi = 6,5$ MHz betrieben wurde. Daraus resultierten Fallenfrequenzen von $\omega_{ax,rad}/(2\pi) = (270, 700)$ kHz.

Zusätzlich zur Besetzungsverschiebung konnte auf Resonanz, bei $\sim 0,3\%$ aller Rydberganregung, Doppelionisation gefolgt von Ionenverlusten festgestellt werden. Diese an eine Rydberganregung gebundenen und reproduzierbaren Ionenverluste verwendeten wir, um die Rydberg-Linie bei 66F zu messen. Um

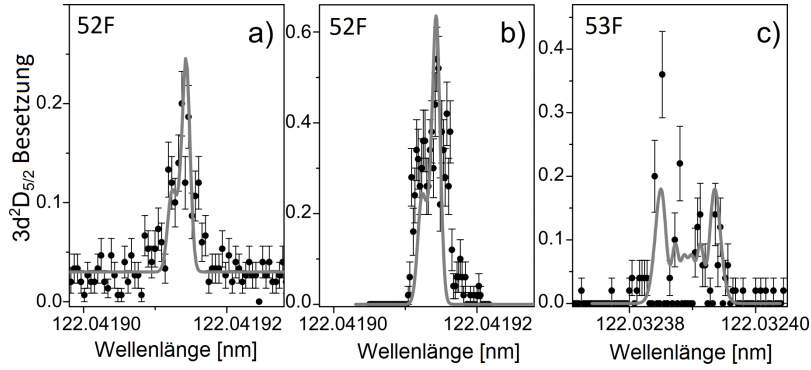


Abbildung 5.2: Gemessene Rydberg-Resonanzen 52F und 53F bei einem $^{40}\text{Ca}^+$ Ion. In Abbildung a) und b) sind Messungen einer Rydberganregungen von $3D_{3/2} \rightarrow 52F$ gezeigt. Die verwendete VUV Leistung lag bei $\approx 0,5 \mu\text{W}$ bei einer Pulsdauer von 30 ms. Gemessen wurde in der ersten Falle bei Fallenfrequenzen von $\omega_{\text{ax,rad}}/(2\pi) = (90, 200) \text{ kHz}$. In a) wurde die Besetzung aus dem Grundzustand nach einer Rydberganregung optisch in das $3D_{5/2}$ Niveau gepumpt (Näheres im Text zur Sequenz **iv.1**). Die Linienbreite (Halbwertsbreite) ist 60 MHz, wobei diese je nach Fallenparametern bis zu 400 MHz variiert. Die Messung in b) wurde ohne das optische Pumpen vom Grundzustand in das $3D_{5/2}$ Niveau durchgeführt, welches nur für P-Zustände benötigt wird. Somit bestätigen die Daten, dass es sich um einen F-Zustand handeln muss. In Abbildung c) ist eine Rydberganregung von $3D_{3/2} \rightarrow 53F$ gezeigt. Diese Messung wurde in der zweiten Falle durchgeführt mit den Fallenfrequenzen $\omega_{\text{ax,rad}} = (270, 700) \text{ kHz}$. Das verwendete Linienmodell beinhaltet den Stark Effekt, Mikrobewegung, thermische Anregung und das Magnetfeld. Die Messungen wurden mit einem Ion durchgeführt, wobei sich ein Messpunkt bei a) aus 150, und bei b) und c) aus 50 Einzelmessungen zusammensetzt. Die Fehlerbalken kommen vom Quantenprojektionsrauschen. Bild veröffentlicht in [61].

dieses höhere Rydberg-Niveau mit dem VUV-Laser anregen zu können, wird das Ion in den $3D_{5/2}$ Zustand initialisiert. Die dafür leicht angepasste Messsequenz ist in Abbildung 5.3 gezeigt. Die Detektion bleibt unverändert, für die Initialisierung werden lediglich Lichtfelder bei 393 nm und 854 nm verwendet, um den Zustand $3D_{5/2}$ zu besetzen. Für die Rydberganregung des $66F$ -Zustandes konnte keine Besetzungsverschiebung gemessen werden. Zwischen einer Wellenlänge von 122,04046 nm und 122,04055 nm konnte aber eine signifikante und reproduzierbare Ionenverlustrate festgestellt werden. Diese Ionenverluste wurde dem $66F$ -Zustand, mit einer Wellenlänge von 122.04050(5) nm aus dem $3D_{5/2}$ -Niveau, zugeschrieben. Der dominierende Verbreiterungs-Mechanismus der Resonanz ist der Stark Effekt, bedingt durch die hohen Polarisierbarkeit (n^7) des Rydberg-Ion. Im Vergleich zu den gemessenen Breiten der $52F$ und $53F$ Resonanz, passt die Breite der $66F$ -Resonanz von $\approx 2 \text{ GHz}$ daher gut. Die Messung der Resonanzkurve wurde in 50 MHz Schritten und mit 50 Messungen pro Frequenz durchgeführt.

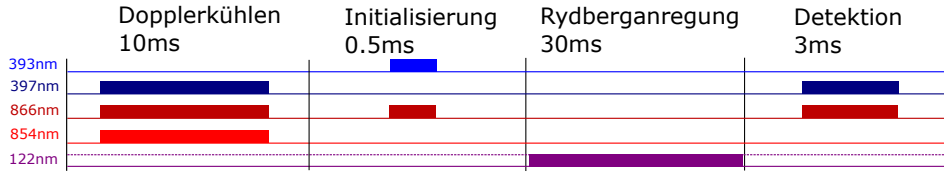


Abbildung 5.3: Messsequenz für die Anregung und Detektion von Rydberganregung in das $66F$ Niveau. Nach dem Dopplerkühlen wird das Ion in den $3D_{5/2}$ -Zustand initialisiert. Von dort regt man mit dem eingestrahnten VUV-Licht das $66F$ -Niveau an. Die Detektions-Sequenz ist die selbe wie bei der Rydberganregung von $52F$ und $53F$. Allerdings wird hier eine erfolgreiche Rydberganregung durch ein Signal bei der Fluoreszenzmessung sichtbar, wohingegen keine Rydberganregung zu keiner Fluoreszenz führt.

5.2 Rydberg-Zustand $22F$

Nutzt man im Vierwellen-Mischprozess die 10^1P -Resonanz in Quecksilber aus, indem die Wellenlänge des dritten fundamentalen Lichtfeldes zu 580 nm gewählt wird, erhält man VUV-Strahlung mit einer Wellenlänge um 123 nm. Mit diesem Licht ist es gelungen, eine Anregung in den $22F$ -Zustand zu detektieren, was in [78] veröffentlicht wurde.

Diese Anregung war trotz der im Abschnitt 4.2.3 erwähnten verunreinigten Elektroden möglich. Da die Polarisierbarkeit und damit auch die Sensitivität gegenüber elektrischen Feldern mit n^7 skaliert, ist der $22F$ -Zustand in dieser Falle (Abschnitt 4.2.2) deutlich stabiler. Die Antriebsfrequenz bei diesen Messungen lag bei $\Omega_{rf}/2\pi = 6,5$ MHz und die Fallenfrequenzen wurden mit $\omega_{(ax,rad)}/2\pi = (700, 1200)$ kHz gemessen. In Abbildung 5.4 ist die Messungen der Rydberganregung dargestellt, wobei auch hier die Besetzung des $3D_{5/2}$ -Zustandes gegenüber der VUV-Verstimmung zur Resonanz aufgetragen ist. Die Wellenlänge des Übergangs $3D_{5/2} \rightarrow 22F$ wurde zu 123,256119(5) nm bestimmt.

5.2.1 Rydberganregung aus einzelnen Zeeman-Niveaus

Bei dem im folgenden Abschnitt vorgestellten Experiment wird das Ion in ein einzelnes Zeeman-Niveau initialisiert, bevor es in den Rydberg-Zustand angeregt wird. Hierfür wurde die kohärente Initialisierung in den $3D_{5/2}$ -Zustand implementiert. Dazu werden mit einem Lichtfeld bei einer Wellenlänge um 729 nm und einer sehr schmalen spektralen Linienbreite (< 600 Hz), π -Pulse auf dem $|4S_{1/2}, m = \pm \frac{1}{2}\rangle \rightarrow |3D_{5/2}, m = \pm \frac{5}{2}, \frac{3}{2}\rangle$ ausgeführt.

In Abbildung 5.5 ist ein Energieschema von Calcium dargestellt. Durch das angelegte magnetische Feld, wird die Entartung der Zeeman-Niveaus aufgehoben und die Energieniveaus werden um $E_z = \mu_B \cdot g_j \cdot B$ verschoben. Dabei ist μ_B das magnetische Moment und g_j der g-Faktor des Ion. Bedingt durch die lange Lebensdauer und dem schmalbandigen Lichtfeld sind diese einzelnen Niveaus aufgelöst, und können einzeln angeregt werden. Zum einen wird es durch

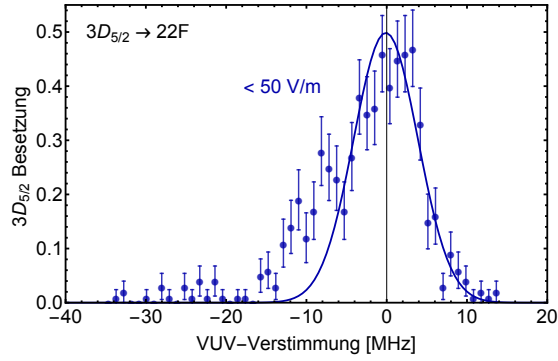


Abbildung 5.4: Gemessene Rydberg-Resonanz 22F. Diese Resonanz wurde in der zweiten Falle detektiert, wobei auch hier die Antriebsfrequenz bei $\Omega_{rf}/2\pi = 6,5$ MHz lag, und die Fallenfrequenzen mit $\omega_{(ax,rad)}/(2\pi) = (700, 1200)$ kHz gemessen wurde. Die Halbwertsbreite der Resonanz beträgt in dieser Messung ≈ 10 MHz.

die kohärente Anregung möglich, die axiale Bewegung des Ionen mit Seitenbandkühlen bis auf $n_{\text{Phonon}} = 4(2)$ Phononen zu kühlen. Diese Temperatur der Ionen wird nur durch die Heizrate von $\dot{n}_{\text{Phonon}} \approx 2 \text{ ms}^{-1}$ limitiert. Zum anderen kann das Ion durch π -Pulse in einzelne Zeeman-Niveaus des $3D_{5/2}$ -Zustandes initialisiert werden und damit die Detektionseffizienz um einen Faktor 5 erhöht und die Linienbreite der Rydberg-Resonanz verringert werden. Letzteres liegt daran, dass nun weniger Rydberg Zeeman-Niveaus bei einer Anregung beteiligt sind. Bei dem detektierten $22F_{7/2}$ -Zustand in einem magnetischen Feld mit $B = 0.28(1)$ mT, liegt die Frequenzaufspaltung der Zeeman-Niveaus bei 4,5 MHz. Bedingt durch die kurze Lebensdauer ($\tau = 0,19 \mu\text{s}$) des $22F$ -Niveaus, der thermischen Bewegung des Ions und der spektralen Linienbreite des VUV-Lichtes, können hier keine einzelnen Zeeman-Niveaus aufgelöst werden. Stattdessen werden Dipolübergänge bei $\Delta m = -1, 0, 1$ getrieben. Die Besetzung des Rydberg-Zustandes zerfällt wieder in den Initial-Zustand $3D_{5/2}$ allerdings in verschiedene Zeeman-Niveaus ebenfalls nach der Auswahlregel $\Delta m = -1, 0, 1$. Die Anregung in den $|22F_{7/2}, m = \pm \frac{7}{2}\rangle$ Zustand ist somit nicht detektierbar, aber Anregungen in die Zustände $|22F_{7/2}, m = \pm \frac{5}{2}, \pm \frac{3}{2}\rangle$ führen zum Teil zu einer Besetzungsumverteilung der Zeeman-Niveaus, welche in der Detektion sichtbar wird.

Messesequenz für Rydberganregung aus einzelnen Zeeman-Niveaus

Die für die Rydberganregung des $22F$ -Zustandes verwendete Sequenz ist in Abbildung 5.6 dargestellt. Das Dopplerkühlen wird durch Seitenbandkühlen ergänzt, und die Initialisierung geschieht nun wie bereits erwähnt durch einen π -Puls in das $|3D_{5/2}, m = \pm \frac{5}{2}\rangle$ Niveau. Die Effizienz des π -Pulses liegt bei 90%, was durch die axiale und radiale Bewegung des Ion limitiert wird. Daraufhin folgt wie gehabt die nun 1,5 ms lange Rydberganregung. Bei der „Elektron shelving“ Sequenz wird nun mit einem π -Puls auf dem Übergang $|4S_{1/2}, m = \pm \frac{1}{2}\rangle \rightarrow |3D_{5/2}, m = \pm \frac{5}{2}\rangle$, die Besetzung in den Grundzustand gebracht, welche nicht

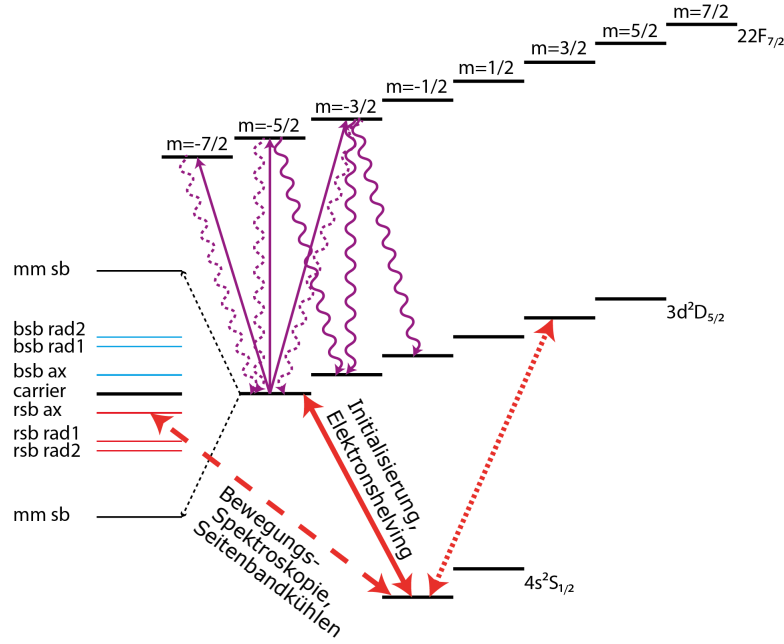


Abbildung 5.5: Energielevelschema für die Rydberganregung in den $22F$ -Zustand. Durch das angelegte magnetische Feld ($B = 0.28(1)$ mT), wird die Entartung der Zustände $3D_{5/2}$ und $22F_{7/2}$ aufgelöst. Durch einen π -Pulse mit Licht bei einer Wellenlänge von 729 nm, kann der Übergang $|4S_{1/2}, m = \pm \frac{1}{2}\rangle \rightarrow |3D_{5/2}, m = -\frac{5}{2}\rangle$ kohärent getrieben, und das Ion initialisiert werden (roter Pfeil). Auch anderen Zeeman-Niveaus sind auf diese Weise erreichbar (gepunkteter Pfeil). Die einzelnen $22F$ Zeeman-Niveaus können dahingegen nicht aufgelöst werden (siehe Text). Der nach der Rydberganregung folgende Zerfall, kann zu einer Besetzungsumverteilung in den Zeeman-Niveaus führen. Diese wird während der Detektion sichtbar gemacht. Ein Zerfall zurück in den Initial-Zustand kann dahingegen nicht detektiert werden. Zudem wird der Übergang $4S_{1/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ für Seitenbandspektroskopie und -kühlen verwendet (gestrichelter Pfeil). Die Abkürzung stehen für mm = Mikrobewegung, bsb = blaues Seitenband, rad = radial, ax = axial und rsb = rotes Seitenband. Bild in [78] veröffentlicht.

durch Rydberganregung das Zeeman-Niveau gewechselt hat. Die Besetzung im Grundzustand wird dann mit dem Lichtfeld bei 397 nm in das $3D_{3/2}$ -Niveau gepumpt, woraufhin ein weiterer π -Puls eingestrahlt wird. Bei der darauf folgenden Detektion, wird nur die Besetzung durch Fluoreszenz sichtbar, welche während der Rydberganregung nicht das Zeeman-Niveau gewechselt hat. Der zweite Puls wird nur verwendet, um die Genauigkeit der Detektion zu erhöhen.

Messergebnisse für Rydberganregung aus einzelnen Zeeman-Niveaus

Die in Abbildung 5.7 gezeigten Resonanzen sind gemessene Rydberganregungen in das $22F$ -Niveau aus den Initial-Zuständen $|3D_{5/2}, m = +5/2\rangle$ (rot/-Punkte) und $|3D_{5/2}, m = -5/2\rangle$ (blau/Quadrate). Die beiden gemessenen Resonanzkurven setzen sich dabei aus Anregungen in jeweils zwei unterschiedli-

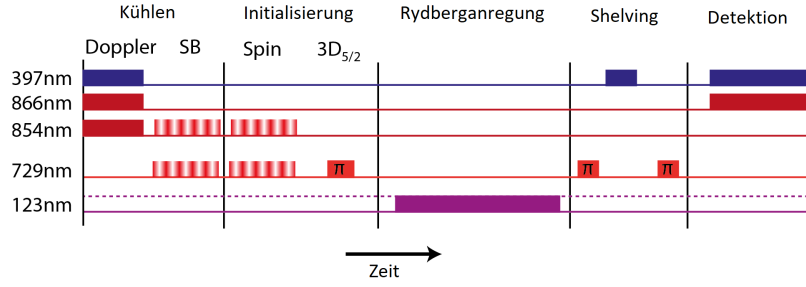


Abbildung 5.6: Sequenz für die Rydberganregung über ein $3D_{5/2}$ Zeeman-Niveau. i) Die Ionen werden Doppler- und Seitenbandgekühlt. ii) Ein π -Puls auf dem $|4S_{1/2}, m = \pm\frac{1}{2}\rangle \rightarrow |3D_{5/2}, m = \pm\frac{5}{2}\rangle$ Übergang initialisiert die Ionen. iii) Gefolgt von der Rydberganregung (1,5 ms) in den $22F$ -Zustand, unter Beachtung der Auswahlregel $\Delta m = -1, 0, 1$. iv) Ein π -Puls auf dem $|4S_{1/2}, m = \pm\frac{1}{2}\rangle \rightarrow |3D_{5/2}, m = \pm\frac{5}{2}\rangle$ Übergang bringt die Besetzung in den Grundzustand, die nicht durch eine Rydberganregung das Zeeman-Niveau gewechselt hat. Um die Genauigkeit der Detektion durch einen zweiten Puls zu erhöhen, wird mit Licht der Wellenlänge 397 nm zuerst die Grundzustandsbesetzung in das metastabile $3D_{3/2}$ -Niveau gebracht. v) Bei der Detektion wird durch Fluoreszenz die Besetzung sichtbar gemacht, welche während der Rydberganregung nicht das Zeeman-Niveau verändert hat. Keine messbare Fluoreszenz bedeutet demnach eine erfolgreiche Rydberganregung. Bild in [78] veröffentlicht.

che $22F$ -Zeeman-Niveaus zusammen. Für die Anregung aus dem $3D_{5/2}$ -Niveau werden $\Delta m = \{-1, 0\}$, und bei einer Initialisierung in den $3D_{-5/2}$ -Zustand $\Delta m = \{0, +1\}$ Übergänge detektiert. Die Übergänge mit $\Delta m = 1$ respektive $\Delta m = -1$ werden zwar angeregt, werden aber wie schon erwähnt in der Detektions-Sequenz nicht sichtbar gemacht. Die Resonanzfrequenzen beider Kurven sind zueinander verschoben, was auf den unterschiedlichen g-Faktoren des $3D_{5/2}$ und $22F_{7/2}$ -Niveaus zurückzuführen ist. An die beiden Resonanzkurven wurde eine Funktion angepasst, die jeweils aus Gaußverteilungen für jeden Zeeman-Übergang zusammengesetzt wurde. Die Linienbreite der Gaußverteilung ist mit σ_m und die relative Stärke des jeweiligen Übergangs mit $C_{m,\Delta m}$ bezeichnet und wurden durch Kurvenanpassung an die Messdaten angepasst. Damit erhält man $\sigma_{+5/2} = 4,8(3)$ MHz, $C_{+5/2,-1} = 0.19(3)$ und $C_{+5/2,0} = 0,32(3)$ für die Anregung aus dem $|3D_{5/2}, m = +\frac{5}{2}\rangle$ Zustand und $\sigma_{-5/2} = 3,9(3)$ MHz, $C_{-5/2,+1} = 0.27(3)$ und $C_{-5/2,0} = 0,22(3)$ für die Anregung aus dem $|3D_{5/2}, m = -\frac{5}{2}\rangle$ Zustand. Das Ergebnis für die relativen Stärken $C_{m,\Delta m}$ passt gut zu der Annahme, dass die Anregungen mit unterschiedlichem Δm und deren Detektion jeweils die gleichen Wahrscheinlichkeiten aufweisen. Allerdings fällt auf, dass die Linienbreiten $\Delta_{+5/2} = (2 \cdot \sqrt{2 \cdot \ln(2)})\sigma_{+5/2} = 11.3$ MHz und $\Delta_{-5/2} = (2 \cdot \sqrt{2 \cdot \ln(2)})\sigma_{-5/2} = 9,2$ MHz sehr viel größer als die natürliche Linienbreite $\Delta_{22F} = 0,8$ MHz der $22F$ -Resonanz sind. Dies wird auf die thermische Bewegung des Ion, sowie die spektrale Linienbreite des VUV-Lichtes zurückgeführt.

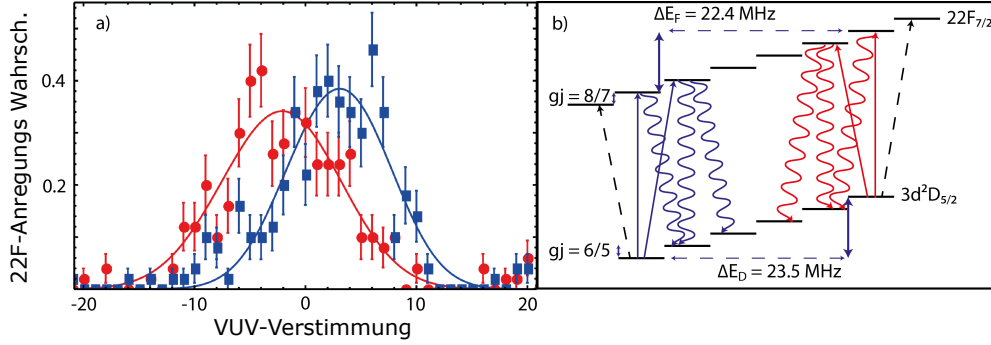


Abbildung 5.7: Messdaten der $22F$ -Resonanz aus verschiedenen $3D_{5/2}$ -Zeeman-Zuständen. In Abbildung a) sind zwei gemessene Resonanzen des $22F$ -Zustandes zu sehen. In Teil b) ist ein Termschema zu sehen, indem die Anregungs- und Zerfallskanäle dieser Zeemanelektiven Anregung dargestellt ist. Für die rote Kurve (Punkte), wurde das Ion in den $|3D_{5/2}, m = +5/2\rangle$ -Zustand initialisiert. Für die blaue Kurve (Quadrate), wurde das Ion in den $|3D_{5/2}, m = -5/2\rangle$ -Zustand initialisiert. Bei der Detektion werden nur die Anregungen sichtbar, bei denen die Besetzung aus dem Rydberg-Zustand nicht zurück in den initialen Zustand zerfallen sind. Durch die unterschiedlichen g -Faktoren des $3D_{5/2}$ und $22F_{7/2}$ Zustandes, ist die detektierte mittlere Anregungsfrequenz verschoben. Bei dem Fit wurde die Zeemanaufspaltung berücksichtigt (siehe Text). Bild in [78] veröffentlicht.

5.2.2 Selektive Einzelionen-Anregung

In zukünftigen Experimenten im Bereich der Quantensimulation oder für die Realisierung eines Quantencomputers sind kontrollierbare Rydberganregung ein sehr vielversprechendes Instrument. Dafür wird es notwendig sein, einzelne Ionen aus einem großen Ionenkristall heraus in den Rydberg-Zustand anzuregen. Denkbar wäre eine Lösung, bei der das VUV-Lichtfeld auf einzelne Ionen bewegt und darauf fokussiert werden würde. Dies ist allerdings nicht wirklich praktikabel, da es sehr aufwendig wäre den VUV-Strahl so schnell zu bewegen, dass Rydberganregungen mehrerer Ionen innerhalb der Zerfallszeit der Rydberg-Niveaus möglich sind, und es zudem schwer ist dies ohne große Verluste zu tun. Zudem würde es die Anregungsdynamik verkomplizieren, wenn man das VUV-Licht in radialer Richtung in die Falle einstrahlt. Das Problem wurde gelöst [78], indem die einzelnen Ionen selektiv in den $3D_{5/2}$ -Zustand initialisiert wurden. Dies hat vor allem den Vorteil, dass durch die lange Lebensdauer des $3D_{5/2}$ -Zustands ($\tau = 1168(9)$ ms [57]) mehrere Initialisierung und Transport Sequenzen möglich sind, sodass viele Ionen gleichzeitig in den Rydberg-Zustand angeregt werden können. Dies geschieht durch einen VUV-Puls, der alle Ionen gleichzeitig beleuchtet aber nur die vorher initialisierten Ionen in den Rydberg-Zustand anregt.

Für die Initialisierung wird nicht wie man vermuten könnte, der Initialisierungsstrahl mit Licht bei der Wellenlänge bei 729 nm auf das entsprechende Ion bewegt. Stattdessen können wir, bedingt durch den Aufbau der segmentierten

Paul Falle (Abschnitt 4.2.2), das Ionen in den Fokus des Laserstrahls bewegen. Für diese Messung wurde die Antriebsfrequenz der Falle auf $\Omega_{rf}/2\pi = 20$ MHz erhöht. Somit wird es möglich mit größeren Feldamplituden, höhere Fallenfrequenzen zu erreichen ($\omega_{(ax,rad)}/2\pi = (600, 1500)$ kHz). Das so erzeugte Potential ist insbesondere für mehrere Ionen stabiler. Der Abstand der drei Ionen liegt hier bei $d \approx 7 \mu\text{m}$.

Messsequenz für selektive Rydberganregung

Die für dieses Experiment verwendete Messsequenz ist in Abbildung 5.8 ausgeführt.

i) Gefolgt von der Doppler- sowie Seitenbandkühlung, welche in der Grafik nicht abgebildet ist, folgt

ii) die kohärente Initialisierung einzelner Ionen. Da bei der Detektion nicht die im vorherigen Abschnitt erwähnte Umschichtung der Besetzung in verschiedene Zeeman-Niveaus verwendet wird, können beliebige Zeeman-Niveaus angeregt werden. Dies wird genutzt, um die Anregungswahrscheinlichkeit in den Initialzustand $3D_{5/2}$ auf $> 90\%$ zu erhöhen. Dazu werden zwei π -Pulse auf dem Übergang $4S_{1/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ ausgeführt, die jeweils in zwei unterschiedliche Zeeman-Zustände von $3D_{5/2}$ anregen. Das zu adressierende Ion wird vorher in den Fokus des Initialisierungs-Laserstrahls bewegt (Siehe dazu Abbildung 4.6). Nach ausführen der Initialisierung wird das nächste Ion in den Fokus bewegt, und dies so lange wiederholt, bis alle zu adressierenden Ionen initialisiert sind. In der Abbildung 5.8 ist dies schematisch für eine Kette aus drei Ionen dargestellt, bei dem die äußeren beiden Ionen initialisiert werden.

iii) Bei der daraufhin folgenden Rydberganregung, werden alle zuvor initialisierten Ionen mit ein 5 ms Puls von axial eingestrahlttem VUV-Licht, in den $22F_{5/2}$ Zustand angeregt. Davon zerfällt ein Teil wiederum in den $3D_{3/2}$ Zustand. Ionen die nicht initialisiert wurden befinden sich weiterhin im Grundzustand.

iv) Diese Grundzustandsbesetzung wird nun mit Licht bei einer Wellenlänge von 393 nm und einer Effizienz von 90%, in den $3D_{5/2}$ Zustand gepumpt. Nun befinden sich sowohl die vorher initialisierten aber nicht in den $3D_{3/2}$ -Zustand zerfallenen, sowie nicht initialisierten Ionen im $3D_{5/2}$ -Zustand.

v) Bei der Fluoreszenzdetektion mit Lichtfeldern der Wellenlängen 397 nm und 866 nm, emittieren nun nur die Ionen Licht, welche sich in dem $3D_{3/2}$ Zustand befinden.

In Sequenzabschnitt iv) werden die Ionen die sich im Grundzustand befinden, mit Licht der Wellenlänge 393 nm in den $4P_{3/2}$ -Zustand angeregt. Von dort zerfallen sie zu 90% in den $3D_{5/2}$ -Zustand, und zu 10% zerfallen sie auch in den $3D_{3/2}$ -Zustand [113]. Dies führt zu einem Untergrundrauschen in dem Signal der nicht adressierten Ionen. Um diesen Effekt zu berücksichtigen, wurde auf die Datenpunkte der vorher initialisierten Ionen ein konstantes Hintergrundsignal von 8% addiert. Dies ist gerechtfertigt, da das optische Pumpen in iv) nicht die vorher initialisierten Ionen beeinflusst.

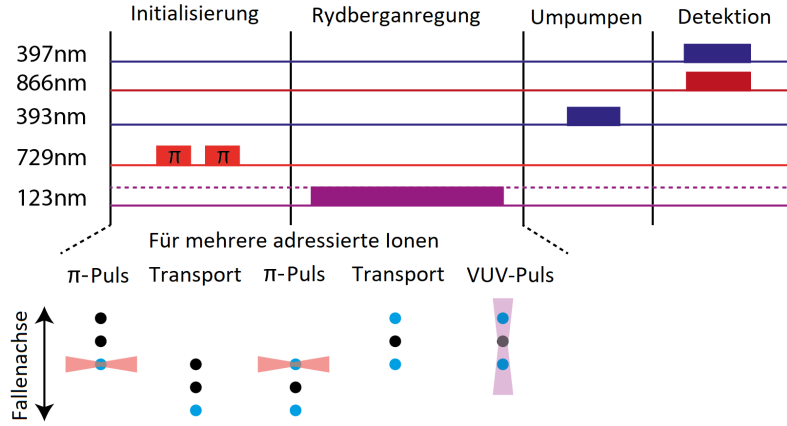


Abbildung 5.8: Sequenz für die Rydberganregung einzelner adressierter Ionen. Die zu adressierenden Ionen werden in den Fokus des Initialisierungs Laserstrahl (729 nm) bewegt. Um die Anregungseffizienz zu erhöhen, werden zwei π -Pulse in jeweils unterschiedliche $3D_{5/2}$ Zeeman-Niveaus verwendet. Bei der Rydberganregung, werden alle Ionen mit VUV-Licht bestrahlt aber nur die vorher initialisierten werden in den $22F_{5/2}$ -Zustand angeregt. Von dort zerfallen sie zum Teil in den $3D_{3/2}$ -Zustand. Die nicht adressierten Ionen werden aus dem Grundzustand mit Licht bei 393 nm in das $3D_{5/2}$ -Niveau angeregt. Bei der Detektion werden nun nur die Ionen sichtbar, welche sich im $3D_{3/2}$ -Zustand befinden, und folglich vorher adressiert gewesen sein müssen. Bild in [78] veröffentlicht.

Messergebnisse für selektive Rydberganregung

Die im Experiment gemessenen Resonanzkurven einzelner adressierter Ionen sind in den Abbildungen 5.9 und 5.10 gezeigt. Im ersten Experiment wurde das mittlere Ion aus drei, in einer Reihe angeordneten Ionen, adressiert. In Abbildung 5.9 sind Messdaten der $22F$ Rydberg-Resonanz zu sehen, wobei die Anregungswahrscheinlichkeit des mittleren Ions um einen Faktor ≈ 3 höher ist, als die der beiden nicht adressierten Ionen. Die nicht verschwindende Anregung der nicht initialisierten Ionen ist eine technische Limitierung. Während der ganzen Messsequenz wird das VUV-Licht nicht, wie in der Messsequenz gezeigt wird, ausgeschaltet. Das führt dazu, dass die Ionen welche während dem Umpumpen (iv) und der Detektion (v) im $3D_{5/2}$ -Zustand sind, in den $22F_{5/2}$ -Zustand angeregt werden können. Diese Anregung zerfällt auch in den $3D_{3/2}$ -Zustand und führt so zu einem Fluoreszenzsignal bei den nicht adressierten Ionen. In Zukunft soll diese Limitierung durch einen Elektrooptischer Modulator behoben werden, der das VUV-Licht schaltet. Dann sollte diese Genauigkeit dieses Experimentes nur noch von der Initialisierungseffizienz abhängen. In dem inneren Bild a), ist eine schematische Darstellung von der Ionenkette, und der Richtung der verwendeten Lichtfelder gezeigt. Im inneren Bild b) sind Messdaten der Rabi-Oszillation des mittleren Ion auf dem $4S_{1/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ Übergang dargestellt. Die Rabi-Frequenz ist $\Omega_{rabi}/2\pi = 80 \text{ kHz}$ und es ist zu erkennen, dass die beiden äußeren Ionen während einem π -Puls unbeeinflusst bleiben.

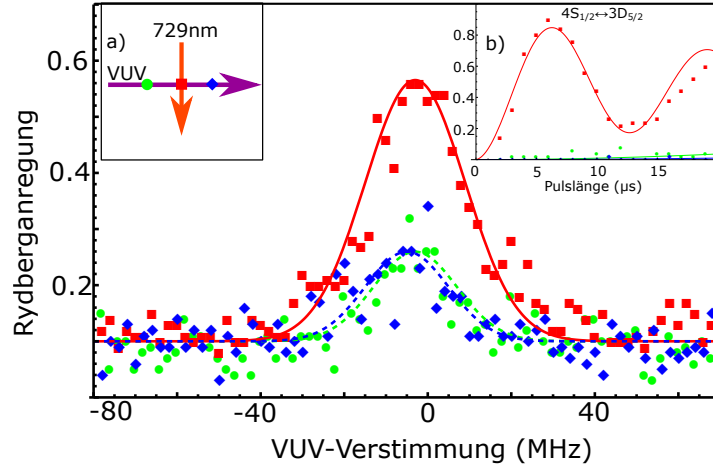


Abbildung 5.9: Initialisierung eines Ion aus einem Ionenkristall. Die rote Kurve (Quadrate) zeigt die Messdaten des Fluoreszenzsignals vom mittleren Ion. Die grüne und blaue Kurve (Raute) zeigen das Fluoreszenzsignal vom linken respektive rechten Ion. Die Wellenlängen des VUV-Licht wurde dabei um die $22F$ Resonanz verstimmt. Siehe dazu das innere Bild a), wobei die beiden Pfeile die Ausbreitungsrichtung des VUV-Lichtfeldes sowie des Initialisierungs-Laserstrahls darstellen. Auf die Messdaten des adressierten Ions ist ein konstantes Hintergrundsignal von 8% addiert (siehe Text). Die Rydberganregung des adressierten Ions ist um einen Faktor ≈ 3 wahrscheinlicher als die der nicht adressierten Ionen. Im inneren Bild b) sind Messdaten der Rabi-Oszillation auf dem $4S_{1/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ Übergang zu sehen. Die Rabi-Frequenz ist $\Omega_{\text{rabi}}/2\pi = 80 \text{ kHz}$, und die nicht adressierten Ionen bleiben unbeeinflusst. Bild in [78] veröffentlicht.

Für die Anregung der beiden äußeren Ionen wurde der Ionenkristall mit einer Spannungsrampe an den Segmenten 4 und 8 ($\Delta V = \pm 280 \text{ mV}$ in $500 \mu\text{s}$), um $14 \mu\text{m}$ bewegt. Die Messergebnisse der Rydberganregung, bei der beide äußeren Ionen adressiert waren, sind in Abbildung 5.10 gezeigt. Die Anregungswahrscheinlichkeit der adressierten Ionen ist um einen Faktor $\approx 2,8$ größer als die des mittleren nicht adressierten Ions. In dem inneren Graph ist hier die Rabi-Oszillation der beiden äußeren Ionen auf dem $4S_{1/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ Übergang dargestellt. Auch hier wird das nicht adressierte mittlere Ion nicht beeinflusst. Im Vergleich zur Anregung mit nur einem Ionen wird weder ein reduzierter Kontrast der Rabi-Oszillation noch eine höhere Anregungswahrscheinlichkeit nicht adressierter Ionen festgestellt, was durch den Transport verursacht werden könnte. Ein π -Puls dauert $t \approx 14 \mu\text{s}$, sodass während der Lebensdauer des metastabilen $3D_{5/2}$ -Zustandes ($\tau = 1168(9) \text{ ms}$ [57]) viele Ionen initialisiert werden können und genügend Zeit für die Transportsequenzen bleibt. Somit ist dieser Ansatz prinzipiell auch auf einen großen Ionenkristall skalierbar.

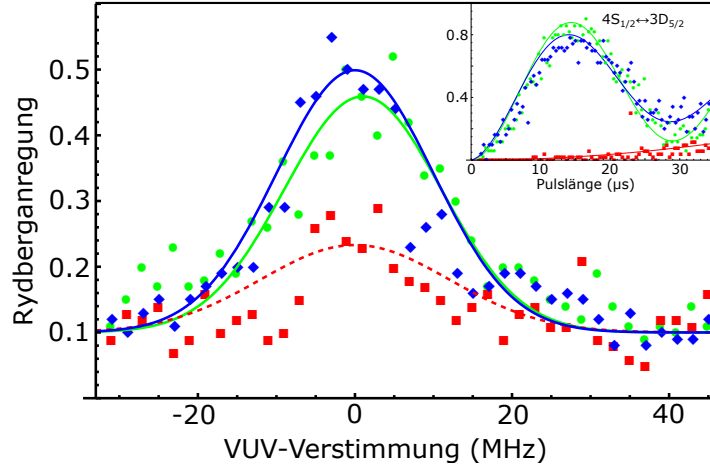


Abbildung 5.10: Initialisierung zweier Ionen aus einem Ionenkristall. Die rote Kurve (Quadrate) zeigt die Messdaten des Fluoreszenzsignals vom mittleren Ion. Die grüne und blaue Kurve (Raute) zeigen das Fluoreszenzsignal vom linken respektive rechten Ion. Die Wellenlängen des VUV-Licht wurde dabei um die $22F$ Resonanz verstimmt. Hier wurden beide äußeren Ionen in den Rydbergzustand angeregt, wobei deren Anregungswahrscheinlichkeit um einen Faktor $\approx 2,8$ größer ist als die des mittleren Ionen. Auch hier wurde auf die Messdaten der adressierten Ionen ein konstantes Hintergrundsignal von 8% addiert (siehe Text). Das Innere Bild zeigt die gemessene Rabi-Oszillation auf dem $4S_{1/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ Übergang der beiden äußeren Ionen, wohingegen das mittlere nicht adressierte Ionen unbeeinflusst bleibt. Bild in [78] veröffentlicht.

5.3 Quantendefekt und Hauptquantenzahlen

Bisher wurde nicht erwähnt wie die gemessenen Resonanzfrequenzen der Rydberganregungen den jeweiligen Hauptquantenzahlen zugeordnet wurden, und welche Quantendefekte sich daraus ergeben. Dies soll in diesem Abschnitt näher diskutiert werden.

Die bisher erwähnten Hauptquantenzahlen für die hohen Rydberg-Niveaus $52F$, $53F$ und $66F$ stimmen nicht mit den in der Publikation [61] erwähnten Hauptquantenzahlen überein. Diese Revidierung der veröffentlichten Werte soll erst am Ende dieses Abschnittes diskutiert werden. Die neue Zuordnung wurde unter Zuhilfenahme der er nach der Veröffentlichung gemessenen $22F$ Resonanz getroffen.

In der Tabelle 5.1 sind die vier gemessenen Rydberg-Zustände mit den jeweiligen VUV-Wellenlängen und der Energie aus dem $4S_{1/2}$ -Grundzustand gezeigt. Dabei konnte das $52F$ - und das $53F$ -Niveau nur aus dem $3D_{3/2}$ -Zustand, und das $22F$ - sowie das $66F$ -Niveau nur aus dem $3D_{5/2}$ -Zustand angeregt werden. Diese Einschränkung liegt an der begrenzten Durchstimmbarkeit des VUV-Lasersystems.

Für die folgenden Berechnungen wurde die gemessene Übergangs Frequenz [114]

$$\Delta\nu_{4S \rightarrow 3D} = 411\,042\,129\,776\,393\,\text{Hz} \quad (5.1)$$

Tabelle 5.1: Wellenlängen der gemessenen Rydberg-Resonanzen.

Es sind die gemessenen VUV-Wellenlängen aus den beiden Initialzuständen $3D_{3/2}$ und $3D_{5/2}$ für alle detektierten Zustände dargestellt. Die Energie bezieht sich auf die Energiedifferenz zum Grundzustand $4S_{1/2}$

Niveau	Wellenlänge aus $D_{3/2}$ [nm]	Wellenlänge aus $D_{5/2}$ [nm]	Energie von $4S_{1/2}$ [cm^{-1}]
$22F$ (n_4)	- - -	123,256119(5)	94842,764(3)
$52F$ (n_1)	122,041913(5)	- - -	95589,258(3)
$53F$ (n_2)	122,032384(10)	- - -	95595,656(7)
$66F$ (n_3)	- - -	122,04050(5)	95650,901(33)

für den $4S_{1/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ Übergang verwendet. Außerdem noch die gemessene Frequenz der Feinstrukturaufspaltung [115]

$$\Delta\nu_{fs} = 1\,819\,599\,021\,504\,\text{Hz} \quad (5.2)$$

der $3D_{3/2} - 3D_{5/2}$ Niveaus. Für die Kurvenanpassung der Energie an die gemessenen Rydberg-Zustände wurde die Rydbergformel [49,61]

$$E_{n,\delta} = E_I - \frac{R_\infty}{1 + \frac{m_e}{m_{\text{Ca}^+}}} \cdot \frac{Z^2}{(n - \delta)^2} \quad (5.3)$$

verwendet. Dabei ist E_I die Ionisationsenergie von $^{40}\text{Ca}^+$, welches zum einen durch Kurvenanpassung an die gemessenen Rydbergenergien herausgefunden werden kann, oder aber aus bereits vorhandenen Abschätzungen als $E_I \approx 95750\,\text{cm}^{-1}$ [116] angenommen werden kann. Des weiteren ist m_e und m_{Ca^+} die Masse des Elektrons respektive des Calcium Ions, $Z = 2$ die Kernladungszahl, n die Hauptquantenzahl und δ der Quantendefekt. Sowohl n als auch δ können ebenfalls durch eine Kurvenanpassung herausgefunden werden. Ebenfalls verwendete Theoriewerte für die Quantendefekte [60] wurden schon in 2.22 zusammengestellt. Da die Rydberganregungen hauptsächlich in den D -Zustand zerfallen, die Resonanzfrequenzen durch den Stark Effekt verringert werden und die gemessene Polarisierbarkeit zur Theorie von F -Zuständen passt (siehe Abschnitt 5.5), lässt eine Einschränkung auf einen F -Zustand zu.

5.3.1 Zuordnung der Rydberg-Niveaus

Da in der Publikation T. Feldker 2015 [61] nur drei gemessene Rydberg-Resonanzen zur Verfügung standen, wurden die Hauptquantenzahlen n fehlerhaft identifiziert. In Kapitel B wird diese falsche Zuordnung im Detail diskutiert. Im folgenden Abschnitt wird die korrigierte Zuordnung der Rydberg-Zustände erklärt.

Bei einer Energie von $94842,764\,\text{cm}^{-1}$ aus dem Grundzustand $4S_{1/2}$, wurde nach der Veröffentlichung [61] eine weitere Resonanz n_4 gefunden. Diese konnte mit dem Quantendefekt $\delta_F = 0,026$ [60] und der Ionisationsenergie $E_I \approx 95750\,\text{cm}^{-1}$ [116] eindeutig dem $22F$ -Zustand zugeordnet werden. Durch

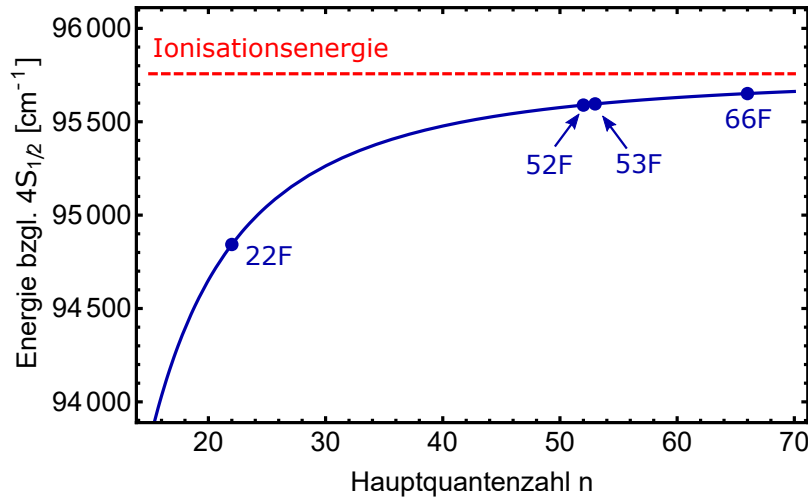


Abbildung 5.11: Kurvenanpassung der Rydbergformel an gemessene Rydberg-Resonanzen. Die Rydbergformel aus Gleichung (5.3) wurde mit dem Quantendefekt δ und der Ionisationsenergie E_I als Anpassungsparameter an die gemessenen Resonanzen angepasst. Somit konnten die dargestellten Hauptquantenzahlen identifiziert werden. Die Energien sind bezüglich des Grundzustandes $4S_{1/2}$ berechnet. Die Fehlerbalken sind auf dieser Skala nicht sichtbar.

eine Kurvenanpassung der Rydbergformel (5.3) an die gemessenen Resonanzen (siehe Abbildung 5.11) wird ersichtlich, dass die in [61] getroffenen Zuordnung von $n_1 = 51$, $n_2 = 52$ nicht korrekt sein kann. Die Anpassungsparameter waren sowohl die Ionisationsenergie als auch der Quantendefekt, und diese stimmen nur bei den gewählten Hauptquantenzahlen von $n_1 = 52$, $n_2 = 53$ und $n_3 = 66$ sehr gut mit den theoretisch erwarteten Werten überein. Für den Quantendefekt wurde bei der Kurvenanpassung die in 2.20 ausgeführte Potenzreihe des Quantendefektes verwendet, wobei nur der konstante Wert a angepasst wurde. Die theoretisch erwarteten Werte des Quantendefektes können zu $\delta_{22F} = 0,02565$ und $\delta_{52F} = 0,02589$ berechnet werden. Aus der Kurvenanpassung werden die Werte $\delta_F^{exp} = 0.025514(21)$ für den Quantendefekt und $E_I^{exp} = 95751.747(1) \text{ cm}^{-1}$ für die Ionisationsenergie ermittelt, die eine sehr gute Übereinstimmung mit der Theorie zeigen. Diese Werte sind nochmal in der Tabelle 5.2 aufgelistet.

Tabelle 5.2: Vergleich des Quantendefektes und der Ionisationsenergie aus Theorie und Experiment. Es werden die berechneten Werte des Quantendefekt aus der Theorie [60], mit den experimentellen Werten aus der Kurvenanpassung verglichen.

Variable	Theorie	Experiment
δ_F	$\delta_{22F} = 0,02565$ $\delta_{52F} = 0,02589$	0.025514(21)
E_I	95750 cm^{-1}	$95751.747(1) \text{ cm}^{-1}$

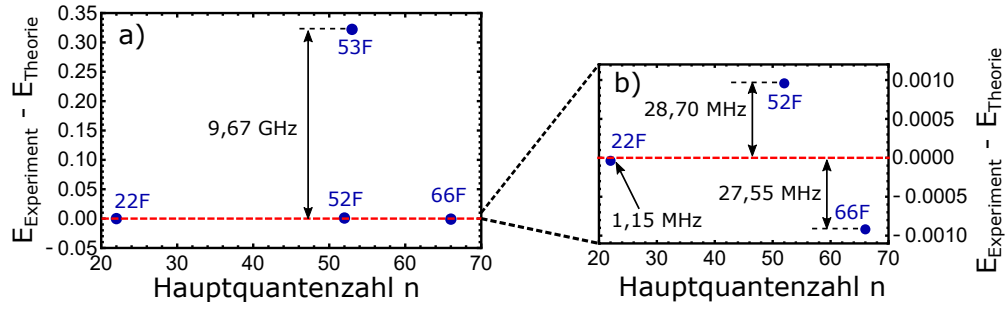


Abbildung 5.12: Vergleich der experimentellen Resonanzen mit der Theorie. In a) ist die Differenz der gemessenen Energie $E_{\text{Experiment}}$ und der theoretisch berechneten Energie E_{Theorie} aus der Rydbergformel, von allen vier gemessenen Resonanzen aufgetragen. Dabei fällt auf, dass die 53F-Resonanz im Vergleich der anderen Resonanzen sehr weit abweicht. In b) ist ein vergrößerter Bildabschnitt gezeigt, indem die Abweichung der anderen drei Resonanzen deutlicher wird. Die Fehlerbalken sind in a) zu klein, und in b) zu groß und werden daher nicht gezeigt.

In der Abbildung 5.12 ist der Vergleich der Theorie mit den experimentellen Ergebnissen anschaulich dargestellt. Es ist die Differenz aus der gemessenen Energie der Resonanzen und der aus der Rydbergformel berechneten Energie aufgetragen. In Abbildung Teil a) wird deutlich, dass die Energie der Resonanzen 22F, 52F und 66F gut zu den in der Theorie berechneten Werten passt. Lediglich die Energie des 53F-Zustandes weicht stark von der Erwartung ab. Vermutlich ist bei der experimentellen Bestimmung der Energie ein Messfehler unterlaufen. Um eine genauere Aussage darüber zu bekommen, muss diese Resonanz allerdings erneuert gemessen werden. Wegen der großen Abweichung wurde die 53F-Resonanz bei der vorher erwähnten Kurvenanpassung nicht miteinbezogen. Außerdem war dies der Grund, warum bei der ersten Veröffentlichung [61] die Zustände falsch identifiziert wurden. Da die Werte aus der Kurvenanpassung sehr gut mit den theoretisch erwarteten Werten übereinstimmt, ist die neue Zuordnung der gemessenen Rydberg-Resonanzen $n_1 = 52$, $n_2 = 53$, $n_3 = 66$ und $n_4 = 22$.

5.4 Anregungsraten

In Abschnitt 3.6 wurde ausführlich die Leistung des VUV-Lichtfeldes diskutiert. So ist die Erzeugung von VUV-Licht mit einer Leistung $> \mu\text{W}$, auf sehr kleine Frequenzintervalle eingeschränkt. Daher ist es notwendig vor der experimentellen Suche einer Rydberg-Resonanz, die erwartete Anregungsrate abzuschätzen. Die Anregungsrate W kann mit

$$W = \sigma(\omega)\Phi = \sigma(\omega) \cdot \frac{I_{\text{VUV}}}{\hbar\omega} \quad (5.4)$$

abgeschätzt werden, wobei $\sigma(\omega)$ der Wirkungsquerschnitt, Φ die Photonenflussdichte, I_{VUV} die Intensität des VUV-Lichtes, $\hbar$ das reduzierte Plancksche

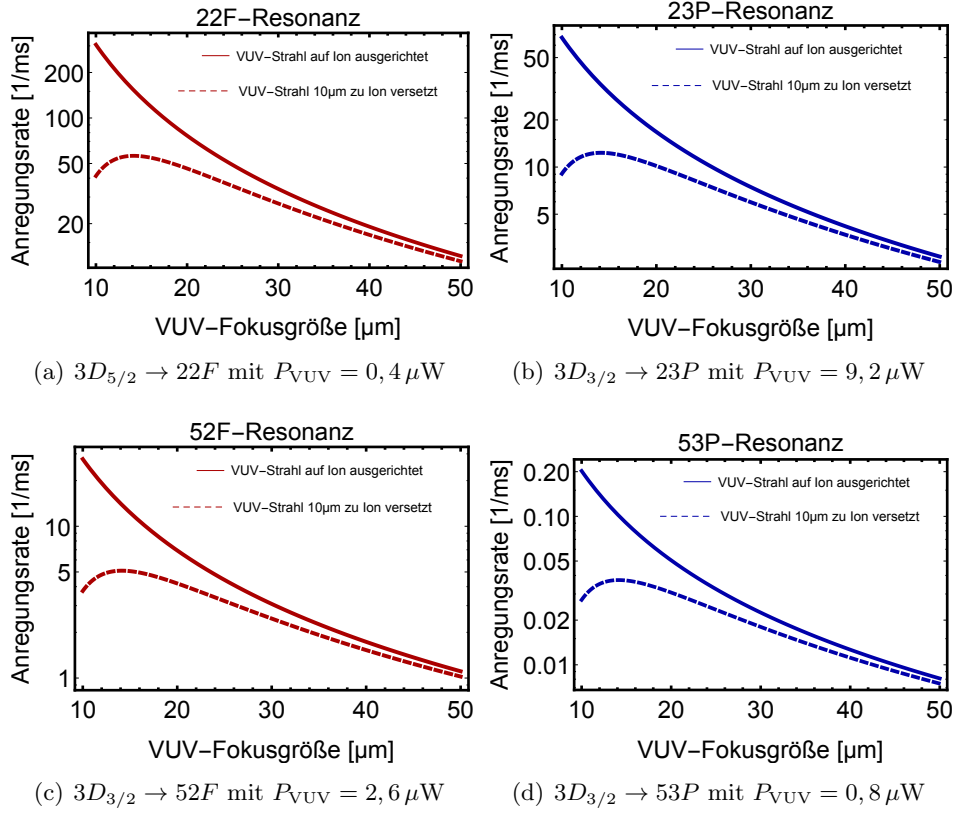


Abbildung 5.13: Anregungsrate in Abhängigkeit der VUV-Fokusgröße. Die Bilder a) - d) zeigen die mit 5.6 berechnete Anregungsrate in das jeweilige Rydberg-Niveau. Dabei ist bei der durchgezogenen Linie das Ion im Zentrum des VUV-Gaußstrahls. Bei der gestrichelten Linie wurde angenommen, dass der VUV-Gaußstrahl um $10 \mu\text{m}$ vom Ion versetzt eingestrahlt wird. Es wurde zudem eine Verbreiterung der Resonanz angenommen. Diese wurden bei a) + b) mit $\Gamma/2\pi = 10 \text{ MHz}$, bei c) mit $\Gamma/2\pi = 50 \text{ MHz}$ und bei d) mit $\Gamma/2\pi = 20 \text{ MHz}$ abgeschätzt. Diese Abschätzung geschieht unter Beachtung der detektierten bzw. erwarteten Linienbreite der Resonanzen.

Wirkungsquantum und ω die Frequenz des VUV-Lichtes ist. Die Leistung des VUV-Lichtes bei den entsprechenden Rydberg-Resonanzen wurden in Tabelle 3.3 zusammengestellt.

Der Wirkungsquerschnitt kann wiederum durch

$$\sigma(\omega) = \frac{1}{4} \lambda^2 A \cdot g(\omega) = \mu^2 \cdot \frac{2\omega_0^3}{3\epsilon_0 \hbar c^3} \cdot \frac{\lambda^2}{4} \cdot g(\omega) \quad (5.5)$$

berechnet werden [117,118]. Hierbei ist μ das Übergangsdipolmoment, A der Einstein A-Koeffizient, ω_0 die Resonanzfrequenz des Übergangs, ϵ_0 die Permittivität des Vakuums, c der Lichtgeschwindigkeit, λ die Wellenlänge des VUV-Lichtes und $g(\omega)$ die Linienformfunktion der Resonanz. Letzteres wird mit einer

Lorentzfunktion abgeschätzt. Das Übergangsdipolmoment kann nach [20] mit

$$\mu_{3D \rightarrow nP} = \langle 3D_{5/2} | z | nP_{3/2} \rangle \approx 0,383 \cdot e \cdot a_0 \cdot n^{-1,588} \quad (5.6)$$

berechnet werden. Dabei ist a_0 der bohrsche Radius, e die Elementarladung und n die Hauptquantenzahl. Das Dipolmoment für die Übergänge $3D \rightarrow nF$ mit den gleichen Hauptquantenzahlen, sind um einen Faktor zehn größer [59]. In der Abbildung 5.13 sind die berechneten Anregungsraten der Rydberg-Resonanzen $22F$, $23P$, $52F$ und $53P$, gegenüber des VUV-Strahlradius gezeigt.

Dabei wurden zum einen Anregungsraten bei denen das Ion im Intensitätsmaximum des VUV-Gaußstrahl liegt, zum anderen für einen um $10\mu\text{m}$ versetzt eingestrahnten VUV-Strahl berechnet. Hierbei wird deutlich, dass eine gute Überlappung des Ion und des VUV-Lichtfeldes nötig ist. Schon ein kleiner Strahlversatz führt zu einem großen Verlust in der Anregungsrate. Zudem muss die Strahlage des VUV-Lichtfeldes eine gute Langzeitstabilität aufweisen.

Kohärente Anregung

Um mit dem Calciumion quantenlogische Operationen durchführen zu können, muss die Rydberganregung kohärent durchgeführt werden können. Dabei spielt die Rabi-Frequenz $\Omega/2\pi = (\mu_{3D \rightarrow nP} \cdot E_0)/\hbar$ auf dem Übergang $3D \rightarrow nP$ eine entscheidende Rolle. Das elektrische Feld ist durch $E_0 = \sqrt{(4P_0)/(\pi \cdot w_0^2 \cdot c \cdot \epsilon_0)}$ gegeben. Betrachtet man den Übergang $3D_{3/2} \rightarrow 53P$ ergibt sich mit den aktuellen im Experiment erreichten Werten für die Leistung $P_0 = 0,6\mu\text{W}$ bei einer VUV-Wellenlänge von $\lambda_{\text{VUV}} = 122,046\text{nm}$ und dem Strahlradius $w_0 = 10\mu\text{m}$, eine theoretisch erreichbare Rabi-Frequenz von $\Omega/2\pi \approx 15\text{kHz}$. Bei Lebensdauern der Rydberg-Niveaus von $\tau = 200\mu\text{s}$, sollte dies ausreichen um kohärente Anregungen nachweisen zu können. Bei dieser Abschätzung wird allerdings ein entscheidender Faktor, die spektrale Linienbreite des VUV-Lichtfeldes, vernachlässigt. Das dies aber ohne weiteres nicht möglich ist, wird in Abschnitt 6.1 näher diskutiert.

5.5 Linienmodell

In den Abbildungen 5.2 und 5.4 wurden Funktionen gezeigt, welche an die gemessenen Rydberg-Resonanzen angepasst wurden. Wie diese Funktion berechnet wird und warum sie das Verhalten der Resonanzen gut beschreibt, soll in diesem Abschnitt diskutiert werden.

Die größten Einflüsse auf die Linienform der Rydberg-Resonanz haben das elektrische Feld, die Bewegung des Ions, das magnetische Feld und natürlich die spektrale Linienbreite des VUV-Lichtfeldes. Während in der ersten Falle (F1) das elektrische Wechselfeld der Antriebsspannung mit der Frequenz Ω als auch die Mikrobewegung des Ion einen großen Einfluss auf die Linienform haben, wird die Resonanz in der zweiten Falle (F2) hauptsächlich durch elektrische Felder von Störladungen auf den Fallenelektroden beeinflusst, da in dieser Falle die Mikrobewegung vernachlässigt werden kann. Die oszillierenden elektrischen Felder führen, wegen der hohen Polarisierbarkeit der Rydberg-Ionen, zu einer

durch den Stark Effekt sowohl verbreiterten als auch verschobenen Resonanz. Das Spektrum besteht daher aus Seitenbändern bei $2n \cdot \Omega$ und durch die Mikrobewegung erhält man durch den Dopplereffekt induzierte Seitenbänder bei $n \cdot \Omega$. Aus diesen Verbreiterungen resultiert eine Linienform welche durch die Gleichung

$$E_{res}(t) \propto e^{-i\omega_0 t} e^{i2\beta_\alpha \Omega t} \cdot \sum_n J_n(\beta_{mm}) e^{in[\Omega t + \frac{1}{2}]} \cdot \sum_m (-1)^m J_m(\beta_\alpha) e^{im2\Omega t}, \quad (5.7)$$

ausgedrückt werden kann. Hier ist ω_0 die Resonanzfrequenz, Ω die Antriebsfrequenz der Falle, $\beta_{mm} = kx_{mm}$ sowie $\beta_\alpha = \alpha E_{geom}^2 / 8\Omega$ die Modulationsindizes der Besselfunktionen J_n und J_m , welche aus der Mikrobewegung respektive dem oszillierenden Stark Effekt herrühren. Dabei ist k der Wellenvektor des VUV-Lichtfeldes in Richtung der Ionenbewegung und x_{mm} die Amplitude der Mikrobewegung. Das oszillierende elektrische Feld E_{geom} ist das elektrische Feld am Ort des Ions und tritt in der ersten Falle (F1) wegen einer Fertigungsungenauigkeit auf und zeigt in die Richtung des VUV-Lichtfeldes. Der zweite Exponent in der Gleichung (5.7) beinhaltet die statische Frequenzverschiebung durch den Stark Effekt, der für F -Zustände immer zu einer Verringerung und bei P -Zuständen zu einer Erhöhung der Resonanzfrequenz führt.

In Abbildung 5.14 a) ist die in Gleichung (5.7) beschriebene Linienfunktion an Messdaten der $52F$ -Resonanz angepasst. Dafür wurde das elektrische Feld am Ort des Ion bestimmt. Für die Messung der blauen Kurve (Kreise) war dieses Feld $E = 24 \text{ V/m}$, bei der roten Kurve (Dreiecke) $E = 84 \text{ V/m}$. Das elektrische Feld am Ort des Ion wurde durch die Verbreiterung des $4S_{1/2} \rightarrow 4P_{3/2}$ Übergangs (393 nm) bestimmt. Für die Fehler wurde das Quantenprojektions Rauschen angenommen, der statistische Fehler welcher bei der Projektion auf die Eigenzustände auftritt. Dieser kann durch $\Delta = \sqrt{(1-p) \cdot p/n}$ ausgerechnet werden, wobei p die Wahrscheinlichkeit des Übergangs und n die Anzahl der Wiederholungen ist. Bei speziell der roten Resonanz fällt die Asymmetrie der Linienform auf. Diese kann durch das komplizierten Zusammenspiel des Doppler- sowie des Stark Effektes erklärt werden. Anschaulich wird dies, wenn man sich beide Effekte im Fallenzentrum sowie bei maximaler Auslenkung der Ionen betrachtet. Im Fallenzentrum ist der Dopplereffekt maximal, wohingegen der Stark Effekt sein Minimum hat. Bei maximaler Auslenkung des Ion ist dies genau umgekehrt. Die Kombination beider Oszillationen führt bei näherer Betrachtung zu einer Asymmetrie der Seitenbandstruktur. Da der Stark Effekt bei beiden Umkehrpunkten des Ions maximal ist, wird zudem die in Gleichung (5.7) doppelte Frequenz 2Ω des oszillierenden Stark Effekt verständlich.

Eine weitere Beobachtung in Abbildung 5.14 a) sind die bei der Messung der Resonanz nicht aufgelösten Seitenbänder. Bei dieser Messung wurde eine Antriebsfrequenz $\Omega_{rf}/2\pi = 3,5 - 5,2 \text{ MHz}$ für die Falle verwendet. Allerdings wird für die thermischen Bewegung der Ionen bei einer Temperatur von $T = 5 \text{ mK}$, der spektralen Breite des VUV-Lichts und dem magnetischen Feld $B = 0,45 \text{ mT}$, zusammen eine Verbreiterung von 10 MHz angenommen. Die Linienform ist somit eine Faltung aus der Gleichung (5.7) und einer Gaußverteilung mit einer

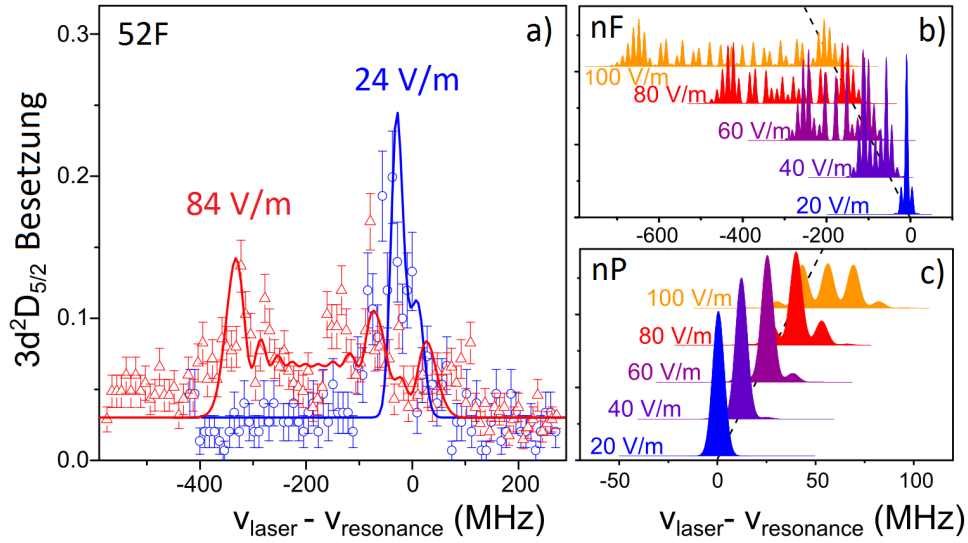


Abbildung 5.14: Anpassung der Linienfunktion an die 52F-Rydberg-Resonanz. Die in a) gezeigten Messdaten wurden in der ersten Falle (F1) aufgenommen. Die aus der Linienfunktion ermittelte Polarisierbarkeit des 52F-Niveaus ist $\alpha/2 = 5_{-3}^{+7} \cdot 10^2 \text{ MHz}/(\text{V}/\text{cm})^2$. Die blaue Kurve (Punkte) wurde mit einem Ion und 150 Messungen pro Frequenz durchgeführt. Bei der roten Kurve (Dreiecke) wurde die Messung mit fünf Ionen und 70 Messungen pro Frequenz durchgeführt. Die Asymmetrie der Kurve folgt aus dem Zusammenspiel aus Doppler- und Stark Effekt (siehe Text). Der Fehlerbalken zeigt das Quantenprojektions Rauschen. In b) sind berechnete Linienverbreiterungen für den $3D_{3/2} \rightarrow 52F$ Übergang gezeigt. Dabei wurde der Dopplereffekt vernachlässigt. In c) sind die gleichen Berechnungen, aber für den $3D_{3/2} \rightarrow 52P$ Übergang ausgeführt. Bild in [61] veröffentlicht.

Breite von $\sigma = 10 \text{ MHz}$ was dazu führt, dass die Seitenbänder nicht aufgelöst sein können. Hierbei wurde die Temperatur T durch die Dopplerverbreiterung des $4S_{1/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ Übergangs und das Magnetfeld B durch die Zeemanaufspaltung des $4S_{1/2} \rightarrow 3D_{5/2}$ Übergangs gemessen. Die gemessenen Resonanzen werden gut durch die Linienform beschrieben. Durch die Anpassung der Linienform an die Daten, kann zudem noch die Polarisierbarkeit α des angeregten Zustandes bestimmt werden. Für die 52F-Resonanz erhält man somit einen experimentellen Wert von, $\alpha/2 = 5_{-3}^{+7} \cdot 10^2 \text{ MHz}/(\text{V}/\text{cm})^2$. Dies ist in guter Übereinstimmung mit dem experimentell erwarteten Wert von $\alpha_{53F}/2 \approx 4,57 \cdot 10^2 \text{ MHz}/(\text{V}/\text{cm})^2$ (siehe Abschnitt 2.2).

In Abbildung 5.14 b) ist die berechnete Linienform des $3D_{3/2} \rightarrow 52F$ Übergangs in der zweiten Falle (F2) dargestellt. Da wie schon erwähnt die Mikrobewegung vernachlässigt werden kann, fällt hier die Symmetrie der Kurve auf. Ein größeres elektrisches Feld führt zu einer stärkeren Linienverbreiterung sowie zu einer Verschiebung der Resonanz zu größeren Frequenzen. In Abbildung 5.14 c) ist die berechnete Linienform für den $3D_{3/2} \rightarrow 52P$ Übergang ausgeführt. Hierbei wird

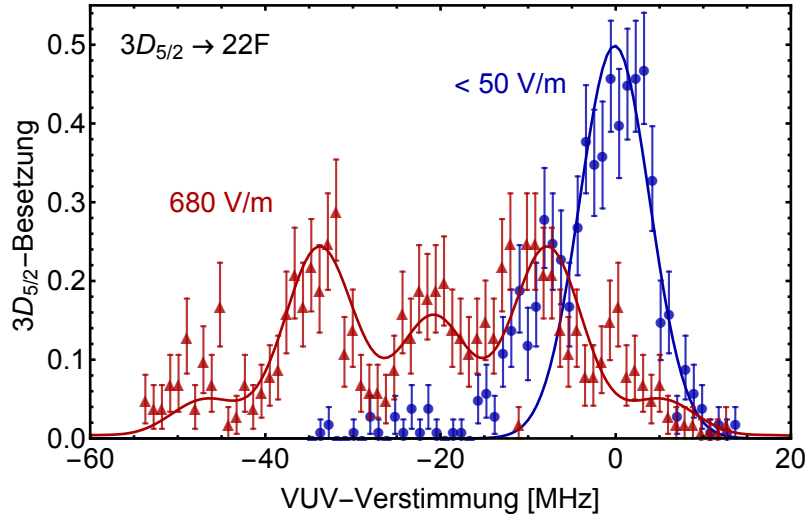


Abbildung 5.15: Anpassung der Linienfunktion an die 22F-Rydberg-Resonanz. Die Messwerte wurden in der zweiten Falle (F2) aufgenommen. Die gemessenen elektrischen Felder am Ort des Ions sind bei optimaler Kompensation der Falle < 50 V/m (blau, Punkte) und bei der roten Kurve (Dreiecke) $< 680(30)$ V/m. Dazu wurde das Ion aus dem Fallenmittelpunkt in das elektrische Feld der Falle ausgelenkt. Die Polarisierbarkeit α der 22F-Resonanz konnte mit dieser Messung zu $\alpha_{22F}/2 = 0,9(2)$ MHz/(V/cm)² bestimmt werden. Da diese Messung in der zweiten Falle (F2) durchgeführt wurden, kann die Mikrobewegung vernachlässigt werden. Die Fehlerbalken zeigen das Quantenprojektions Rauschen.

zum einen deutlich, dass die Verschiebung der Resonanz zu höheren Frequenzen stattfindet, was aus der Polarisierbarkeit $\alpha_{52P}/2 = -37$ MHz/(V/cm)² [119] der P-Zustände folgt. Neben der kleineren Polarisierbarkeit führt aber auch die längere Lebensdauer zu einer schmalen Resonanz.

In Abbildung 5.15 ist eine Messung der $3D_{5/2} \rightarrow 22F$ Resonanz dargestellt. Auch an diese Messwerte wurde die Linienform aus der Gleichung (5.7) angepasst. Da diese Messung in der zweiten Falle (F2) durchgeführt wurde, ist die Mikrobewegung hier ebenfalls vernachlässigt. Um eine durch den Stark Effekt verbreiterte Resonanz zu erhalten, wurde eine Spannung an die Kompensationselektrode angelegt und somit das Ion bei der roten Kurve (Dreiecke) aus dem Fallenzentrum ausgelenkt. Am Ort des Ion wurde ein elektrisches Feld von $E = 680(30)$ V/m gemessen. Die Falle wurde für diese Messung bei einer Antriebsfrequenz von $\Omega_{rf}/2\pi = 6,5$ MHz betrieben. Bei optimaler Kompensation (blaue Kurve, Punkte), ist das Feld am Ion < 50 V/m. Auch bei diesen Messungen gelingt es nicht, die Seitenbandstruktur aufzulösen was ebenfalls an der thermische Bewegung, spektralen Breite des VUV-Lichtes und am Magnetfeld liegt. Die angepasste Linienform aus dem Modell passt gut zu den gemessenen Werten und man erhält die experimentell ermittelte Polarisierbarkeit von $\alpha_{22F}/2 = 0,9(2)$ MHz/(V/cm)². Dieser Wert passt gut zu dem theoretisch erwarteten Wert der Polarisierbarkeit von $\alpha_{22f}/2 = 1$ MHz/(V/cm)².

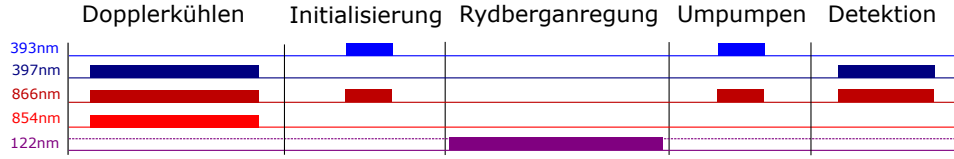


Abbildung 5.16: Messsequenz für die Anregung und Detektion der Rydberganregung $3D_{5/2} \rightarrow 22F$ in der neuen Falle. Nach dem Dopplerkühlen wird das Ion in den $3D_{5/2}$ -Zustand initialisiert. Von dort regt man die Ionen mit dem eingestrahlichten VUV-Licht in das $22F$ -Niveau an. Um den Untergrund der Messung zu verringern wird die Grundzustandsbesetzung nach der Rydberganregung mit einem 393 nm Puls umgepumpt. Bei der Detektion wird die Besetzung des $3D_{3/2}$ -Zustands gemessen.

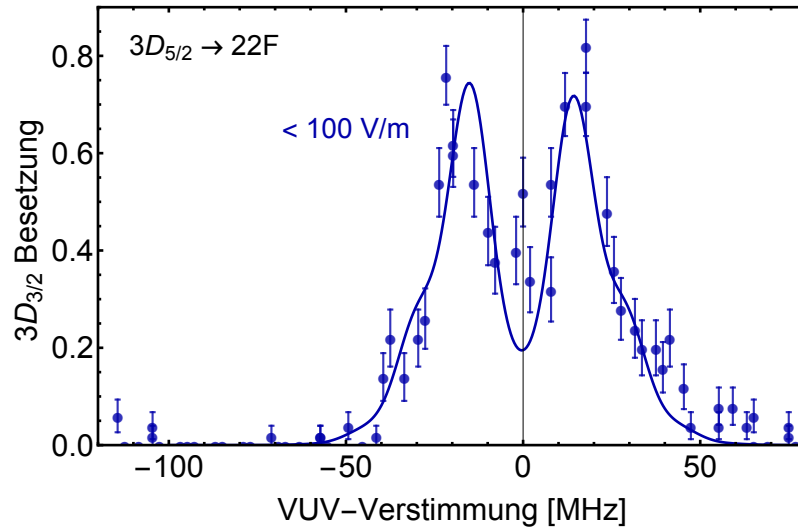


Abbildung 5.17: Anpassung der Linienfunktion an die $22F$ -Rydberg-Resonanz in der neuen Falle (F3). Das elektrische Feld wurde auf $<100(20) \text{ V/m}$ abgeschätzt. Die Polarisierbarkeit wurde von den alten Messungen als $\alpha_{22F}/2 = 0,9(2) \text{ MHz}/(\text{V/cm})^2$ übernommen. Die Resonanzfrequenz des Übergangs liegt bei $\nu_{22F} = 123.256122(5) \text{ nm}$. Für die Verbreiterung durch die Temperatur, das Magnetfeld und die Laserlinienbreite wurde $\sigma_7 = 6 \text{ MHz}$ angenommen. Die Fehlerbalken zeigen auch hier das quantenprojektions Rauschen.

5.6 Rydberganregung in der neuen Falle (F3)

In der neuen Falle F3 konnte die Anregung in den $22F$ -Zustands reproduziert werden. Da die Möglichkeit der kohärenten Initialisierung noch nicht implementiert wurde, kann das Ion nicht in einzelne Zeeman-Niveaus initialisiert werden. Die daher verwendete Messsequenz ist in der Abbildung 5.16 dargestellt. Das Ion wird durch optisches Pumpen in den $3D_{5/2}$ -Zustand initialisiert. Da in dieser Sequenz das $3D_{3/2}$ -Niveau nur durch den Zerfall eines Rydberg-Zustands besetzt sein kann, wird eine erfolgreiche Rydberganregung durch ein Fluoreszenzsignal detektiert.

Erste Abschätzungen zeigen, dass der Strahlradius des VUV-Strahls am Ort des Ions zur Zeit $\approx 10\,\mu\text{m} - 20\,\mu\text{m}$ beträgt. Bei den bisherigen Messungen der Rydberganregung wurde die Position des VUV-Fokus nicht in das Zentrum der Falle gelegt. Der größere VUV-Strahlradius am Ort des Ions von $\approx 30\,\mu\text{m} - 40\,\mu\text{m}$ erleichterte die Ausrichtung des VUV-Strahls.

Zusammen mit der um einen Faktor ≈ 5 höheren VUV-Leistung (siehe Kapitel A) sollte nun also eine $\approx 10 - 80$ mal höhere Anregungsrate erreicht werden. In der gezeigten Messung konnte die VUV-Pulsdauer von ehemals $1,5\,\text{ms}$ auf $20\,\mu\text{s}$ verringert werden, was einer um den Faktor 75 gesteigerten Anregungsrate entspricht. Da bisher allerdings nur sehr wenige Messdaten vorliegen, wird dies an dieser Stelle nur als vorläufige und sehr grobe Abschätzung erwähnt. Es zeigt allerdings, dass die Verbesserung des VUV-Lasersystems erfolgreich war.

In Abbildung 5.17 wurde das Linienmodell (siehe Abschnitt 5.5) an die Messpunkte angepasst. Dabei ist die VUV-Verstimmung bzgl. der Resonanzfrequenz ν_{22F} , gegenüber der Besetzung des $3D_{5/2}$ -Zustandes aufgetragen. Die Resonanzfrequenz des Übergangs $3D_{5/2} \rightarrow 22F$ liegt bei

$$\nu_{(3D_{5/2} \rightarrow 22F)} = 123,256122(5)\,\text{nm} \quad (5.8)$$

und stimmt in den Fehlergrenzen mit der in Falle F2 gemessenen Wellenlänge überein. Der Fehler setzt sich aus der Messgenauigkeit des Wellenlängenmessgerät ($10\,\text{MHz}$ für die IR-Lichtfelder) sowie aus der Ungenauigkeit beim Anpassen des Linienmodells zusammen. Das elektrische Feld am Ort des Rydberg-Ionen wurde zu $< 100(20)\,\text{V/m}$ abgeschätzt. In dieser Falle konnte die Mikrobewegung bisher nicht kompensiert werden, weshalb auch diese in dem Linienmodell berücksichtigt wurde.

Bei dieser Messung wurde eine Antriebsfrequenz von $\Omega_{rf}/2\pi = 14,6\,\text{MHz}$ verwendet und die Fallenfrequenzen wurden zu $\omega_{ax,rad}/2\pi = (555,1310)\,\text{kHz}$ bestimmt. Jeder Messpunkt setzt sich aus 50 Messzyklen zusammen.

Sowohl das hohe elektrische Feld am Ort des Ion als auch die noch existierende axiale Mikrobewegung, weisen auf eine noch nicht optimierte Kompensierung der Fallenfelder hin. Das ebenfalls noch nicht verwendete Seitenbandkühlen führt zu einer relativ großen Linienbreite. Zudem sollte eine kleinere Antriebsfrequenz gewählt werden, um die Linienbreite zu verringern.

AUSBLICK

6.1 Kohärente Rydberganregung mit VUV-Licht

Bei der Betrachtung der Rabi-Frequenzen ist es wichtig, die spektrale Linienbreite des Laserfeldes zu beachten. Die spektrale Linienbreite des VUV-Lichtfeldes wurde auf $\nu_{\text{VUV}} \approx 1 \text{ MHz}$ abgeschätzt. In der Tabelle 6.1 sind die Rabi-Frequenzen für den $3D_{3/2} \rightarrow 53P$ Übergang zusammengetragen, die durch Anpassen der VUV-Leistung sowie der VUV-Fokusgröße erreicht werden können. Mit der maximal erreichten VUV-Leistung von $7,3 \mu\text{W}$ (@ $122,046 \text{ nm}$) und einer VUV-Fokusgröße von $1 \mu\text{m}$ wird eine Rabi-Frequenz von $\Omega/2\pi = 530 \text{ kHz}$ möglich.

Tabelle 6.1: Berechnete Rabi-Frequenzen $\Omega/2\pi$ für die kohärente Rydberganregung auf dem $3D_{3/2} \rightarrow 53P$ Übergang. Es sind die für unterschiedliche VUV-Leistung und VUV-Fokusgröße erreichbaren Rabi-Frequenzen zusammengetragen. Hierbei wurde eine schmale spektrale Linienbreite des VUV-Lichtfeldes angenommen.

Fokusgröße	Leistung	0,6 μW	7,3 μW
10 μm		15 kHz	50 kHz
1 μm		150 kHz	530 kHz

In diesem Fall ist die spektrale Linienbreite des VUV-Lichtfeldes ($\approx 1 \text{ MHz}$) größer als die Rabi-Frequenz (530 kHz). Das führt zu einer Dephasierung und damit zu einer Dämpfung der Rabi-Oszillation. In diesem Fall können keine kohärenten Anregungen durchgeführt werden. Deutlich wird dies, wenn man die Zeitspanne eines π -Pulses ($\tau_\pi = 0,9 \mu\text{s}$) bei einer Rabi-Frequenz von $\Omega/2\pi = 530 \text{ kHz}$, mit der Kohärenzlänge des Lichtes ($\tau_{\text{VUV}} = 1 \mu\text{s}$) vergleicht.

Wird die Linienbreite des VUV-Lichtfeldes jedoch auf $\ll 500 \text{ kHz}$ verringert, kann sie für kurze Pulse vernachlässigt werden. In diesem Fall wird die Linienbreite durch die Fourierlimitierung des VUV-Pulses dominiert. Bei einer Linienbreite des VUV-Lichtfeldes von 100 kHz, einer Leistung von $10 \mu\text{W}$ sowie einer Fokusgröße von $1 \mu\text{m}$ sollten somit kohärenter Populationstransfer mithilfe von π -Pulse durchführbar sein.

6.1.1 Verringerung der Linienbreiten

Wie bereits in Kapitel 3 und 6.1 erwähnt wurde, ist es für eine kohärente Rydberganregung und damit für die Durchführung von Quantenprozessen notwendig, eine möglichst schmale ($\approx$ kHz) spektrale Linienbreite des VUV-Lichtfeldes zu erreichen. Die einzige Möglichkeit dies zu erreichen ist, die spektralen Linienbreiten der fundamentalen Lichtfelder weiter zu verringern.

Der Ausgangspunkt des UV Lasersystems (254 nm) als auch des gelben Lasersystems (580 nm) ist ein selbst entwickelter Laserdiodenaufbau. Um die Linienbreite intrinsisch zu verringern, sollte dieser Aufbau möglichst monolithisch sein. Eine Idee wie die verbessert werden kann, ist in der Arbeit von Cook et al. gegeben. Mit deren Laserdioden-Design konnten Linienbreiten von um die 10 kHz erreicht werden [120]. Ebenfalls Linienbreiten unter < 20 kHz konnten Kirilov et al. erreichen [121]. Im grüne Lasersystem (555 nm) könnte die Toptica-Laserdiode durch optisches Feedback stabilisiert werden. So konnten Samutpraphoot et al. die Linienbreite eines DL-Pro auf 2 kHz verringern [122]. Somit könnte es zudem eine gute Idee sein, das bisherige 1015 nm-Laserdiodensystem durch ein kommerzielles System von Toptica zu ersetzen.

Des weiteren muss die Regelelektronik der aktiven Frequenzstabilisierung optimiert werden. Der Stabilisierungs-Regelkreis benötigt mehr Verstärkung bei kleinen Frequenzen (< 1 MHz), ohne dass dabei der Regelkreis aufschwingt. Wie schon erwähnt kann das mit einem Phasenschieber gelingen [98], der das bisherige Aufschwingen des Regelkreises verhindert.

Des weiteren sollte der Referenzresonator überarbeitet werden. Für eine bessere Frequenzstabilität der fundamentalen Lichtfelder sollte der Resonator keine Piezoaktoren an den Spiegeln besitzen, die Temperatur sollte aktiv stabilisiert werden, der Resonator sollte besser von externen Schwingungen entkoppelt werden und die Finesse sollte deutlich erhöht werden.

Bei dem blauen Lasersystem (408 nm) sollte es ausreichen den Ti:Sa-Laser auf einen Resonator mit einer höheren Finesse zu stabilisieren. Sowohl die in der Arbeitsgruppe durchgeführten ersten Versuche [87], also auch die Messungen von T. Macha [88] zeigen, dass Linienbreiten von < 1 kHz erreicht werden können.

6.1.2 Verringerung der VUV-Fokusgröße

Um die Rabi-Frequenzen der kohärenten Rydberganregung zu erhöhen, kann die VUV-Intensität gesteigert werden. Dazu sollte die Quarzlinse vor der Quecksilberdampfzelle für alle drei fundamentalen Lichtfelder gegen Reflexionen beschichtet werden. Die Intensität kann so um $< 20\%$ gesteigert werden.

Da zur Zeit keine andere großen Leistungssteigerungen bei den fundamentalen Lichtfeldern möglich ist, kommt als weitere Möglichkeit nur die Verringerung der VUV-Fokusgröße am Ort der Ionen in Frage. Die Auswirkung auf die kohärente Rydberganregung wird in Abschnitt 6.1 abgeschätzt, und führt zu einer deutlich höheren Anregungswahrscheinlichkeit mit Rabi-Frequenzen $\Omega/2\pi > 600$ kHz.

Wie ausführlich in Abschnitt 3.7.1 diskutiert wurde, ist die Verringerung der Fokusgröße auf Grund der sphärischen Aberration nicht ohne weiteres möglich.

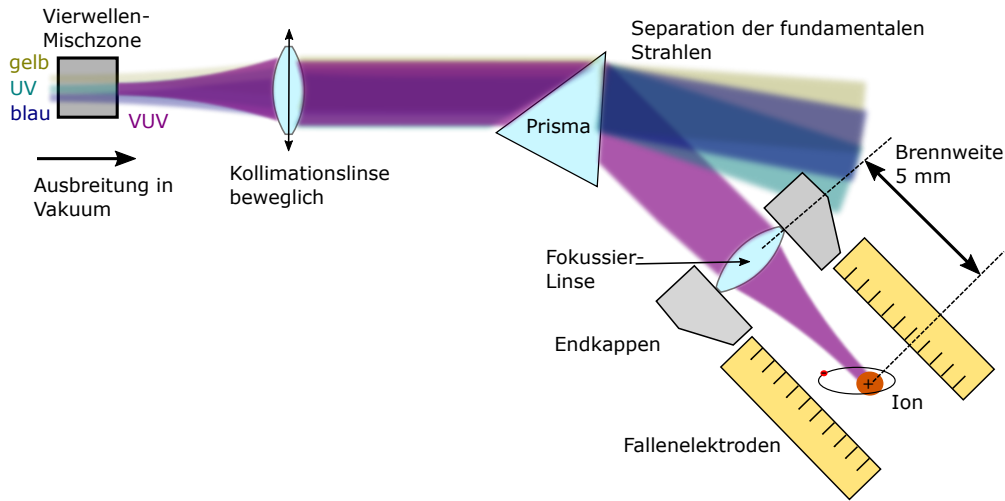


Abbildung 6.1: Skizzierter VUV-Strahlengang mit Prisma. Um eine VUV-Fokusgröße von $1\ \mu\text{m}$ am Ort des Ion zu erreichen, kann eine Fokussierlinse mit sehr kleiner Brennweite verwendet werden. Zudem darf der Durchmesser des VUV-Strahl auf dieser Linse nur sehr klein sein $\ll 1\ \text{mm}$. Wenn für die Strahlseparation ein MgF_2 -Prisma verwendet wird, dann kann der VUV-Strahl bereits direkt nach der Vierwellen-Mischzone auf den gewünschten Strahlradius kollimiert werden. Die Fokussierlinse muss in den Endkappen platziert werden. Daher muss die Ausrichtung des VUV-Strahles mit der Kollimationslinse durchgeführt werden, die dafür beweglich befestigt wird.

Um sphärische Aberration zu verhindern ist es die beste Wahl eine asphärische Linse zu verwenden. Bei einem Lichtfeld im VUV-Spektrum sollte als Substrat MgF_2 verwendet werden um die Absorption des VUV-Lichtfeldes zu minimieren. Jedoch ist die Auswahl an Herstellern die eine asphärische MgF_2 -Linse anbieten sehr begrenzt.

Sollte es daher nicht möglich sein eine asphärische MgF_2 -Linse zu erwerben, kann alternativ eine sphärische MgF_2 -Linse mit einer Brennweite von $f = 5\ \text{mm}$ verwendet werden um eine VUV-Fokusgröße von $w_{\text{VUV}} = 1\ \mu\text{m}$ am Ort der Ionen zu erreichen. Der VUV-Strahl sollte dabei eine Größe auf der Linse von $190\ \mu\text{m}$ nicht überschreiten.

Hierbei treten jedoch zwei Herausforderungen auf. Die erste Schwierigkeit besteht darin, einen möglichst kollimierten VUV-Strahl auf der Fokussierlinse mit der Größe von $190\ \mu\text{m}$ zu erreichen, ohne auf dem Strahlweg eine schlechte Strahlqualität aufzusammeln. Dies könnte erreicht werden, indem die Strahlseparation der fundamentalen Strahlen mit einem Prisma anstelle einer Nadel durchgeführt wird. Dies wurde in der Arbeit von A. Koglbauer [42] bereits erfolgreich durchgeführt. So wird es möglich, schon sehr nahe an der Vierwellen-Mischzone eine Kollimationslinse zu platzieren. Der VUV-Strahl kann so auf die gewünschte Größe kollimiert werden, ohne dabei den Strahlparameter zu verschlechtern. Die fundamentalen Strahlen werden durch das Prisma aussortiert, und müssen daher nicht weiter beachtet werden. Die zweite Herausforderung ist

die Fokussierlinse vor der Falle. Mit einer Brennweite von $f = 5$ mm müsste die Linse in die vordere Endkappe integriert werden. Die VUV-Strahlage müsste dann mit der vorderen Kollimationslinse durchgeführt werden, wobei mit dieser Linsenordnung nur noch die Brennweite eingestellt werden müsste. Eine Skizze des hier beschriebenen Aufbaus ist in Abbildung 6.1 gegeben. Die VUV-Verluste sollten bei diesem Aufbau nicht viel größer sein, als die Verluste in dem momentanen Aufbau. So verschwinden die Verluste durch die Separationsnadel sowie die dritte MgF_2 -Linse, dafür erhält man zusätzliche Verluste durch das Prisma. Die zusätzlichen Verluste können durch die Wahl der Dicke des Prismas sowie dessen Ausrichtung minimiert werden.

6.1.3 Überlagerung der fundamentalen Lichtfelder

Um die großen Fluktuationen der Mischeffizienz und somit der VUV-Leistung zu verringern (siehe Abschnitt 3.6.2), bietet es sich an eine automatisierte Strahlagestabilisierung zu verwenden. Diese wird dabei für jedes fundamentale Lichtfeld benötigt, und sie sollte aus zwei Stufen bestehen.

Die erste Stufe, welche bereits in Entwicklung ist, sollte direkt nach den Frequenzverdopplungen und noch vor den Teleskopen errichtet werden. Diese Stufe ist hauptsächlich dafür konzipiert, den Strahlversatz zu kompensieren, der bei einer durchgeführten Justage an den Verdopplungsresonatoren auftritt. Somit wird hier ein großer Hub, jedoch keine Schnelligkeit (Hz) benötigt.

Die zweite Stufe muss direkt vor der Vierwellen-Mischzone errichtet werden. Dafür wird der bisher eine verwendete Piezospiegelhalter durch zwei Piezospiegelhalter ersetzt werden. Diese Stufe soll vor allem auch schnelle Fluktuationen (kHz) der Strahlage korrigieren, aber auch die Überlagerung der fundamentalen Lichtfelder optimieren. Für diese Stufe ist ein kommerzielles System geplant.

Durch diese Verbesserung soll in Zukunft vor allem die Überlagerung der fundamentalen Lichtfelder deutlich genauer optimiert werden können, und auch eine langzeitstabile Überlagerung garantiert werden.

6.1.4 Das VUV-Lichtfeld schalten

Die Möglichkeit das VUV-Licht schnell schalten zu können, bringt viele Verbesserungen bei der Messung von Rydberganregung.

Es wurde sowohl in Falle F2 und F3 bemerkt, dass sich die Fallenelektroden durch langes einstrahlen von VUV-Licht langsam aufladen. Das führt dazu, dass das Ion ein verändertes elektrisches Feld sieht. Somit muss die Kompensation regelmäßig überprüft und angepasst werden. Durch die Möglichkeit das VUV-Licht zu schalten, wäre dieses Problem vernachlässigbar.

Des Weiteren können bei den bisher durchgeführten Rydberg-Sequenzen, die Ionen auch während den Initialisierungs- sowie Auslesepulsen in ein Rydberg-Zustand angeregt werden. Dies führt zu verfälschten Messungen, wie es in der im Abschnitt 5.2.2 vorgestellten selektiven Rydberganregung deutlich zu sehen ist. Des Weiteren konnte bei höherer VUV-Leistung eine Sättigung und damit Verbreiterung der Rydberg-Resonanzen nicht mehr verhindert werden.

Die benötigte Zeit für die Initialisierung- und Auslese der Ionenzustände war hier ausreichend, um den Übergang zu sättigen.

Eine weitere Idee ist, die VUV-Pulse mit der Fallenantriebsfrequenz zu synchronisieren. Somit könnte die bei der Spektroskopie die, bedingt durch den oszillierenden Stark-Effekt, auftretende Linienverbreiterung verkleinert werden. Um den VUV-Strahl zu schalten, soll ein elektrooptischer Modulator (LM 0202 VIS, LINOS) in den blauen fundamentalen Strahl implementiert werden. Bedingt durch die kleine Apertur (3×3 mm) des EOM, wird dafür ein Teleskop benötigt in dessen Fokusposition der EOM platziert werden muss. Dies erfordert einen großen Eingriff in den bisherigen Aufbau der Strahlformung.

6.1.5 Optimierung der self-heterodyne Messmethode

Im Abschnitt 3.5.2 wurde die self-heterodyne Methode für die Bestimmung der spektralen Linienbreite eines kohärenten Lichtfeldes vorgestellt. Die Genauigkeit dieser Methode wird durch die Faserlänge limitiert, wenn diese kürzer als die Kohärenzlänge des Lichtes ist. Bei einer spektralen Linienbreite von $\Delta\nu < 10$ kHz ist die Kohärenzlänge > 20 km. Damit die Linienbreite also nicht unterschätzt wird, muss die Verzögerungsstrecke ebenfalls länger als 20 km sein. Zum einen kann dies durch eine ebenso lange Faser umgesetzt werden. Dies wird aber vor allem bei Linienbreiten < 1 kHz (entspricht einer Kohärenzlänge von > 200 km) sehr unpraktisch. Alternativ kann ein Mehrfachdurchgang durch eine kurze Faser realisiert werden [123]. In Abbildung 6.2 ist eine Skizze des Aufbaus gezeigt, bei dem das Licht aus der Verzögerungsfaser zurück in den AOM gekoppelt wird. Der AOM transmittiert ein Teil des verzögerten Lichtes für die Überlagerung am Spektrumanalysator, wohingegen der andere Teil wieder eine Frequenzverschiebung erfährt und zum wiederholten male durch die Faser verzögert wird.

Das aufgenommene Spektrum besteht aus vielen Resonanzen, die jeweils bei $n \cdot \Delta f_{\text{AOM}}$ liegen. Dabei ist n die Anzahl der Durchgänge durch die Verzögerungsfaser und Δf_{AOM} die durch den AOM induzierte Frequenzverschiebung. So wird es möglich, die Linienbreite für verschiedene Verzögerungsstrecken getrennt zu betrachten. Durch die hohen Verluste bei der Fasereinkopplung, dem Durchgang durch die Faser sowie durch den AOM ist aber auch diese Messmethode limitiert. Diese Limitierung kann umgangen werden, indem das Licht nach der Verzögerungsstrecke verstärkt wird. Mit dieser Methode konnten X. Chen et al., unter Verwendung einer 25 km Verzögerungsfaser, die spektrale Linienbreite eines Lichtfeldes von $\Delta\nu < 1$ kHz vermessen [124]. In deren Messung wird zudem deutlich, dass die gemessene Linienbreite konvergiert, wenn die Verzögerungsstrecke ungefähr die Kohärenzlänge erreicht hat. Somit ist diese Methode sehr vielversprechend, um in Zukunft die spektrale Linienbreite der Lichtfelder mit einer höheren Genauigkeit zu messen.

Für die ersten Versuche könnte ein TA als Verstärker eingesetzt werden. Der Aufbau ist zwar einfach und kostengünstig, jedoch könnte sich durch den Halbleiterchip die spektrale Linienbreite merklich verbreitern. Das kann dazu führen, dass die gemessene Linienbreite trotz einer Verzögerungsstrecke mit einer Länge vergleichbar der Kohärenzlänge nicht konvergiert.

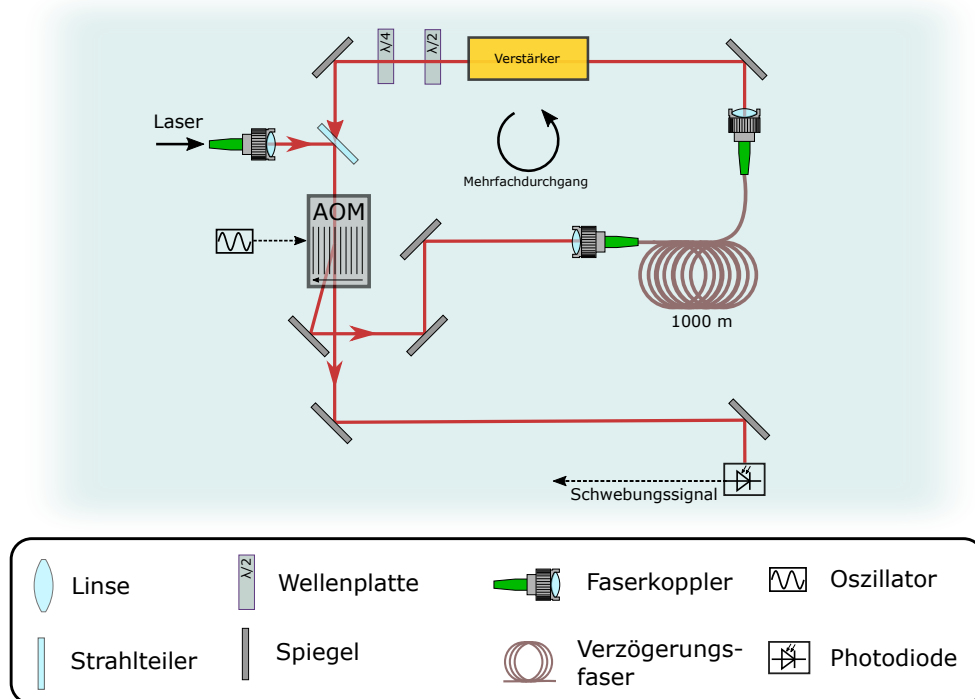


Abbildung 6.2: Self-heterodyne Messmethode mit Rückkopplung.

Das Licht aus der Verzögerungsfaser wird zurück in den AOM gekoppelt. Ein Teil dieses Lichtes wird zum wiederholten mal in die Verzögerungsfaser gekoppelt. Das Spektrum des Schwebungssignals besteht daher aus vielen Resonanzen, wobei jede Resonanz zu einer bestimmten Länge der Verzögerungsstrecke gehört.

Eine Alternative zu der Verwendung eines TAs, könnte der Aufbau eines Faserverstärkers sein. Um möglichst wenige Faserkopplungen zu haben, wäre es hilfreich den Faserverstärker direkt an die Verzögerungsfaser anzusplicein. Das für den Faserverstärker benötigte Pumplicht, könnte über einen Pump-Signal-Koppler eingekoppelt werden. Ein Faserverstärker unter Verwendung eines Pump-Signal-Koppler wurde in der Arbeitsgruppe bereits realisiert [125].

6.2 Spektroskopie der Rydberg *P*-Linien

Im Rahmen dieser Arbeit wurden nur Rydberg *F*-Zustände angeregt, die sich vor allem wegen der großen Übergangsmatrixelemente aus den *3D*-Zuständen für Spektroskopie-Messungen eignen. Für zukünftige quantenlogische Operation haben die Rydberg *P*-Zustände allerdings deutliche Vorteile. Bedingt durch die längeren Lebensdauern und die geringere Polarisierbarkeit der *P*-Zustände, haben diese Rydberg-Resonanzen eine deutlich kleinere Linienbreite. Dies wird nochmals in Abbildung 6.3 verdeutlicht, in der berechnete Linienformen von Rydberg-Resonanzen für *F*-Zustände mit den von *P*-Zuständen verglichen werden.

Da die Polarisierbarkeit mit $\alpha \propto n^7$ skaliert, sind Rydberg-Resonanzen mit einer

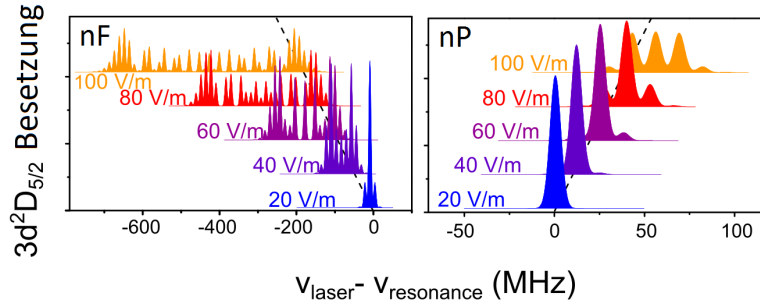


Abbildung 6.3: Berechnete Linienform von Rydberg-Resonanzen.

Hierbei ist die Verstimmung des VUV-Lichtfeldes, bezüglich der gemessenen Rydberganregung aufgetragen. Bedingt durch das Vorzeichen der Polarisierbarkeit α werden die F -Zustände im Gegensatz zu den P -Zuständen, bei höheren elektrischen Feldern zu negativen Frequenzen verschoben. Die Seitenbandstruktur kommt durch den oszillierenden Stark Effekt. Bild aus [61].

kleinen Hauptquantenzahl deutlich unempfindlicher gegenüber elektrischen Feldern. Somit macht es Sinn zuerst den $23P$ -Zustand zu suchen, und daraus den Quantendefekt zu bestimmen. Mit dem Wissen des Quantendefektes gestaltet sich die Suche des $53P$ -Zustandes deutlich einfacher. Aus der Theorie wird ein Quantendefekt von $\delta_P = 1,44$ erwartet (siehe (2.22)). Allerdings führt schon eine Abweichung des Quantendefektes von $\Delta\delta = 0,01$, zu einer Verschiebung der Resonanzfrequenz um $\Delta\nu \approx 28$ GHz, weshalb das gewählte Suchintervall auf 60 GHz festgesetzt wurde. Unter Verwendung der Rydberg-Formel (5.3) und der experimentell ermittelten Ionisationsenergie $E_I = 95752 \text{ cm}^{-1}$ (Tabelle 5.2) kann die Wellenlänge der Rydberg-Resonanz auf $\lambda_{3D_{3/2} \rightarrow 23P} = 123,217(1) \text{ nm}$ abgeschätzt werden.

Die Anregungsrate für die $23P$ -Resonanz ist zwar ungefähr um einen Faktor 10 schwächer als für die $22F$ -Resonanz aber in Tabelle 3.3 ist aufgeführt, dass die VUV-Effizienz dort um einen Faktor 25 höher ist. Somit sollte die Resonanzlinie ohne Probleme zu finden sein.

6.3 Digitaler Fallenantrieb

In der Einleitung wurde die Kopplung zweier benachbarter Rydberg-Niveaus durch ein Mikrowellenfeld erwähnt. Bei geschickter Wahl der Zustände sowie der Mikrowellenparameter, kann sich die Polarisierbarkeit des gekoppelten Zustands dabei aufheben. Somit wird die Linienverbreiterung durch den oszillierenden Stark-Effekt verhindert. Eine andere Idee den Einfluss der elektrischen Fallenfelder zu minimieren ist die Verwendung eines digitalen Fallenantriebs. Dabei wird der bisher sinusförmige Fallenantrieb der für den Einschluss der Ionen sorgt, durch einen Stufenförmigen Fallenantrieb ersetzt. In Abbildung 6.4 ist die Stufen-Funktion gegenüber der Zeit aufgetragen. Dabei fällt bei der dreistufigen Funktion der Bereich mit einem verschwindendem elektrischen Feld auf. Die Idee ist es, nur in diesem Zeitintervall die Rydberganregungen durchzuführen. So erfährt das Ion während der Anregung keinen elektrisches Feld. In

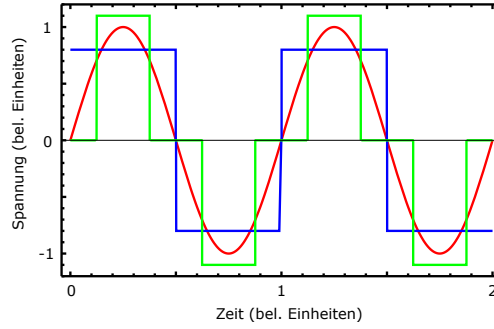


Abbildung 6.4: Digitaler Fallenantrieb. Hierbei ist die RF-Spannung gegenüber der Zeit aufgetragen. Die rote Kurve zeigt den typischerweise verwendeten sinusförmigen Fallenantrieb. Die blaue Kurve zeigt den zweistufigen- und die grüne Linie den dreistufigen digitalen Fallenantrieb. Bild aus [59].

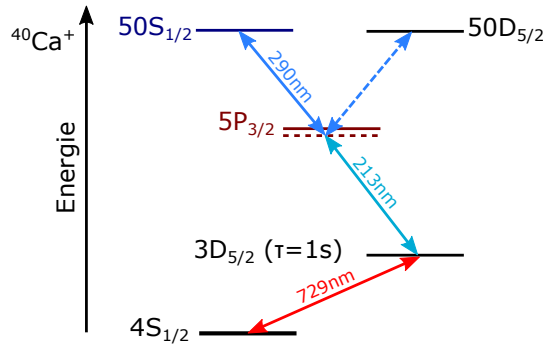


Abbildung 6.5: Zwei-Photon Rydberganregung. Es ist ein auf die verwendeten Energieniveaus reduziertes Energieschema von Calcium gezeigt. Für eine Zwei-Photon Rydberganregung wird das $5P_{3/2}$ -Niveau als Zwischen-Niveau verwendet. Die benötigten Wellenlängen um in das $50S_{1/2}$ -Niveau anzuregen sind 213 nm sowie 290 nm.

der Arbeitsgruppe wurden an der zweiten Falle (F2) bereits erste Versuche mit einem digitalen Fallenantrieb durchgeführt. Die Ergebnisse zeigen, dass es mit einem digitalen Fallenantrieb möglich ist Ionen stabil einzuschließen [105].

6.4 Zwei-Photon Rydberganregung

Ein alternativer Ansatz zu der im vorgestellten Experiment verwendeten Ein-Photon Rydberganregung ist die Zwei-Photon Anregung, wie sie beispielsweise von Hennrich et al. verwendet wird [21,22]. Um $^{40}\text{Ca}^+$ in das $50S_{1/2}$ - bzw. das $50D_{5/2}$ -Niveau anzuregen, werden kohärente Lichtfelder mit Wellenlängen bei 213 nm und 290 nm benötigt. Dabei wird der $5P_{3/2}$ -Zustand ausgenutzt, sodass eine adiabatische Anregung möglich wird [15]. In Abbildung 6.5 ist ein Term-schemata von $^{40}\text{Ca}^+$ gezeigt, bei dem die benötigten Übergänge mit den jeweiligen Wellenlängen eingezeichnet sind. Bei den benötigten Wellenlängen können kommerziell bereits starke Lichtquellen erworben werden (213 nm 25 mW, 290 nm

100 mW). Mit dieser Leistung können Rabi-Frequenzen auf dem Rydberg-Übergang von $\Omega/2\pi = 14$ MHz erreicht werden [59]. Somit ist dieser Ansatz vielversprechend um schnelle kohärente Anregungen durchführen zu können. Der deutliche Nachteil gegenüber dem bisher verwendeten Anregungsschema ist die Unerreichbarkeit der P -Zustände. Diese weisen jedoch viel längere Lebensdauern auf [58] und sind daher besser für die Durchführung von quantenlogischen Operationen geeignet.

LEISTUNGSSTEIGERUNG DER FUNDAMENTALEN LICHTFELDER

In den Kapiteln 3.1, 3.2, 3.3 und 3.4 wurden die Lasersysteme der fundamentalen Lichtfelder beschrieben, sowie die mit dem jeweiligen System zu erreichende maximale Leistung genannt. Zudem wurde in Kapitel 3.1 die Optimierung des UV-Lasersystems durch einen neuen Faserverstärker sowie eine verbesserte Frequenzverdopplung beschrieben. Mit diesen Verbesserungen sowie einer Optimierung der Frequenzverdopplung im gelben-Lasersystem, konnte eine Leistungssteigerung im Vergleich zu dem noch in [78] beschriebenen System erreicht werden. In Tabelle A.1 werden die Leistungen der fundamentalen Lichtfelder vor den genannten Verbesserungen (vorher) mit den im aktuellen Betrieb erreichten Werten verglichen (verbessert). Die Mischeffizienz wurde durch die Verbesserungen nicht verändert.

Tabelle A.1: Leistungssteigerung der fundamentalen Lichtfelder.

In der folgenden Tabelle werden die im alltäglichen Betrieb erreichten Leistungen vor der Optimierung des gelben-Lasersystem und des UV-Lasersystem (vorher), mit den aktuell erreichten Werten verglichen (verbessert). Die Leistungsoptimierung wurde nach der Veröffentlichung [78] durchgeführt.

Lasersystem	vorher [mW]	verbessert [mW]
UV-Lasersystem (254 nm)	≈ 150	$\approx 350 - 400$
Blaues-Lasersystem (408 nm)	≈ 750	$\approx 750 - 800$
Gelbes-Lasersystem (580 nm)	≈ 200	$\approx 300 - 350$
Faktor (W^3)	1	$\approx 3,5 - 5$

Betrachtet man das Produkt der Leistungen $P_{UV} \cdot P_{\text{blau}} \cdot P_{\text{gelb}}$, dann erhält man durch die Leistungssteigerung ein Faktor von 3,5 - 5 der in den Vierwellen-Mischprozess eingeht und somit die VUV-Leistung deutlich steigert.

Hierbei sei allerdings erwähnt, dass die im alltäglichen Betrieb erreichten Leistungen geringer als die maximal mit dem jeweiligen Lasersystem erreichbaren Leistungen sind. In der Tabelle A.1 sind daher die Leistungen aufgeführt, die im alltäglichen Betrieb erreicht wurden.

REVIDIERUNG DER ZUGEORDNETEN HAUPTQUANTENZAHLEN

Da in der ersten Publikation [61] nur drei gemessene Rydberg-Resonanzen zur Verfügung standen, wurden die Hauptquantenzahlen n falsch identifiziert. Durch die Messdaten aus einem früheren Experiment [126] und den Quantendefekten aus der Theorie [60], konnten wir die Hauptquantenzahl mit der Gleichung (5.3) auf die Umgebung von $n = 51 - 55$ einschränken. Eine genauere Identifikation konnten wir durch Bestimmung der Quantendefekte aus der Energiedifferenz zweier Resonanzen treffen. Nimmt man die in 5.1 aufgelisteten Energien, erhält man für die Energiedifferenzen $\Delta E_{n_1, n_2} = 6,40(1) \text{ cm}^{-1}$, $\Delta E_{n_2, n_3} = 55,25(4) \text{ cm}^{-1}$ und $\Delta E_{n_1, n_3} = 61,64(4) \text{ cm}^{-1}$. Löst man die Gleichung

$$\Delta E_{n_1, n_2}/4 = \frac{-1}{(n_1 - \delta_{(n_1, n_2)})^2} + \frac{-1}{(n_2 - \delta_{(n_1, n_2)})^2}, \quad (\text{B.1})$$

nach dem Quantendefekt $\delta_{(n_1, n_2)}$ auf, erhält man die in Tabelle B.1 aufgelisteten Werte aus der Energiedifferenz der zwei Resonanzen n_1 und n_2 . Dabei wurden die Hauptquantenzahlen zwischen $n = 51$ und $n = 55$ variiert. In Tabelle B.2 und Tabelle B.3 sind zudem die berechneten Quantendefekte $\delta_{(n_2, n_3)}$ und $\delta_{(n_1, n_3)}$ für verschiedene Zuordnungen von n_1, n_2 und n_3 aufgelistet.

Tabelle B.1: Berechnete Quantendefekte für verschieden Zuordnungen von n_1 und n_2 . Die Quantendefekte $\delta_{(n_1, n_2)}$ wurden mit der Gleichung (B.1) berechnet. Dazu wurde die Energiedifferenz der Resonanzen n_1 und n_2 (siehe Tabelle 5.1) verwendet und verschiedene Kombinationen der Hauptquantenzahlen n_1 und n_2 gewählt. Der von uns favorisierte Quantendefekt wurde rot eingefärbt.

$n_2 \backslash n_1$	50	51	52
51	-1,08	-	-
52	-13,99	-0,08	
53	-22,91	-12,99	0,92
54	-	-21,91	-11,99
55	-	-	-20,91

Tabelle B.2: Aus den Messungen berechnete Quantendefekte, für verschieden Zuordnungen von n_2 und n_3 . Die Quantendefekte $\delta_{(n_2, n_3)}$ wurden mit der Gleichung (B.1) berechnet. Dazu wurde die Energiedifferenz der Resonanzen n_2 und n_3 (siehe Tabelle 5.1) verwendet und verschiedene Kombinationen der Hauptquantenzahlen n_2 und n_3 gewählt. Der von uns favorisierte Quantendefekt wurde rot eingefärbt.

$n_3 \backslash n_2$	51	52	53
62	0,23	2,53	-
63	-0,97	1,23	3,53
64	-2,09	0,03	2,23
65	-	-1,08	1,03
66	-	-2,13	-0,09

Tabelle B.3: Aus den Messungen berechnete Quantendefekte, für verschieden Zuordnungen von n_1 und n_3 . Die Quantendefekte $\delta_{(n_1, n_3)}$ wurden mit der Gleichung (B.1) berechnet. Dazu wurde die Energiedifferenz der Resonanzen n_1 und n_3 (siehe Tabelle 5.1) verwendet und verschiedene Kombinationen der Hauptquantenzahlen n_1 und n_3 gewählt. Der von uns favorisierte Quantendefekt wurde rot eingefärbt.

$n_3 \backslash n_1$	50	51	52
62	0,08	2,22	-
63	-0,99	1,08	-
64	-1,98	0,02	2,08
65	-	-0,98	1,01
66	-	-1,90	-0,03

Für einen Rydberg F -Zustand erwarten wir einen Quantendefekt von $\delta_F = 0,026$ [60] und somit hat der von uns favorisierte Quantendefekt $\delta_{(51, 52)} = -0,08(3)$ eine Abweichung von $> 3\sigma$. Nach der Wahl $n_1 = 51$ und $n_2 = 52$ können noch die Quantendefekte aus den Energiedifferenzen zu n_3 berechnet werden. Mit $n_3 = 64$ erhält man für die Quantendefekte $\delta_{(51, 64)} = 0,01(1)$ und $\delta_{(52, 64)} = 0,03(1)$, die nun sehr gut zu dem erwarteten Quantendefekt δ_F passen. Somit wurde die Zuordnung $n_1 = 51$, $n_2 = 52$ und $n_3 = 64$ getroffen. Wie sich im Abschnitt 5.3.1 herausstellt, war diese Zuordnung nach bisherigem Wissenstand falsch.

MATERIALDATEN

C.1 Weitere Details über $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen

C.1.1 Energieniveaus $^{40}\text{Ca}^+$

In der Tabelle C.1 sind die in unserem Experiment verwendeten Energieniveaus aufgelistet. Dazu wurde sowohl die Wellenzahl, als auch die Wellenlänge der Übergänge vom Grundzustand $4S_{1/2}$ zum jeweiligen Niveau aufgelistet. Diese Daten wurden aus [113] entnommen.

Tabelle C.1: Energieniveaus von $^{40}\text{Ca}^+$. Hier sind die wichtigsten Energieniveaus aufgelistet mit der jeweiligen Wellenzahl und Wellenlänge ausgehend vom Grundzustand.

$4S_{1/2} \rightarrow \text{Niveau}$	Wert [cm^{-1}]	Wert [nm]
$3D_{5/2}$	13710,88	729,147
$3D_{3/2}$	13650,19	732,389
$4P_{1/2}$	25191,51	396,8469
$4P_{3/2}$	25414,4	393,3663
Ionisation	95751,34	104,44

C.1.2 Lebensauer von $^{40}\text{Ca}^+$

In Abschnitt 2.2 wurde die Theorie von I. L. Glukhov vorgestellt, mit der die Lebensdauer von $^{40}\text{Ca}^+$ Rydberg-Zuständen abgeschätzt werden kann [58]. Die in Gleichung 2.18 benötigten Koeffizienten, sind in der Tabelle C.2 zusammengetragen. Sie wurden ebenfalls aus [58] entnommen.

C.1.3 Quantendefekte von $^{40}\text{Ca}^+$

Um die Quantendefekte von $^{40}\text{Ca}^+$ abzuschätzen, kann die Theorie nach M. Djerad verwendet werden [60]. Die dazu benötigten Koeffizienten sind in Tabelle C.3 zusammengetragen, und wurden ebenfalls aus [60] entnommen.

Tabelle C.2: Lebensdauerberechnung von $^{40}\text{Ca}^+$. Die für die Theorie nach [58] benötigten Koeffizienten um die Lebensdauer von Rydberg-Niveaus zu berechnen.

Serie	$\tau_1^{(0)}$ [ns]	$\tau_1^{(1)}$ [ns]	$\tau_1^{(2)}$ [ns]	$\tau_1^{(3)}$ [ns]
nS	0,052893	-5,426	13,097	-8,2753
nP	1,6187	-3,2900	53,020	-520,20
nD	0,065904	-1,8670	4,704	2,518
nF	0,017766	-1,8670	4,704	2,518

Tabelle C.3: Koeffizienten für die Berechnung von Quantendefekten. Die für die Theorie nach [60] benötigten Koeffizienten um die Quantendefekte von $^{40}\text{Ca}^+$ zu berechnen.

Serie	δ_0	a	b	c	d
nS	2	1,7994976	0,29482222	-0,67478645	1.7830194
nP	1,9	1,4364885	0,29501835	0,0	0,0
nD	1	0,62281942	0,21231084	-0,96863210	4,6014581
nF	0	0,025947075	-0,15336217	4,4063873	-61.276630
nG	0	-0,006863834	1,1933397	-43,406574	507,34344

C.2 Weitere Details zu Quecksilber

Im folgenden Abschnitt werden die für die in Abschnitt 2.3.1 durchgeführten Rechnungen zum Vierwellen-Mischprozess benötigten Daten von Quecksilber (Hg) aufgelistet.

C.2.1 Übergangsfrequenzen und Oszillatorstärken

Für die Berechnung der Suszeptibilitäten $\chi^{(1)}$ und $\chi^{(3)}$ in Kapitel 2.3.1 werden die erlaubten Ein-Photon Übergänge ausgehend vom 6^1S - und 7^1S -Zustand in Quecksilber benötigt. Die Werte für die Lage der Energieniveaus sind in Tabelle C.4 zusammengetragen und wurden aus [127] entnommen. Bei diesen Werten handelt es sich um Schwerpunktsenergien der Isotope und Hyperfein-Komponenten. Die ebenfalls in Tabelle C.4 zusammengetragenen Oszillatorstärken der Übergänge wurden von A. V. Smith und W. J. Alford [67,68] gemessen. Dabei wurden die Vorzeichen beachtet mit dem die Übergangsmatrixelemente in die Berechnungen eingehen. Wie im Kapitel 2.3.1 bereits erwähnt wurde, reicht es für den Einfluss des Kontinuums den dominierenden, autoionisierenden Zustand $(^2D_{3/2})6p^1P$ zu berücksichtigen.

C.2.2 Hyperfeinstruktur- und Isotopieverschiebung

Das von uns verwendete Quecksilber ist ein natürliches Isotopengemisch welches sieben stabile Isotope enthält. Die auftretende Isotopieverschiebung sowie die Hyperfeinstrukturaufspaltung für das 6^3P - sowie das 7^1S -Niveau, müssen bei der Berechnung der Suszeptibilitäten bedacht werden. Diese können auf Grund

Tabelle C.4: Energien und Oszillatorstärken der Dipolmatrixelementprodukte relevanter Übergänge in Quecksilber. Die Lage der Energieniveaus ist relativ zum 6^1S_0 Grundzustand angegeben.

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

der Nähe zur Ein-Photon sowie zur Zwei-Photon Resonanz nicht vernachlässigt werden. In Tabelle C.5 wurden für sechs Isotope die in einem natürlichen Isotopengemisch vorkommende Häufigkeit [128] bezüglich des ^{202}Hg -Isotops, sowie die Isotopieverschiebungen für den 6^1S - 7^1S [129,130] und den 6^1S - 6^3P Übergang [131], aufgelistet. Das Isotop ^{196}Hg wird aufgrund seiner geringen Häufigkeit von 0,15% nicht berücksichtigt. Bei den ungeraden Isotopen tritt zusätzlich eine Hyperfeinstrukturaufspaltung. Diese wird durch den Entartungsfaktor $G = 2F + 1$ charakterisiert, wobei dieser angibt wie stark die Entartung der Hyperfeinkomponente zur Entartung des gesamten 6^3P Niveaus ist. Bei der Berechnung der Suszeptibilitäten in Kapitel 2.3.1 müssen die beitragenden Übergangsstärken entsprechend ihrer Häufigkeit und des Verzweignungsverhältnisses berücksichtigt werden.

Tabelle C.5: Hyperfeinstruktur- und Isotopieverschiebung von Quecksilber. Aufgelistet ist die relative Häufigkeit der stabilen Quecksilber Isotope sowie die Isotopieverschiebung Δ bzgl. des ^{202}Hg -Isotops. Für den 6^3P_1 -Zustand sind zudem für die ungeraden Isotope 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]
^{198}Hg	9,968	8,314			10,102
^{199}Hg	16,873	7,791	$F = \frac{1}{2}$ $F = \frac{3}{2}$	2 4	-5,283 16,833
^{200}Hg	23,096	4,362			5,297
^{201}Hg	13,181	3,045	$F = \frac{1}{2}$ $F = \frac{3}{2}$ $F = \frac{5}{2}$	2 4 6	16,844 9,292 -4,694
^{202}Hg	29,863	0			0
^{204}Hg	6,865	-4,297			-5,207

C.2.3 Dampfdruck von Quecksilber

Die Teilchenzahldichte wird über die Quecksilbertemperatur verändert. Dazu ist der temperaturabhängige Dampfdruck von Quecksilber hilfreich. Durch das Wissen des Dampfdrucks kann mit der idealen Gasgleichung die Dichte mit der Temperatur verknüpft werden. Entsprechende Werte wurden aus [132] entnommen und sind in Tabelle C.6 zusammengetragen.

Tabelle C.6: Dampfdruck von Quecksilber in Abhängigkeit von der Temperatur. Die Werte wurden aus [132] entnommen.

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	$1,01325 \times 10^3$

C.3 Brechungsindizes für MgF₂

Im folgenden Abschnitt werden Informationen zusammengetragen, um den Brechungsindex von MgF₂ abschätzen zu können. Dabei liegt ein besonderer Fokus auf dem vakuum-ultraviolettem-Spektrum.

Um den Brechungsindex von MgF₂ zu berechnen, kann im Wellenlängenbereich von 202,6 nm bis 7,04 μm , die in [133] gegebenen Sellmeier-Gleichung

$$n_o(\lambda) = \left[1 + \frac{0,48755108 \lambda^2}{\lambda^2 - (4,338408 \cdot 10^{-8} \text{ m})^2} + \frac{0,39875031 \lambda^2}{\lambda^2 - (9,461442 \cdot 10^{-8} \text{ m})^2} + \frac{2,3120353 \lambda^2}{\lambda^2 - (2,3793604 \cdot 10^{-5})^2} \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (\text{C.1})$$

und

$$n_e(\lambda) = \left[1 + \frac{0,41344023 \lambda^2}{\lambda^2 - (3,684262 \cdot 10^{-8} \text{ m})^2} + \frac{0,50497499 \lambda^2}{\lambda^2 - (9,076162 \cdot 10^{-8} \text{ m})^2} + \frac{2,4904862 \lambda^2}{\lambda^2 - (2,3771995 \cdot 10^{-5})^2} \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (\text{C.2})$$

verwendet werden. In der Tabelle C.7 wurden einige Werte für den Brechungsindex von MgF₂ zusammengetragen.

Tabelle C.7: Brechungsindizes für MgF₂. Die angegebenen Werte wurden aus [133] entnommen.

λ [μm]	n_o	n_e
0,2	1,42309	1,43657
0,24	1,40567	1,41859
0,28	1,39620	1,40877
0,36	1,38656	1,39875
0,40	1,38387	1,39594
0,44	1,38189	1,39389
0,48	1,38040	1,39233
0,52	1,37923	1,39111
0,56	1,37829	1,39013
0,60	1,37752	1,38932
1,00	1,37358	1,38519
1,40	1,37134	1,38281
1,80	1,36908	1,38040

In der Tabelle C.8 wurden Brechungsindizes für MgF₂ für kurze Wellenlängen zusammengetragen, die aus [134] entnommen wurden.

Tabelle C.8: Brechungsindizes für MgF_2 . Die angegebenen Werte wurden aus [134] entnommen. um Werte zwischen den angegebenen Messwerten zu erhalten, werden die Daten interpoliert.

λ [nm]	n_o	n_e	λ [nm]	n_o	n_e
113,70	1,7805	-	145,00	1,4945	1,5085
114,55	1,7530	1,7295	150,00	1,4800	1,4945
114,90	1,7420	1,7215	155,00	1,4715	1,4855
115,65	1,7235	1,7080	160,00	1,4610	1,4750
116,75	1,7000	1,6905	165,00	1,4535	1,4675
117,85	1,6800	1,6750	170,00	1,4475	1,4615
119,80	1,6510	1,6520	175,00	1,4435	1,4575
121,53	1,6275	1,6320	178,00	1,43975	1,45362
125,10	1,5915	1,6005	180,00	1,4390	1,4530
127,50	1,5730	1,5835	185,00	1,43424	1,44795
130,15	1,5565	1,5680	190,00	1,4305	1,4440
135,00	1,5285	1,5415	195,00	1,4260	1,4395
140,00	1,5095	1,5230	200,00	1,4220	1,4355

KONSTRUKTIONSZEICHNUNGEN

Im folgenden Kapitel sind einige technische/gerenderte Zeichnungen eingefügt:

- Laserdiodenaufbau mit beweglicher Kollimationslinse (Abbildung D.1)
- Filterhalter für VUV-Filter (Abbildung D.2).
- CF40-Dichtring zur Befestigung des Filter- sowie Linsenhalters im Vakuum (Abbildung D.3).
- Befestigungsadapter für Photomultiplier (Abbildung D.4).
- Aufbau der 1160 nm-Laserdiode mit Kollimationslinsen Halter (Abbildung D.5, D.6 und D.7).
- Grundplatte für den Verdopplungsresonator (1160 nm $\rightarrow$ 580 nm) (Abbildung D.8 und D.9).

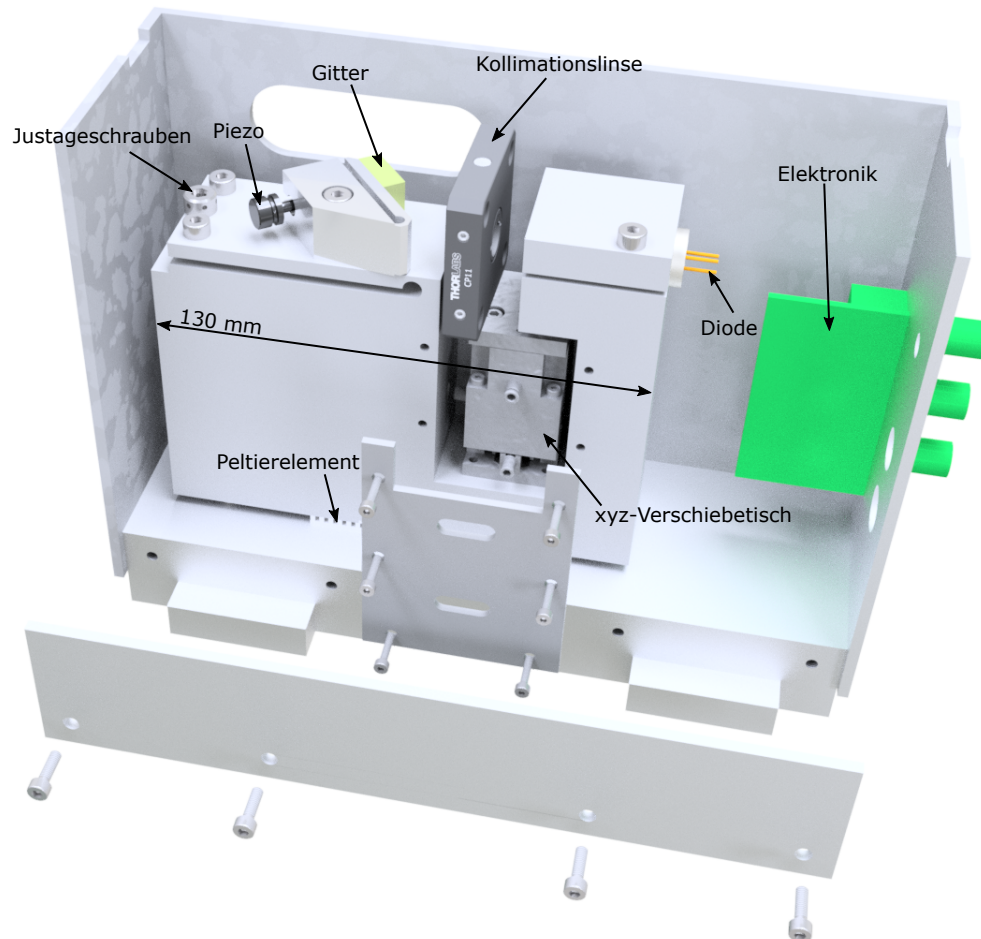


Abbildung D.1: Erste Version des neuen Laserdioden Designs.

Um das Problem mit dem Ein-Moden Betrieb der Laserdiode (GC-1160-90-TO-200-A, Innolume GmbH) näher zu untersuchen, wurde der gezeigt Laserdiodenaufbau entwickelt. Dabei wird die Kollimationslinse auf einem xyz-Verschiebetisch (M-DS25-XYZ, Newport) gehalten und somit ist eine sehr präzise Justage der Rückkopplung möglich. Nachteil dieses Aufbaus ist die lang Einschwingzeit ($> 5 \text{ min}/^{\circ}\text{C}$) der Temperatur, was zu einer dauerhaften Schwingung selbiger führt. Aus diesem Grund wurde der Laserdiodenaufbau optimiert, siehe Abbildung 3.13. Um eine bessere Temperaturstabilität zu erreichen wurde die Größe des in der Temperatur zu stabilisierenden Teiles deutlich verkleinert.

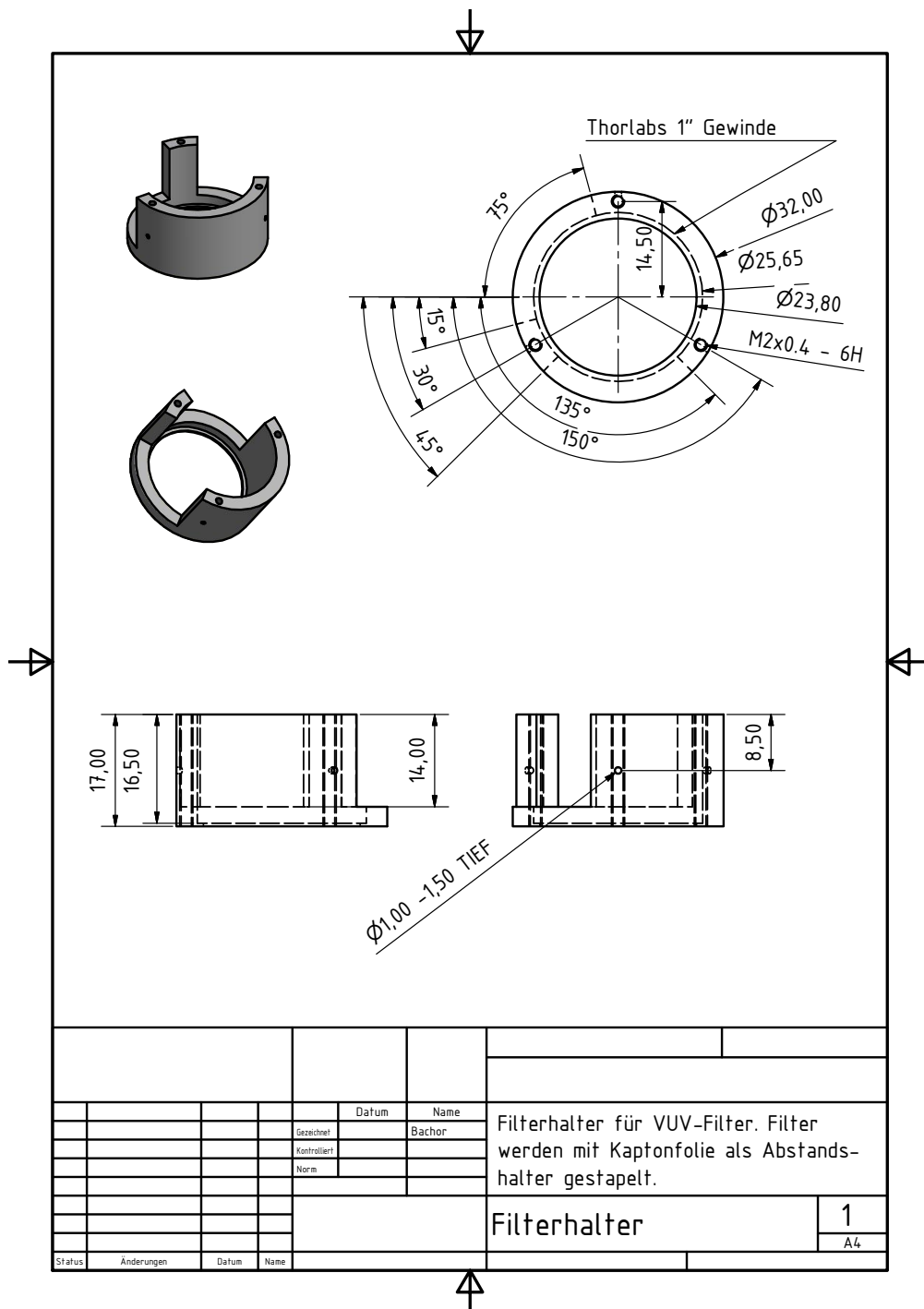


Abbildung D.2: Filterhalter für VUV-Filter im Vakuum. Die Filter werden mit Abstandshaltern aus Kaptonfolie gestapelt. Der Halter wird an einen CF-Kupferdichtring befestigt.

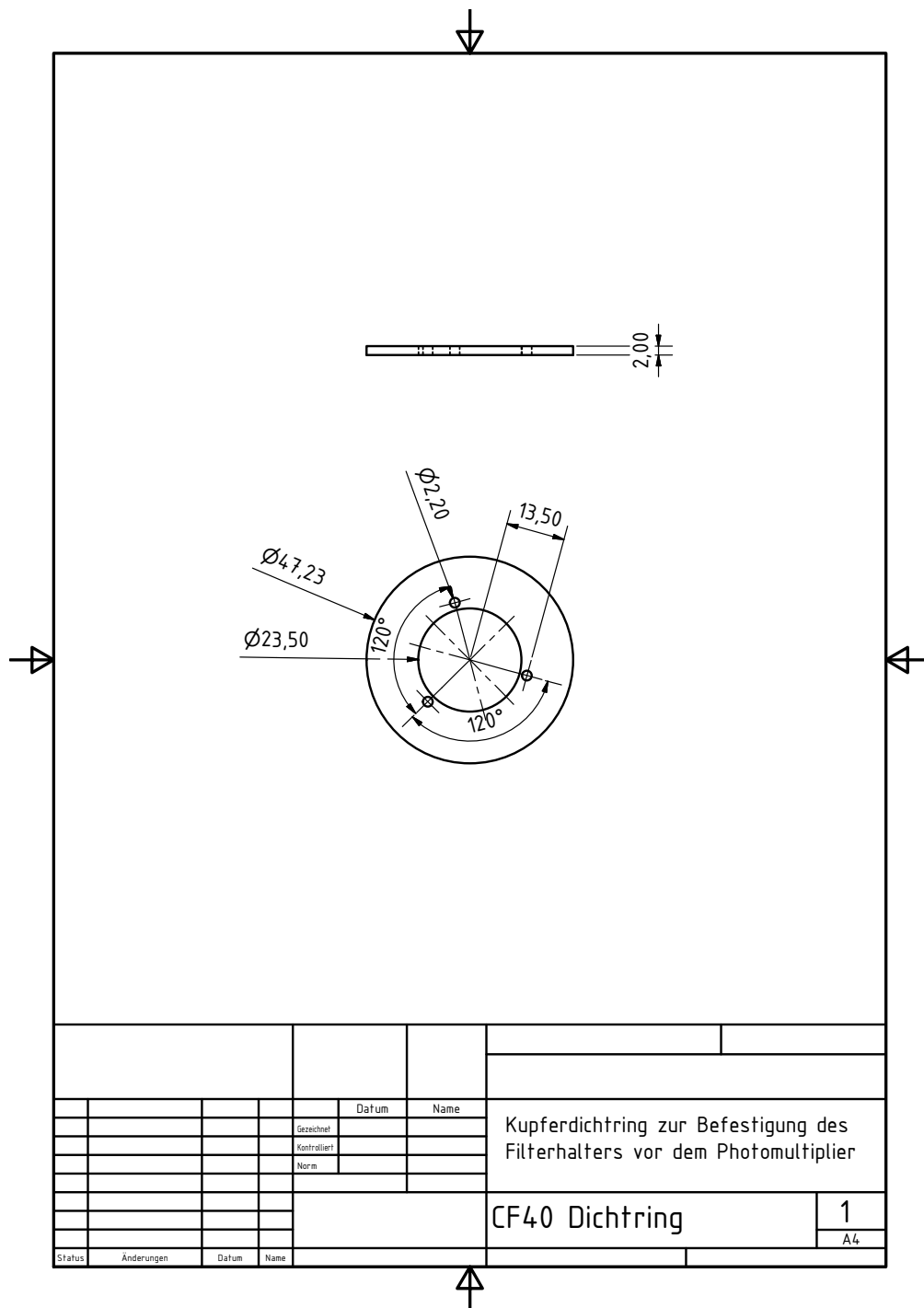


Abbildung D.3: CF40-Dichtring für Filterhalter. An diesen Dichtring wird sowohl der Filterhalter der VUV-Filter als auch der Halter für die MgF_2 -Linsen im Vakuum befestigt.

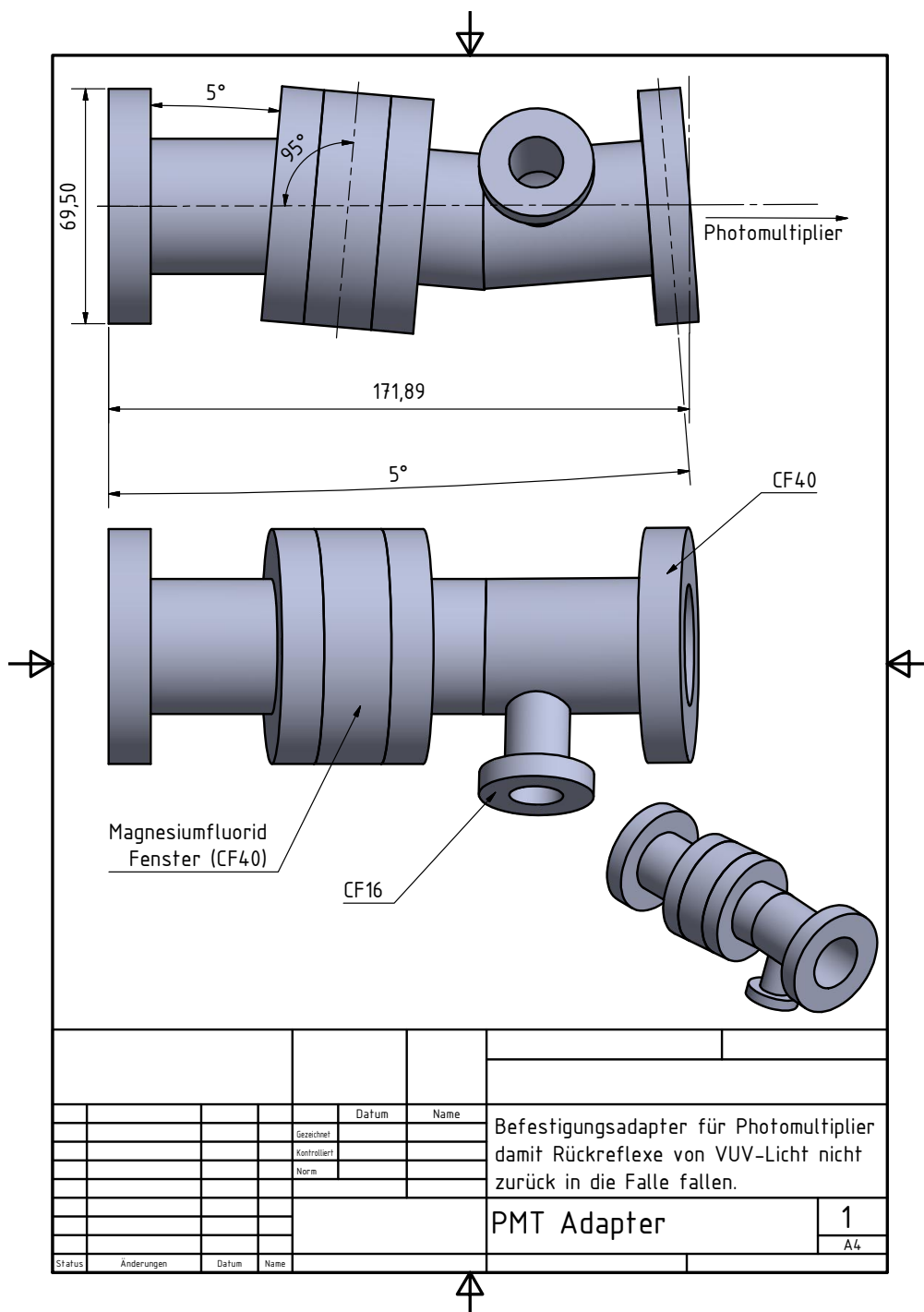


Abbildung D.4: Befestigungsadapter für Photomultiplier Sowohl das MgF_2 -Fenster als auch der Photomultiplier sind mit diesem Adapter um 5° angewinkelt. Somit fallen Reflexe vom VUV-Licht nicht direkt in die Falle zurück.

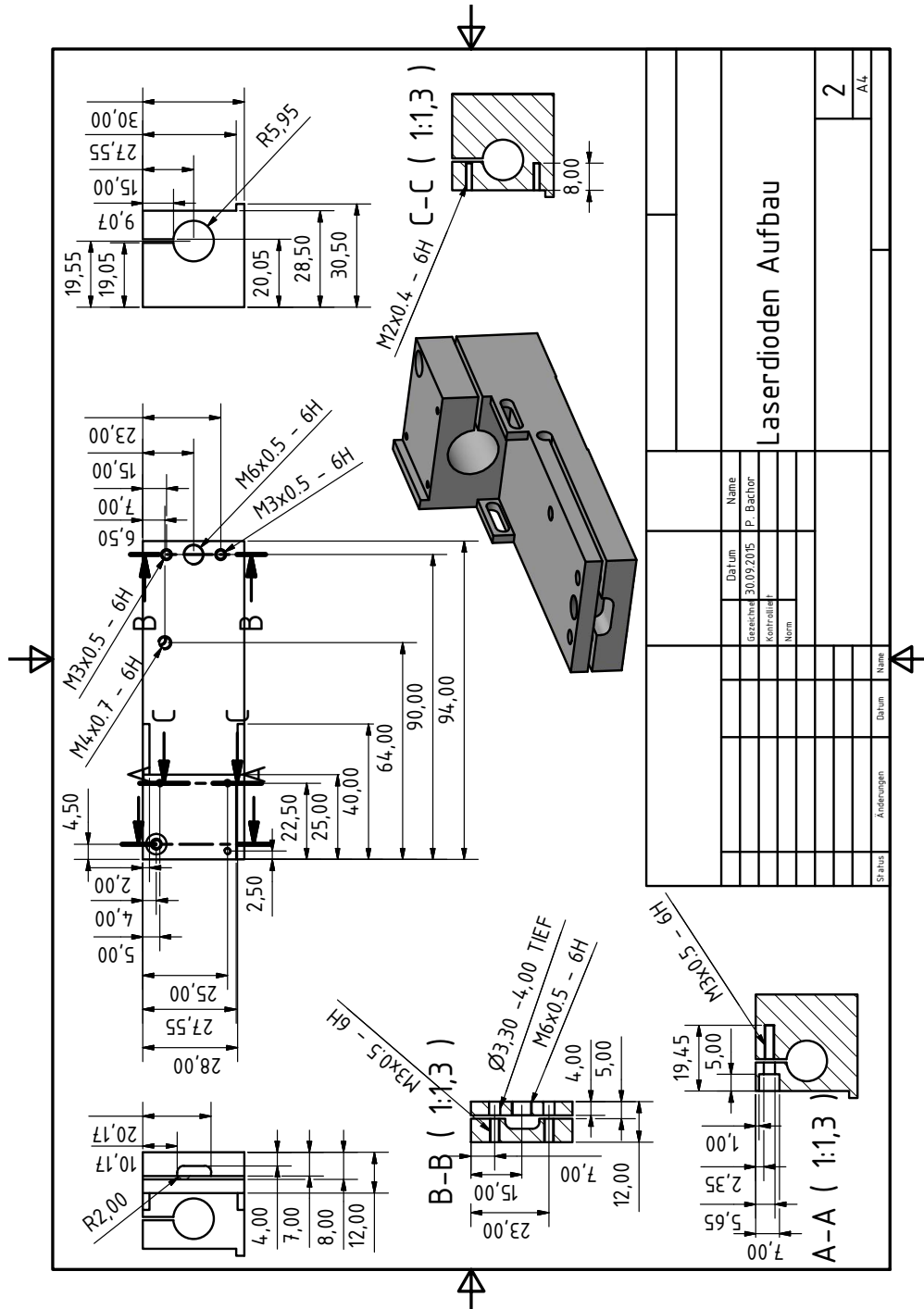


Abbildung D.5: Laserdiodeaufbau L-Block (Teil 1) Die technische Zeichnung des Aufbaus für die 1160 nm-Laserdiode. Das Gitter wird auf der spreizbaren Fläche befestigt, damit die Rückkopplung vom Gitter optimiert werden kann. Der Kollimationslinsen Halter wird seitlich an den beiden Laschen arretiert.

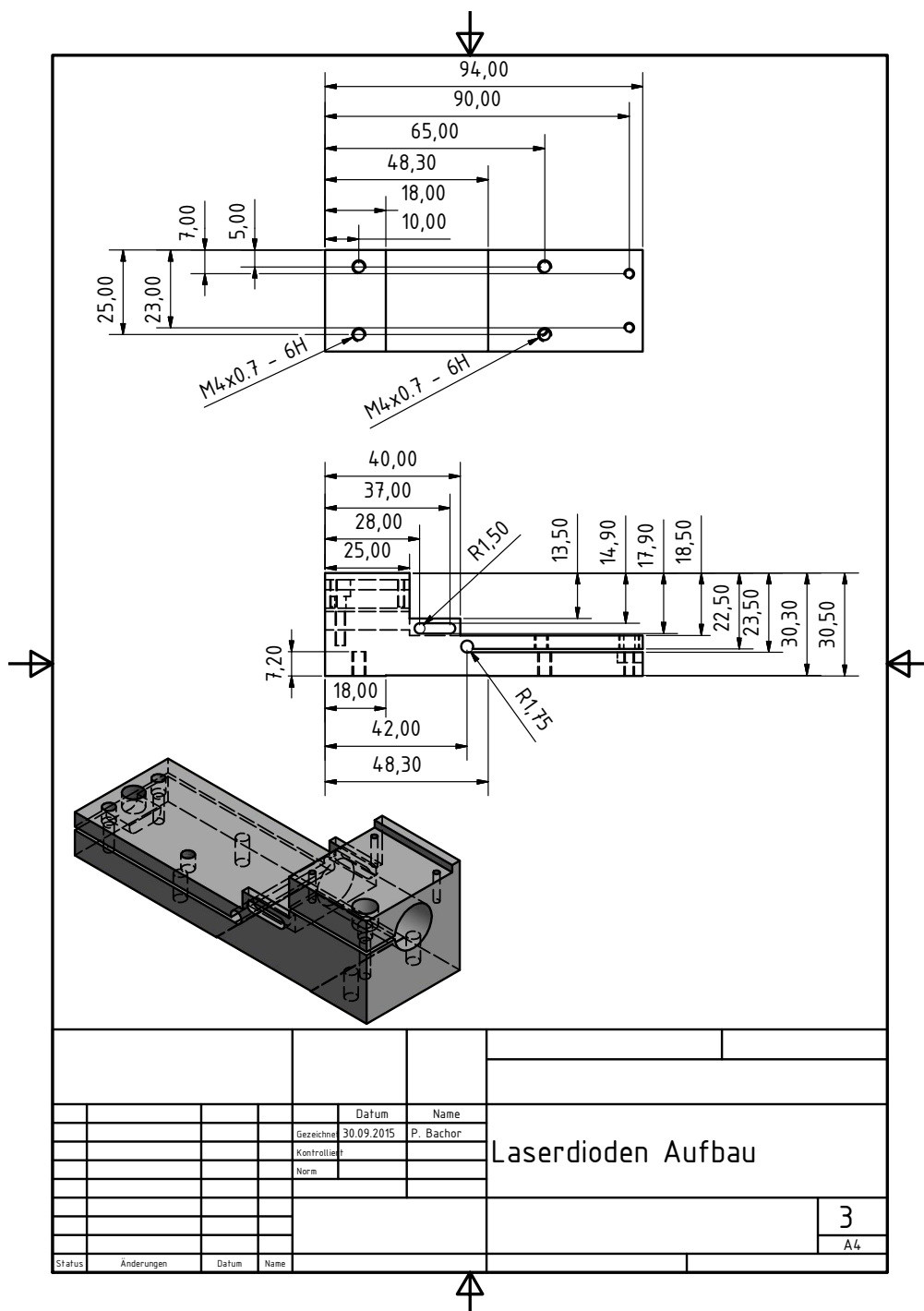


Abbildung D.6: Laserdiodenaufbau L-Block (Teil 2) Die technische Zeichnung des Aufbaus für die 1160 nm-Laserdiode. Der L-Block wird mit Kunststoffschrauben auf einer Wärmesenke montiert.

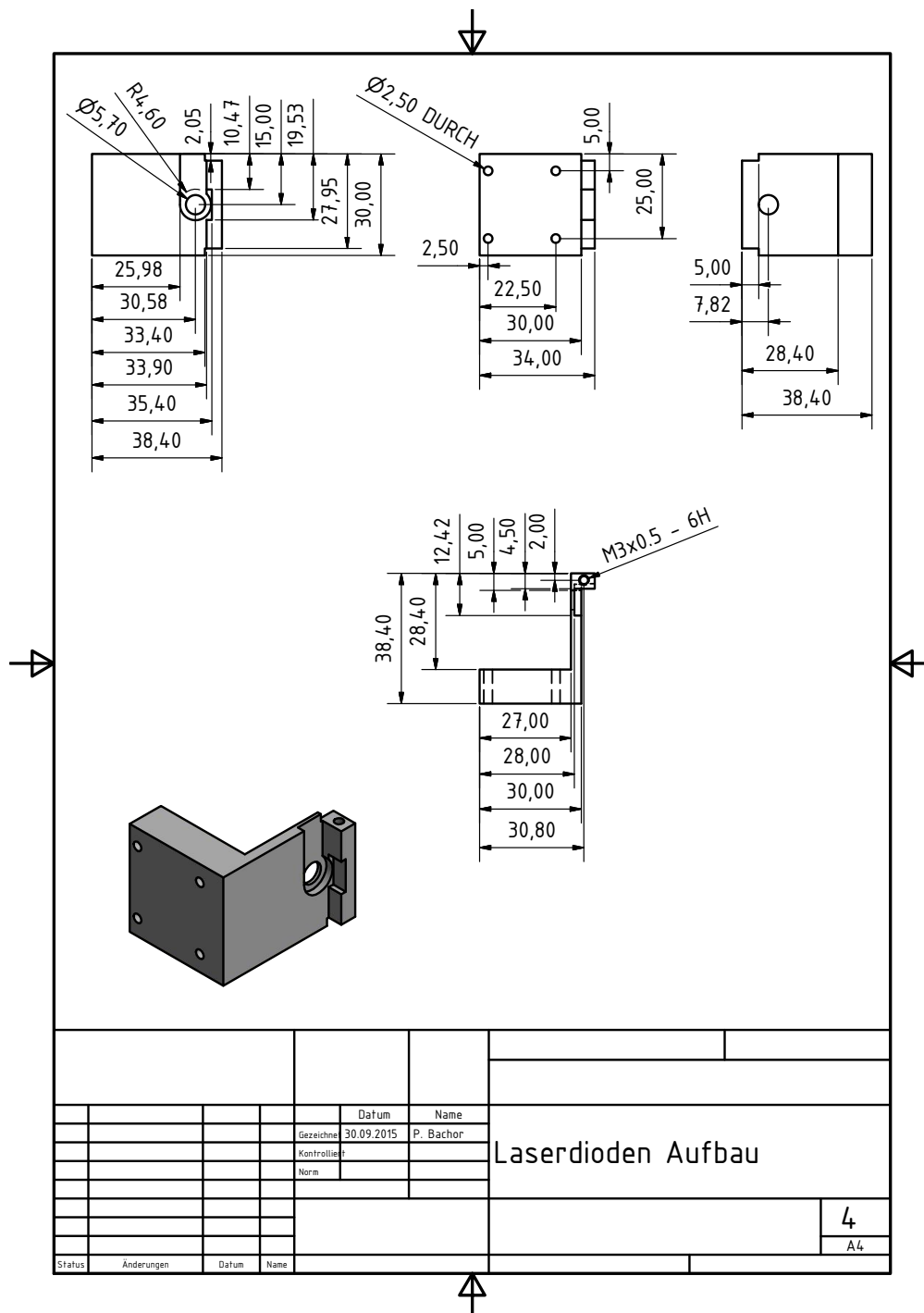


Abbildung D.7: Laserdiodenaufbau - Kollimationslinsen Halter
Der Kollimationslinsenhalter, auf dem die Linse geklebt wird. Dieser wird über einen Verschiebetisch mit dem L-Block verbunden. Siehe dazu auch Abbildung 3.13.

LITERATURVERZEICHNIS

- [1] M. Saffmann, T. G. Walker, and K. Mølmer. Quantum information with Rydberg atoms. *Rev. Mod. Phys.*, 82(3):2313–2363, 2010.
- [2] J. Lim, H. Lee, and J. Ahn. Review of cold Rydberg atoms and their applications. *J. Korean Phys. Soc.*, 63(4):867–876, 2013.
- [3] T. F. Gallagher. *Rydberg Atoms*. Cambridge University Press, 1994.
- [4] J. M. Raimond, M. Brune, and S. Haroche. Manipulating quantum entanglement with atoms and photons in a cavity. *Rev. Mod. Phys.*, 73:565–582, 2001.
- [5] T. Wilk, A. Gaëtan, C. Evellin, J. Wolters, Y. Miroshnychenko, P. Grangier, and A. Browaeys. Entanglement of Two Individual Neutral Atoms Using Rydberg Blockade. *Phys. Rev. Lett.*, 104:010502, 2010.
- [6] D. Jaksch, J. I. Cirac, P. Zoller, S. L. Rolston, R. Côté, and M. D. Lukin. Fast Quantum Gates for Neutral Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 85:2208–2211, 2000.
- [7] E. Urban, T. A. Johnson, T. Henage, L. Isenhower, D. D. Yavuz, T. G. Walker, and M. Saffman. Observation of Rydberg blockade between two atoms. *Nature*, 5:110–114, 2009.
- [8] D. Comparat and P. Pillet. Dipole blockade in a cold Rydberg atomic sample. *J. Opt. Soc. Am. B*, 27(6):A208–A232, 2010.
- [9] L. Isenhower, E. Urban, X. L. Zhang, A. T. Gill, T. Henage, T. A. Johnson, T. G. Walker, and M. Saffman. Demonstration of a Neutral Atom Controlled-NOT Quantum Gate. *Phys. Rev. Lett.*, 104:010503, 2010.
- [10] J. I. Cirac and P. Zoller. Quantum Computations with Cold Trapped Ions. *Phys. Rev. Lett.*, 74:4091–4094, 1995.
- [11] F. Schmidt-Kaler, H. Häffner, M. Riebe, S. Gulde, G. P. T. Lancaster, T. Deuschle, C. Becher, C. F. Roos, J. Eschner, and R. Blatt. Realization of the Cirac-Zoller controlled-NOT quantum gate. *Nature*, 422:408–411, 2003.
- [12] R. Blatt and D. Wineland. Entangled states of trapped atomic ions. *Nature*, 453:1008–1015, 2008.

- [13] 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.
- [14] W. Li and I. Lesanovsky. Entangling quantum gate in trapped ions via Rydberg blockade. *Appl. Phys. B*, 114(1):37–44, 2014.
- [15] G. Higgins, F. Pokorny, C. Zhang, Q. Bodart, and M. Hennrich. Coherent control of a single trapped Rydberg ion. <http://arxiv.org/abs/1708.06387>, 2017.
- [16] M. Hennrich. Persönliche Mitteilung, 2017. Department of Physics, Stockholm University.
- [17] W. Li, A. W. Glaetzle, R. Nath, and I. Lesanovsky. Parallel execution of quantum gates in a long linear ion chain via Rydberg mode shaping. *Phys. Rev. A*, 87:052304, 2013.
- [18] R. Nath, M. Dalmonte, A. W. Glaetzle, P. Zoller, F. Schmidt-Kaler, and R. Gerritsma. Hexagonal plaquette spin-spin interactions and quantum magnetism in a two-dimensional ion crystal. *New J. Phys.*, 17(6):065018, 2015.
- [19] W. Li and I. Lesanovsky. Electronically Excited Cold Ion Crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 108:023003, 2012.
- [20] 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.
- [21] G. Higgins, F. Pokorny, F. Kress, J. Haag, C. Maier, Y. Colombe, and M. Hennrich. Rydberg excitation of trapped strontium ions. In *2015 European Conference on Lasers and Electro-Optics - European Quantum Electronics Conference*, page PD.B.1. OSA, 2015.
- [22] G. Higgins, W. Li, F. Pokorny, C. Zhang, F. Kress, C. Maier, J. Haag, Q. Bodart, I. Lesanovsky, and M. Hennrich. Single Strontium Rydberg Ion Confined in a Paul Trap. *Phys. Rev. X*, 7:021038, 2017.
- [23] D. Cotter. Tunable narrow-band coherent VUV source for the lyman-alpha region. *Opt. Comm.*, 31(3):397–400, 1979.
- [24] J. P. Marangos, N. Shen, H. Ma, M. H. R. Hutchinson, and J. P. Connerade. Broadly tunable vacuum-ultraviolet radiation source employing resonant enhanced sum-difference frequency mixing in krypton. *J. Opt. Soc. Am. B*, 7(7):1254–1259, 1990.
- [25] S. A. Meyer and G. W. Faris. High-power Lyman- α source generated with an ArF excimer laser. *Opt. Lett.*, 23(3):204–206, 1998.
- [26] K. S. E. Eikema, J. Walz, and T. W. Hänsch. Continuous wave coherent Lyman- α radiation. *Phys. Rev. Lett.*, 83:3828–3831, 1999.

-
- [27] 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.
- [28] M. Scheid. *Frequenzvervierfachung eines Yb:YAG-Scheibenlasers - ein UV Lasersystem bei 253,7 nm, der 6^1S-6^3P Linie in Quecksilber*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2006.
- [29] 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.
- [30] 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.
- [31] F. Markert. *Eine kontinuierliche Lyman- α -Quelle basierend auf Festkörperlasersystemen*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2009.
- [32] 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.
- [33] R. Steinborn. *Ein leistungsstarker Ytterbium-Faserverstärker bei 1091 nm für eine kontinuierliche Lyman- α -Quelle*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2009.
- [34] M. Scheid. *Einfluss der 6^1S-6^3P Resonanz auf die Lyman- α Erzeugung in Quecksilber*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2009.
- [35] D. Kolbe. *Effizientes Vierwellenmischen durch Ausnutzen von Resonanzen in Quecksilber*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2010.
- [36] M. Stappel. *Hochleistungslasersystem bei 545,5nm durch Frequenzverdopplung eines Ytterbium-Faserverstärkersystems*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2011.
- [37] 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.
- [38] 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.
- [39] 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.

- [40] P. Bachor. *Frequenzstabilisierung von Lasersystemen zur Rydberganregung von Calciumionen*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2013.
- [41] 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.
- [42] A. Koglbauer. *Erzeugung vakuumultravioletter Strahlung durch Vierwellenmischen in einer Hohlaser*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2014.
- [43] T. F. Gallagher. Rydberg Atoms. *Rep. Prog. Phys.*, 51(2):143–188, 1988.
- [44] J. D. Pritchard. *Cooperative Optical Non-Linearity in a Blockade Rydberg Ensemble*. Springer, 2012.
- [45] U. Fano. Quantum defect theory of l uncoupling in H_2 as an example of Channel-Interaction treatment. *Phys. Rev. A*, 2:353–365, 1970.
- [46] M. J. Seaton. Quantum defect theory. *Rep. Prog. Phys.*, 46(2):167, 1983.
- [47] V.S. Lebedev and I. L. Beigman. *Physics of highly excited atoms and ions*. Springer, 1998.
- [48] M. Aymar, C.H. Greene, and E. Luc-Koenig. Multichannel Rydberg spectroscopy of complex atoms. *Rev. Mod. Phys.*, 68:1015–1123, 1996.
- [49] R. Löw, H. Weimer, J. Nipper, J. B. Balewski, B. Butscher, H. P. Büchler, and T. Pfau. An experimental and theoretical guide to strongly interacting Rydberg gases. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 45(11):113001, 2012.
- [50] M. W. Horbatsch, M. Horbatsch, and E. A. Hessels. A universal formula for the accurate calculation of hydrogenic lifetimes. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 38(11):1765, 2005.
- [51] T. F. Gallagher and W. E. Cooke. Interactions of Blackbody Radiation with Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 42:835–839, 1979.
- [52] F. G. Major, V. N. Gheorghe, and G. Werth. *Charged Particle Traps*. Springer, 2005.
- [53] S. Earnshaw. On the nature of the molecular forces that regulate the constitution of the luminiferous ether. *Trans. Camb. Phil. Soc.*, 7:97–112, 1842.
- [54] D. Leibfried, R. Blatt, C. Monroe, and D. Wineland. Quantum dynamics of single trapped ions. *Rev. Mod. Phys.*, 75:281–324, 2003.

-
- [55] J. Meixner and F. W. Schäfke. *Anwendungen der Mathieuschen Funktionen und der Sphäroidfunktionen*. Springer Berlin Heidelberg, 1954.
- [56] G. Werth, V. N. Gheorghe, and F. G. Major. *Charged Particle Traps II*. Springer, 2009.
- [57] A. Kreuter, C. Becher, G. P. T. Lancaster, A. B. Mundt, C. Russo, H. Häffner, C. Roos, W. Hänsel, and F. Schmidt-Kaler. Experimental and theoretical study of the $3d^2D$ -level lifetimes of $^{40}\text{Ca}^+$. *Phys. Rev. A*, 71:032504, 2005.
- [58] I. L. Glukhov, E. A. Nikitina, and V. D. Ovsiannikov. Lifetimes of Rydberg States in Ions of the Group II Elements. *Optics and Spectroscopy*, 115(1):9–17, 2013.
- [59] T. Feldker. *Rydberg Excitation of Trapped Ions*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2016.
- [60] M. Djerad. Atomic parameters for transitions involving Rydberg states of singly ionized alkaline earth. *J. de Phys. II*, 1(1):1–9, 1991.
- [61] T. Feldker, P. Bachor, M. Stappel, D. Kolbe, R. Gerritsma, J. Walz, and F. Schmidt-Kaler. Rydberg Excitation of a Single Trapped Ion. *Phys. Rev. Lett.*, 115:173001, 2015.
- [62] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Elsevier Inc., 2008.
- [63] J. F. Reintjes. *Nonlinear optical parametric processes in liquids and gases*. Academic Press, 1984.
- [64] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich. Generation of optical harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 7(4):118–119, 1961.
- [65] B. E. A. Saleh and M. C. Teich. *Fundamentals of photonics*. Wiley Series in Pure and Applied Optics. Wiley, 2. edition, 2007.
- [66] G. C. Bjorklund. Effects of focusing on third-order nonlinear processes in isotropic media. *IEEE J. Quantum Elect.*, 11(6):287–296, 1975.
- [67] 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.
- [68] 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.
- [69] W. Demtröder. *Laserspektroskopie: Grundlagen und Techniken*. Springer Verlag, Berlin; Heidelberg; New York, 1999.
- [70] 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.

- [71] W. Demtröder. *Laserspektroskopie - Grundlagen und Techniken*. Springer, 2007.
- [72] B. D. Fried and S. D. Conte. *The plasma dispersion function*. Academic Press, 1961.
- [73] V.G. Dmitriev, G.G. Gurzadyan, and D.N. Nikogosyan. *Handbook of nonlinear optical crystals*. Springer-Verlag, 1991.
- [74] G. D. Boyd and D. A. Kleinmann. Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams. *Journal of Applied Physics*, 39(8):3597–3639, 1968.
- [75] Y. F. Chen and Y. C. Chen. Analytical functions for the optimization of second-harmonic generation and parametric generation by focused Gaussian beams. *Appl. Phys. B*, 76(6):645–647, 2003.
- [76] E. S. Polzik and H. J. Kimble. Frequency doubling with KNbO_3 in an external cavity. *Opt. Lett.*, 16(18):1400–1402, 1991.
- [77] M. Stappel. *Eine vakuumultraviolette Laserquelle zur Rydberganregung von Calciumionen*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2015.
- [78] P. Bachor, T. Feldker, J. Walz, and F. Schmidt-Kaler. Addressing single trapped ions for Rydberg quantum logic. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 49(15):154004, 2016.
- [79] D. Kolbe. *Phasenkohärente Addition von Lichtfeldern einer Laserdiode mit zwei getrennten Halbleiter-Trapezverstärkern*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2007.
- [80] 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.
- [81] 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.
- [82] E. D. Black. An introduction to Pound-Drever-Hall laser frequency stabilization. *Am. J. Phys.*, 69(1):79–87, 2001.
- [83] G. Hadley. Injection locking of diode lasers. *IEEE J. Quantum Elect.*, 22(3):419–426, 1986.
- [84] B. Saxberg, B. Plotkin-Swing, and S. Gupta. Active stabilization of a diode laser injection lock. *Rev. Sci. Instr.*, 87(6):063109, 2016.

-
- [85] 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.
- [86] R. Steinborn-Knuth. *Ein leistungsstarkes ultraviolettes Lasersystem bei 253 nm für eine Lyman- α -Quelle*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2017.
- [87] M. Schröder. *Aufbau eines Referenzresonators zur Frequenzstabilisierung eines Lasersystems*. Bachelorarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2015.
- [88] T. Macha. *Frequenzstabilisierung eines Titan-Saphir-Laser und Verbesserung von Qubits in Ca^+ -Ionen*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2012.
- [89] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, and Y. Sugimoto. InGaN multi-quantum-well-structure laser diodes with cleaved mirror cavity facets. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 35(Part 2, No. 2B):L217–L220, 1996.
- [90] T. W. Hänsch and B. Couillaud. Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity. *Opt. Commun.*, 35(3):441–444, 1980.
- [91] L. Levin. Mode-hop-free electro-optically tuned diode laser. *Opt. Lett.*, 27(4):237–239, 2002.
- [92] L. B. Mercer. 1/f frequency noise effects on self-heterodyne linewidth measurements. *J. Light. Tech.*, 9(4):485–493, 1991.
- [93] H. Ludvigsen, M. Tossavainen, and M. Kaivola. Laser linewidth measurements using self-homodyne detection with short delay. *Opt. Comm.*, 155(1):180–186, 1998.
- [94] T. Führer and T. Walther. Control and active stabilization of the linewidth of an ECDL. *Appl. Phys. B*, 108(2):249–253, 2012.
- [95] K. Kikuchi and T. Okoshi. Dependence of semiconductor laser linewidth on measurement time: evidence of predominance of 1/f noise. *Electr. Lett.*, 21:1011–1012(1), 1985.
- [96] G. M. Stéphan, T. T. Tam, S. Blin, P. Besnard, and M. Têtu. Laser line shape and spectral density of frequency noise. *Phys. Rev. A*, 71:043809, 2005.
- [97] G. Di Domenico, S. Schilt, and P. Thomann. Simple approach to the relation between laser frequency noise and laser line shape. *Appl. Opt.*, 49(25):4801–4807, 2010.

- [98] R. W. Fox, C. W. Oates, and L. W. Hollberg. 1. Stabilizing diode lasers to high-finesse cavities. In *Cavity-Enhanced Spectroscopies*, volume 40 of *Experimental Methods in the Physical Sciences*, pages 1 – 46. Academic Press, 2003.
- [99] J. I. Thorpe, K. Numata, and J. Livas. Laser frequency stabilization and control through offset sideband locking to optical cavities. *Opt. Express.*, 16(20):15980–15990, 2008.
- [100] D. Wright, P. Greve, J. Fleischer, and L. Austin. Laser beam width, divergence and beam propagation factor - an international standardization approach. *Opt. Quantum Elect.*, 24(9):s993–s1000, 1992.
- [101] Mario González-Cardel, Pedro Arguijo, and Rufino Díaz-Urbe. Gaussian beam radius measurement with a knife-edge: a polynomial approximation to the inverse error function. *Appl. Opt.*, 52(16):3849–3855, 2013.
- [102] G. Hilber, D. J. Brink, A. Lago, and R. Wallenstein. Optical-frequency conversion in gases using Gaussian laser beams with different confocal parameters. *Phys. Rev. A*, 38:6231–6239, 1988.
- [103] D. Kolbe. Persönliche Mitteilung, 2017. Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR), Institut für Technische Physik.
- [104] A. E. Siegman. Analysis of laser beam quality degradation caused by quartic phase aberrations. *Appl. Opt.*, 32(30):5893–5901, 1993.
- [105] P. Islam. *A Digital ion trap for rydberg excitation of trapped ions*. Masterarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2017.
- [106] Korth Kristalle GmbH. Magnesium fluoride, 2017.
- [107] TheEngineeringToolBox.com. Coefficients of linear thermal expansion, 2017.
- [108] J. Roßnagel. *A single-atom heat engine*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2017.
- [109] A. Kehlberger. *Entwicklung und Aufbau einer neuartigen Ionenfalle*. Masterarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2011.
- [110] G. Jacob, K. Groot-Berning, S. Wolf, S. Ulm, L. Couturier, U. G. Poschinger, F. Schmidt-Kaler, and K. Singer. Single particle microscopy with nanometer resolution. <http://arxiv.org/abs/1405.6480>, 2014.
- [111] J. Naber. *Aufbau und Betrieb einer Paulfalle zur Rydberganregung von Ionen*. Masterarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2012.
- [112] J. Eschner, G. Morigi, F. Schmidt-Kaler, and R. Blatt. Laser cooling of trapped ions. *J. Opt. Soc. Am. B*, 20(5):1003–1015, 2003.

-
- [113] National Institute of Standards and Technology (NIST). Atomic spectra database (version 5), 2017.
- [114] M. Chwalla, J. Benhelm, K. Kim, G. Kirchmair, T. Monz, M. Riebe, P. Schindler, A. S. Villar, W. Hänsel, C. F. Roos, R. Blatt, M. Abgrall, G. Santarelli, G. D. Rovera, and Ph. Laurent. Absolute Frequency Measurement of the $^{40}\text{Ca}^+ 4s\ ^2S_{1/2} - 3d\ ^2D_{5/2}$ Clock Transition. *Phys. Rev. Lett.*, 102:023002, 2009.
- [115] R. Yamazaki, H. Sawamura, K. Toyoda, and S. Urabe. Stimulated Raman spectroscopy and the determination of the D -fine-structure level separation in $^{40}\text{Ca}^+$. *Phys. Rev. A.*, 77:012508, 2008.
- [116] 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.
- [117] B. E. A. Saleh and M. C. Teich. *Grundlagen der Photonik*. Wiley-VCH, 2 edition, 2008.
- [118] R. C. Hilborn. Einstein coefficients, cross sections, f values, dipole moments, and all that. <http://arxiv.org/abs/physics/0202029>, 2002.
- [119] A. A. Kamenski and V. D. Ovsiannikov. Formal approach to deriving analytically asymptotic formulas for static polarizabilities of atoms and ions in Rydberg states. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 47(9):095002, 2014.
- [120] E. C. Cook, P. J. Martin, T. L. Brown-Heft, J. C. Garman, and D. A. Steck. High passive-stability diode-laser design for use in atomic-physics experiments. *Rev. Sci. Instr.*, 83(4):043101, 2012.
- [121] E. Kirilov, M. J. Mark, M. Segl, and H.-C. Närgel. Compact, robust, and spectrally pure diode-laser system with a filtered output and a tunable copy for absolute referencing. *Appl. Phys. B*, 119(2):233–240, 2015.
- [122] P. Samutpraphoot, S. Weber, Q. Lin, D. Gangloff, A. Bylinskii, B. Braverman, A. Kawasaki, C. Raab, W. Kaenders, and V. Vuletić. Passive intrinsic-linewidth narrowing of ultraviolet extended-cavity diode laser by weak optical feedback. *Opt. Express*, 22(10):11592–11599, 2014.
- [123] H. Tsuchida. Simple technique for improving the resolution of the delayed self-heterodyne method. *Opt. Lett.*, 15(11):640–642, 1990.
- [124] X. Chen, M. Han, Y. Zhu, B. Dong, and A. Wang. Implementation of a loss-compensated recirculating delayed self-heterodyne interferometer for ultranarrow laser linewidth measurement. *Appl. Opt.*, 45(29):7712–7717, 2006.
- [125] C. Baumgärtner. *Ein vollständig fasergekoppeltes Ytterbium-Faserverstärkersystem bei 1091 nm*. Bachelorarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2015.

- [126] 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. Phys.*, 31(24):5355, 1998.
- [127] C. E. Moore. *Atomic energy levels as derived from the analyses of optical spectra volume III*. NSRDS national standard reference data system, 1971.
- [128] M. G. Zadnik, S. Specht, and F. Begemann. Revised isotopic composition of terrestrial mercury. *Int. J. Mass Spectrom.*, 89(1):103–110, 1989.
- [129] 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.
- [130] 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.
- [131] 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.
- [132] M. Wutz, H. Adam, and W. Walcher. *Handbuch Vakuumtechnik, Theorie und Praxis*. Vieweg, 6. edition, 1997.
- [133] M. J. Dodge. Refractive properties of magnesium fluoride. *Appl. Opt.*, 23(12):1980–1985, 1984.
- [134] 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.

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 18.12.2017

Patrick Bachor

