

Erzeugung von kontinuierlicher
kohärenter Lyman- α -Strahlung zur
1S-2P-Spektroskopie an
Antiwasserstoff

Dissertation
der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von
Anette Pahl
aus Hannover

München, den 25. September 2002

1. Gutachter : Prof. Dr. Theodor W. Hänsch
2. Gutachter : Prof. Dr. Dietrich Habs

Tag der mündl. Prüfung : 19.12.02

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird die erstmalige Erzeugung von kontinuierlicher, kohärenter VUV-Strahlung bei Lyman- α und die Spektroskopie an Wasserstoff mit dieser Strahlung beschrieben. Die experimentellen Beobachtungen zur VUV-Erzeugung können durch Modell-Rechnungen richtig wiedergegeben werden.

Lyman- α -Strahlung liegt bei einer Wellenlänge von 121,56 nm im Vakuum-Ultraviolett und wird mithilfe von Vier-Wellen-Mischen erzeugt. Dazu werden drei Laserstrahlen überlagert und in Quecksilberdampf fokussiert. Die erzeugte Strahlung bei Lyman- α hat eine Leistung von etwa 20 nW. Der Lyman- α -Strahl kreuzt einen Wasserstoff-Atomstrahl und regt Atome zur Fluoreszenz an. Es konnten erstmals 1S-2P-Spektren von Wasserstoff mit einer Linienbreite von nur 120 MHz aufgenommen werden, was nahezu der natürlichen Linienbreite entspricht.

Für zukünftige Experimente an Antiwasserstoff ist Strahlung bei Lyman- α von zentraler Bedeutung, da sie sowohl zur Spektroskopie als auch zur Laserkühlung benötigt wird.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	i
1 Einleitung	1
2 Erzeugung von kontinuierlicher Lyman-α-Strahlung	11
2.1 Vier-Wellen-Mischen in Quecksilber	11
2.1.1 Herleitung der Fundamentalgleichung der Nichtlinearen Optik	12
2.1.2 Fokussierte Gauß-Strahlen	16
2.1.3 Phasenanpassungsintegral für endliche Wechselwirkungs- längen	20
2.1.4 Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität	24
2.1.5 Phasenanpassungsintegral	33
2.1.6 Wellenlängenabhängigkeit der VUV-Strahlung	36
2.2 Experimenteller Aufbau	40
2.2.1 Lasersystem	41
2.2.2 Frequenzverdopplung	43
2.2.3 Quecksilberdampfzelle	47
2.3 Experimentelle Ergebnisse	51
2.3.1 Zwei-Photonen-Resonanz	51

2.3.2	Wellenlängenabhängigkeit der VUV-Strahlung	53
3	Lyman-α-Spektroskopie	57
3.1	Theoretische Beschreibung	57
3.1.1	Linienstärken	59
3.1.2	Theoretische Linienform	62
3.1.3	Abschätzung der zu erwartenden Rate	65
3.2	Experimenteller Aufbau	67
3.3	1S-2P-Spektroskopie	71
4	Mischen der 2S- und 2P-Zustände	73
5	Ausblick	81
A	Quelltexte	87
A.1	Berechnung der Phasenanpassungs- integrale	87
A.2	Berechnung des VUV-Spektrums	91
A.3	Berechnung der Zwei-Photonen- Resonanz	94
	Literaturverzeichnis	97
	Danksagung	105

Kapitel 1

Einleitung

Antiwasserstoff ist mit einem Antiproton als Kern und einem Antielektron, dem so genannten Positron, als Hülle das einfachste Atom aus Antimaterie. Es sollte damit das genaue „Spiegelbild“ des einfachsten Atoms aus Materie, des Wasserstoffatoms, sein.

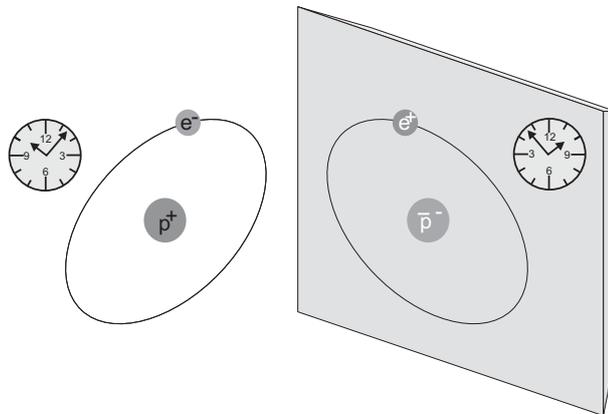


Abbildung 1.1: Antiwasserstoffatom als Spiegelbild des Wasserstoffatoms

In Experimenten am CERN [Bau96] und am Fermilab [Bla98] wurden elf beziehungsweise 57 Antiwasserstoffatome mit Geschwindigkeiten von etwa 90% der Lichtgeschwindigkeit produziert und nachgewiesen. Mit dieser geringen Anzahl von Atomen, die zudem während Messzeiten von einigen Wochen produziert wurden, sind Präzisionsexperimente nicht aussichtsreich.

In einer neuen Generation von Experimenten sollen nun Antiwasserstoffatome so hergestellt werden, dass Präzisionsexperimente damit möglich wer-

den. Damit soll die Spiegelbild-Symmetrie, die CPT-Symmetrie experimentell geprüft werden. CPT bedeutet Ladungsumkehr (**C**harge **c**onjugation), Paritätsumkehr (**P**arity **c**onjugation) und Zeitumkehr (**T**ime **r**eversal). Die zusammengesetzte Ausführung dieser Symmetrietransformation überführt ein Teilchen in sein Antiteilchen. Eine Folge der CPT-Symmetrie ist, dass ein Teilchen und sein jeweiliges Antiteilchen die gleiche träge Masse, das gleiche gyromagnetische Verhältnis, die gleiche Lebensdauer und eine Ladung und ein magnetisches Moment mit gleichem Betrag aber entgegengesetztem Vorzeichen haben. Es folgt weiterhin, dass die Fein- und Hyperfeinstruktur und die Lamb-Shift die gleichen sein sollen. Ist eine von diesen Eigenschaften nicht erfüllt, dann ist die CPT-Symmetrie verletzt.

Eine Übersicht über bisherige experimentelle Tests der CPT-Symmetrie gibt [PDG00]. Die Massen von Kaonen und Antikaonen sind mit einer relativen Genauigkeit von 5×10^{-18} gleich [Car90]. In hochpräzisen Messungen der magnetischen Momente beziehungsweise der gyromagnetischen Verhältnisse von einzelnen Elektronen und Positronen konnte das Verhältnis $g(e^-)/g(e^+)$ mit einer Genauigkeit von etwa 10^{-12} zu eins bestimmt werden [Dyc87]. Bei einer vergleichenden Messung der Zyklotronfrequenzen wurde das Ladungs-Masse-Verhältnis von Protonen und Antiprotonen auf etwa 10^{-10} als identisch bestimmt [Gab99a].

Die Invarianz oder eine eventuelle Verletzung der CPT-Symmetrie kann auch mit Antiwasserstoffatomen gemessen werden [Blu99]. Wir sind Teil der ATRAP-Kollaboration [ATR97], die wie auch die konkurrierende Athena-Kollaboration [ATH96] das Ziel hat, kalte Antiwasserstoffatome zu erzeugen und zu untersuchen. Diese Atome sollen in einer Falle produziert und gespeichert werden, so dass es möglich sein wird, Untersuchungen an diesen Atomen vorzunehmen. Die Herstellung von Antiwasserstoff scheint unmittelbar bevorzustehen, wenn man den gewaltigen Fortschritt in der Produktion und der Handhabung von elementaren Antiteilchen in Betracht zieht. Die gemeinsame Speicherung von Positronen und Antiprotonen in verschachtelten Penning-Fallen wurde 1999 zum ersten Mal demonstriert [Gab99]. Nach der Inbetriebnahme des Antiprotonen-„Entschleuniger“-Rings (Antiproton Decelerator, AD) am CERN konnte inzwischen auch das Kühlen von Antiprotonen mit Positronen [Gab01] gezeigt werden. Somit sind die grundlegenden Voraussetzungen zur Erzeugung von kaltem Antiwasserstoff gegeben. Eine der Herausforderungen bei dem Umgang mit Antimaterie ist die Annihilation bei Kontakt mit normaler Materie. Deshalb sollen die Antiatome berührungsfrei in magnetischen Fallen gespeichert werden. Die Speicherung von Wasserstoff

in Magnetfallen ist inzwischen Stand der Technik [Hes87], [Doy89], [Set93].

Zum Test der CPT-Symmetrie soll die 1S–2S-Übergangsfrequenz gemessen und mit dem sehr genau bekannten Wert der 1S–2S-Übergangsfrequenz von Wasserstoff verglichen werden. Die Absolutfrequenz für den 1S–2S-Übergang ist am MPI für Quantenoptik mittels Doppler-freier Zwei-Photonen-Spektroskopie am Atomstrahl sehr präzise mit einer Genauigkeit von $1,8 \times 10^{-14}$ gemessen worden [Nie00b].

Eine weitere Motivation zur Herstellung von Antiwasserstoff ist die Untersuchung der Wirkung der Gravitation auf Antimaterie. Die CPT-Symmetrie macht nur eine Aussage darüber, dass die trägen Massen von Materie und Antimaterie gleich sein sollten. So kann man nur vorhersagen, dass ein Antiapfel auf einer Antierde genauso fällt wie es ein Apfel auf der Erde tut. Die Frage, ob ein Antiapfel auf der Erde nach unten oder nach oben „fällt“ und mit welchem Betrag er beschleunigt wird, wird in der Theorie kontrovers diskutiert [Gol88], [Nie91], [Dar92], [Ebn93]. Zusätzlich kann man mit einem experimentellen Vergleich der Gravitationskraft auf Materie und Antimaterie das Äquivalenzprinzip, welches besagt, dass die träge und die schwere Masse gleich sind, überprüfen. Fallversuche mit neutralen Antiwasserstoffatomen sind sehr viel aussichtsreicher als mit geladenen elementaren Antiteilchen, wie beispielsweise Antiprotonen, da die Wirkung der elektromagnetischen Kraft um etwa 40 Größenordnungen größer ist als die der Gravitationskraft, so dass jeglicher Einfluss von Gravitationseffekten durch die elektromagnetische Wechselwirkung aufgrund geladener Objekte in der Umgebung überdeckt wird.

Sowohl für die Spektroskopie als auch für die Gravitationsexperimente ist kohärente Strahlung bei einer Wellenlänge von 121,56 nm von großer Bedeutung. Zum einen erfordert die Spektroskopie an Antiwasserstoffatomen in vielerlei Hinsicht andere Techniken als die bei der Präzisionsspektroskopie am Wasserstoffatom benutzten und zum anderen wird diese Strahlung im Hinblick auf Laserkühlung von Antiwasserstoffatomen dringend benötigt.

Der 1S–2P-Übergang in Wasserstoff bei 121,56 nm, der so genannte Lyman- α -Übergang, ist der stärkste optische Dipolübergang in Wasserstoff und kann für einen geschlossenen Zyklus zum Laserkühlen verwendet werden. Die Anwendung von Laserkühlung kann die Anzahl der langsamen Atome, die für Präzisionsexperimente besonders benötigt werden, erhöhen. Zusätzlich wird damit der Dopplereffekt reduziert, so dass die daraus resultierende Dopplerverbreiterung des Übergangs minimiert wird. Dieser Übergang ist erst kürz-

lich mit seiner natürlichen Linienbreite von 100 MHz, die der Lebensdauer des 2P-Zustands von 1,6 ns entspricht, gemessen worden [Eik01]. Für die präzise Spektroskopie wird insbesondere wegen der schmalen spektralen Bandbreite kontinuierliche Strahlung benötigt.

Bei der Herstellung von Antiwasserstoffatomen, die über die Rekombination von gleichzeitig gespeicherten Antiprotonen und Positronen entstehen sollen, ist eine Größenordnung von hundert Atomen zu erwarten, die in einer Magnetfalle gespeichert werden sollen. Verglichen mit z. B. [Doy89] und [Lui93], die 5×10^{12} beziehungsweise mehr als 5×10^8 Wasserstoffatome in einer Magnetfalle speichern, kann mit wenigen Atomen nur schwer Absorptionsspektroskopie durchgeführt werden. Spektroskopie mit wenigen Atomen erfordert andere als die bei der Spektroskopie an Wasserstoff verwendeten Techniken. Ein Ansatz liegt in der Methode der „Shelving“-Spektroskopie [Hae93], die bei der Spektroskopie von einzelnen Ionen Verwendung findet. Der Vorteil hierbei ist, dass die seltenen Ereignisse eines schwachen Übergangs über die starke Resonanzfluoreszenz eines schnellen Übergangs gemessen werden. Dazu wird abwechselnd die Laserstrahlung, die den schwachen Übergang, z. B. in Wasserstoff den sehr schmalen 1S-2S-Zwei-Photonen-Übergang, anregen soll und die Laserstrahlung, die den starken Übergang anregen soll, eingestrahlt. Findet durch die simultane Absorption zweier Photonen der seltene Übergang statt, bleibt das Atom für die Zeit seiner Lebensdauer im metastabilen Zustand. Die Beobachtung der Resonanzfluoreszenz des darauf folgend getriebenen schnellen Übergangs gibt Aufschluss darüber, ob ein Zwei-Photonen-Übergang in den metastabilen Zustand stattgefunden hat oder nicht. Ist keine Fluoreszenz zu beobachten, war die Anregung des schwachen Übergangs erfolgreich. Somit wird es möglich, schwache Übergänge zu beobachten. Im Fall von Antiwasserstoff soll der starke 1S-2P-Übergang mit Lyman- α -Strahlung bei 121,56 nm getrieben werden. Der Zwei-Photonen-Übergang zum metastabilen 2S-Zustand mit einer Lebensdauer von 1/8 s beziehungsweise einer Linienbreite von 1,3 Hz soll mit einem Laser bei 243 nm angeregt werden (vgl. Abbildung 1.2). Ein Absorptionsspektrum kann aufgenommen werden, indem die Frequenz des Lasers bei 243 nm schrittweise durchgestimmt wird, während die Anregungswahrscheinlichkeit über das Verschwinden der Fluoreszenz gemessen wird.

Sowohl für die Präzisionsspektroskopie als auch für Gravitationsexperimente ist das Kühlen von Atomen unerlässlich. Kühlmechanismen, wie sie bei der Kühlung von Wasserstoff verwendet werden [Doy89], sind hier nicht anwendbar. Dabei stoßen die Wasserstoffatome mit den kalten Wänden der Falle, was

im Fall von Antiwasserstoff zur Annihilation führen würde. Laserkühlung wird der erste Schritt zu kalten Antiatomen sein. Für die Laserkühlung von Antiwasserstoff in einer Magnetfalle wird ein geschlossener Zyklus benötigt, um keine Atome durch optisches Pumpen in ungefangene magnetische Unterzustände zu verlieren (vgl. Abbildung 1.2). Unter der Annahme, dass die Atome nach ihrer Entstehung die Temperatur ihrer Ausgangsteilchen von 4,2 K haben, dann entspräche das einer Geschwindigkeit von 260 m/s. Die minimalste Temperatur, die mit einfachen Methoden der Laserkühlung zu erreichen ist, ist das Rückstoßlimit. Könnte man die Atome auf dieses Limit kühlen, dann hätten diese nur noch eine Temperatur von 0,64 mK, entsprechend einer Geschwindigkeit von 3,3 m/s. Dies ist annähernd vier Größenordnungen geringer als die Ausgangstemperatur und gibt die Voraussetzung für weitere Kühlmethode, wie z. B. evaporatives Kühlen.

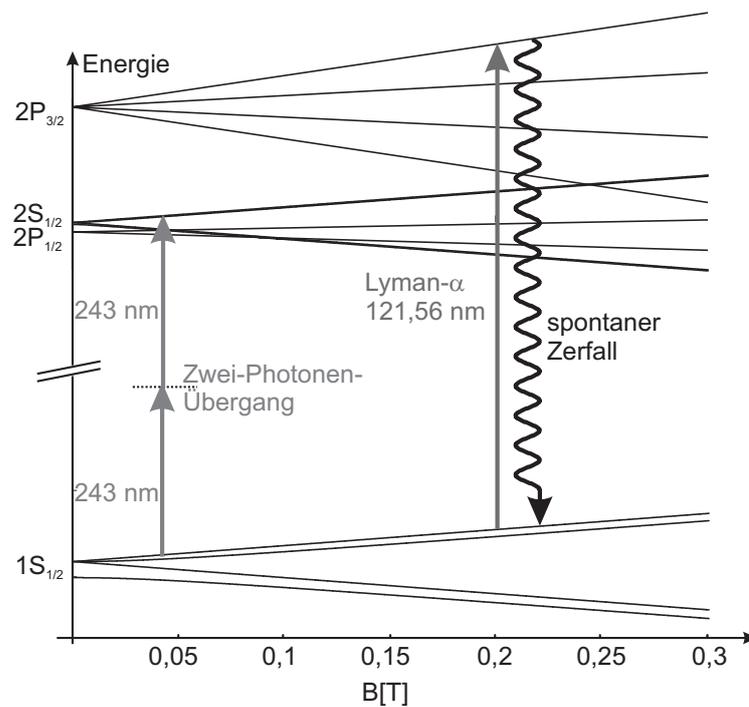


Abbildung 1.2: Niveaustuktur von (Anti)wasserstoff im Magnetfeld. Eingezeichnet sind der Zwei-Photonen-Übergang zur Präzisionsspektroskopie und der Lyman- α -Übergang, der sowohl zur Laserkühlung in einem geschlossenen Zyklus als auch zur Shelving-Spektroskopie genutzt werden kann.

Laserkühlung von Antiwasserstoff mit gepulster Lyman- α -Strahlung wurde von einigen Autoren diskutiert [Ert88], [Let88],[All93], [Wal93], [Phi93]. Zu dieser Zeit gab es noch keine kontinuierliche, sondern nur gepulste Quel-

len für Lyman- α -Strahlung. Typische gepulste Quellen bei Lyman- α haben Pulslängen von einigen Nanosekunden. Die Lebensdauer des 2P-Niveaus beträgt 1,6 ns. Somit können gepulste Lyman- α -Quellen nur ein paar Anregungen pro Puls erreichen. Laserkühlung wird damit effektiv durch die Pulswiederholrate limitiert. Dennoch ist Laserkühlung von Wasserstoff mit gepulster Lyman- α -Strahlung demonstriert worden [Set93]. Die Dauer, ein atomares Gas von 80 mK auf 8 mK zu kühlen, betrug 15 min [Set93]. Weiterhin haben gepulste Quellen spektrale Bandbreiten von etwa 100 MHz. Die spektrale Breite einer kontinuierlichen Quelle ist sehr viel kleiner, so dass die Anregung in die magnetischen Unterniveaus selektiv erfolgen kann und damit Verluste durch optisches Pumpen in ungefangene magnetische Unterzustände verhindert werden.

Eine schmalbandige kontinuierliche Lyman- α -Quelle wird also benötigt, um die Spektroskopie und Laserkühlung so effektiv wie möglich zu machen. Obwohl in den letzten 20 Jahren gezeigt wurde, dass es möglich ist, gepulste Lyman- α -Quellen aufzubauen, ist es erst vor kurzem gelungen eine kontinuierliche, kohärente Lyman- α -Quelle zu realisieren [Eik99].

Für die Erzeugung der Strahlung bei Lyman- α wurden bisher gepulste Laser mit hoher Leistung benutzt, um die nichtlineare Wechselwirkung dritter Ordnung zu treiben. Von der Erzeugung kohärenter VUV-Strahlung in der Region um Lyman- α wurde zum ersten Mal von Batishche et al. [Bat77] und dann auch von Mahon et al. [Mah78], Cotter [Cot79] und Wallenstein [Wal80] berichtet, die durch nicht-resonante Frequenzverdreifung von gepulsten Farbstofflasern in Kryptongas Spitzenleistungen von bis zu 60 W bei Lyman- α erreichten. In allen Experimenten wurden die fundamentalen Laserstrahlen stark fokussiert und der Druck des Kryptongases so variiert, dass damit die Phasenanpassung zwischen dem eingestrahlteten und dem erzeugten Licht optimiert und damit die erzeugte Leistung maximiert wurde.

Über weitere Entwicklungen in dieser Region wurde bald von Batishche et al. [Bat81], Mahon et al. [Mah80], Hilbig und Wallenstein [Hil81a] und Langer et al. [Lan80] berichtet. In diesen Experimenten wurde die Phasenanpassung über das Hinzufügen eines Puffergases optimiert, so dass die Effizienz zur Erzeugung der VUV-Strahlung um ein bis zwei Größenordnungen verbessert werden konnte. Hilbig und Wallenstein erreichten darüber hinaus eine große Durchstimmpbarkeit in dem Bereich von 110–130 nm [Hil82].

Metalldämpfe bieten atomare Resonanzen, die mittels sichtbarem Laser-

licht erreicht werden können. Diese Resonanzen können zur Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität eines Vier-Wellen-Mischprozesses genutzt werden.

Atomares Magnesium ist wegen breiter Absorptionsbanden im Kontinuum und wegen des auto-ionisierenden Niveaus in der Nähe von 127 nm ein viel versprechender Kandidat für Vier-Wellen-Mischen. McKee et al. benutzten KrF-Laser-gepumpte Farbstofflaser, um durch resonantes Vierwellen-Mischen in Magnesiumdampf durchstimmbare kohärente VUV-Strahlung von 121–129 nm zu erzeugen, indem sie die resonante Überhöhung des breiten autoionisierenden Niveaus ausnutzten [McK78].

Jamroz et al. benutzten Zinkdampf, um durch resonantes Vier-Wellen-Mischen von XeCl- beziehungsweise KrF-Laser-gepumpten Farbstofflasern durchstimmbare Strahlung von 106–140 nm zu erzeugen [Jam82].

Weiterhin wurde von der Erzeugung kohärenter Lyman- α -Strahlung durch resonantes Vier-Wellen-Mischen in Beryllium berichtet [Mah79].

Quecksilberdampf stellte sich als sehr effizientes Medium für resonantes Vier-Wellen-Mischen heraus, um durchstimmbare VUV-Strahlung in der Region um Lyman- α zu erzeugen. Sowohl Tomkins und Mahon [Tom82a], [Tom82b] als auch Hilbig und Wallenstein [Hil83] verwendeten die zweite und dritte Harmonische von Nd:YAG-Lasern um Farbstofflaser zu pumpen. Die Ausnutzung einer Zwei-Photonen-Resonanz und die Tatsache, dass Lyman- α in der Nähe einer Resonanz liegt, führte zu sehr effizienter Erzeugung von Lyman- α -Strahlung. Phasenanpassung wurde über den Druck des Puffergases Helium beziehungsweise Krypton vorgenommen.

Definiert man die Konversionseffizienz als Quotient aus erzeugter und eingestrahelter Leistungen $C = \mathcal{P}_4/(\mathcal{P}_1\mathcal{P}_2\mathcal{P}_3)$, beschreibt dieser Parameter sowohl die Nichtlinearität (nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$) als auch die Phasenanpassung zwischen erzeugtem und eingestrahlttem Licht. Die Konversionseffizienzen der oben beschriebenen Experimente sind, soweit das möglich ist, in Tabelle 1.1 zusammengefasst. Diese Tabelle gibt, zwar nicht ganz eindeutig, wieder, dass durch die Verwendung eines Puffergases zur Phasenanpassung und durch die Ausnutzung von atomaren Resonanzen die höchsten Konversionseffizienzen erreicht werden können.

Die sehr kleinen Parameter C werden in den oben beschriebenen Experimenten dadurch ausgeglichen, dass die Spitzenleistungen der eingestrahelten La-

Tabelle 1.1: Übersicht der im Text beschriebenen Prozesse mit den jeweiligen Konversionseffizienzen (soweit in der Literatur zu finden); 3ν : Frequenzverdreifung; VWM: Vier-Wellen-Mischen; PhA: Phasenanpassung über Puffergas.

Medium	Leistung bei Lyman- α	C [W^{-2}]	Referenz
Kr, 3ν	k.A.	k.A.	[Bat77]
Kr, 3ν	60 W	$1,6 \times 10^{-18}$	[Mah78]
Kr, 3ν	5 W	$1,4 \times 10^{-16}$	[Cot79]
Kr, 3ν	2,2 W	1×10^{-17}	[Wal80]
Kr, 3ν , PhA mit Ar	k.A.	k.A.	[Lan80]
Kr, 3ν , PhA mit Xe, Ar, N_2	10 W	$1,7 \times 10^{-17}$	[Bat81]
Kr, 3ν , PhA mit Ar, Xe	1,8 kW	$4,9 \times 10^{-17}$	[Mah80]
Kr, 3ν , PhA mit Ar	16 W	$1,3 \times 10^{-16}$	[Hil81a]
Kr, VWM, resonant	4 W	$1,2 \times 10^{-18}$	[Hil82]
Mg, VWM, resonant	$2,3 \times 10^{-2}$ W	9×10^{-14}	[McK78]
Zn, VWM, resonant	k.A.	k.A.	[Jam82]
Be, VWM, resonant	k.A.	k.A.	[Mah79]
Hg, VWM, resonant	$2 \times 10^9 \frac{\text{Photonen}}{\text{Puls}}$	k.A.	[Tom82a]
Hg, VWM, resonant, PhA mit Kr	150 W	1×10^{-16}	[Hil83]

ser sehr gross (\sim MW) sind. Dies ist bei kontinuierlichen Lasern nicht möglich; abstimmbare, kontinuierliche Laser haben typischerweise Leistungen von bis zu einem Watt. Die gepulsten Laser bei den oben beschriebenen Prozessen einfach durch kontinuierliche zu ersetzen, würde die Rate der VUV-Erzeugung auf unter ein Photon pro Sekunde reduzieren. Für die Detektion und die Laserkühlung von Antiwasserstoff werden aber mindestens 10 nW benötigt ($\hat{=}$ 10^{10} Photonen pro Sekunde).

Die Lösung besteht darin, ein Medium zu wählen, dessen Niveaustruktur Resonanzen zur Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität bietet, und alle Wellenlängen, die am Mischprozess beteiligt sind, so zu wählen, dass sie auf oder in der Nähe von atomaren Resonanzen liegen. Metaldämpfe haben die entsprechenden Niveaustrukturen, um diesen Ansatz zu realisieren.

So gelang es Freeman et al. 1978 erstmals, kontinuierliche Strahlung im VUV bei einer Wellenlänge von 170 nm durch resonantes Vier-Wellen-Mischen in Strontiumdampf zu erzeugen [Fre78]. Ein Farbstofflaser wurde benutzt, um die Bedingung für eine Zwei-Photonen-Resonanz zu erfüllen. Für das dritte Laserlichtfeld wurde ein Argon-Ionen-Laser fester Frequenz verwendet. Durch Anlegen eines starken Magnetfeldes wurden die magnetischen Unterzustände des autoionisierenden Niveaus so verschoben, dass die Verstimmung zur Frequenz des Argon-Ionen-Lasers verkleinert werden konnte und so die Leistung der erzeugten VUV-Strahlung wesentlich gesteigert wurde.

Timmermann und Wallenstein erreichten durch resonante Frequenzverdrehung in Magnesiumdampf schmalbandige kontinuierliche Strahlung bei einer Wellenlänge von 143,6 nm [Tim83]. Die Leistung des erzeugten Lichtes wurde durch die Zugabe eines Puffergases optimiert.

Eine enorme Konversionseffizienz von $C \sim 10^{-2} \text{ W}^{-2}$ erreichten Bolotskikh et al. durch resonantes Vier-Wellen-Mischen in Natriumdampf [Bol84]. Die erzeugte Wellenlänge lag dort bei 268 nm.

Nolting et al. untersuchten resonantes Vier-Wellen-Mischen in den Metalldämpfen Strontium, Kalzium, Magnesium und Zink und erreichten damit durchstimmbare kontinuierliche VUV-Strahlung in der spektralen Region von 133–217 nm [Nol90].

Mit der Wahl von Quecksilber als nichtlinearem Medium ist es 1999 erstmals gelungen, kontinuierliche kohärente Strahlung bei Lyman- α zu erzeugen [Eik99]. Durch resonantes Vier-Wellen-Mischen, wobei auch der erste Schritt des Vier-Wellen-Misch-Prozesses in der Nähe einer Resonanz gewählt wurde, konnte eine Leistung von bis zu 0,5 nW bei Lyman- α erzeugt werden. Dies entspricht einer Konversionseffizienz von $C = 1,1 \times 10^{-8} \text{ W}^{-2}$.

Inzwischen konnte mit dieser Lyman- α -Quelle eine Leistung von bis zu 20 nW erreicht werden. Damit konnte dann erstmals der 1S–2P-Übergang von atomarem Wasserstoff mit annähernd natürlicher Linienbreite gemessen werden [Eik01].

Die vorliegende Arbeit beschreibt sowohl theoretisch als auch experimentell diese Lyman- α -Quelle. In Kapitel 2 wird das Prinzip des Vier-Wellen-Mischens erläutert. Es wird gezeigt, dass sich mithilfe von Vier-Wellen-Mischung in Quecksilberdampf abstimmbare, kontinuierliche, kohärente Strahlung bei Lyman- α erzeugen lässt. Kapitel 3 behandelt die Spektroskopie mit dem er-

zeugen Licht bei Lyman- α an einem Wasserstoffstrahl. Im folgenden Kapitel 4 wird die Möglichkeit diskutiert, wie die Linienbreite der Lyman- α -Strahlung mittels Mischen der 2S- und 2P-Zustände von Wasserstoff gemessen werden kann. Ausblickend werden in Kapitel 5 mögliche Verbesserungen der Lyman- α -Quelle behandelt.

Kapitel 2

Erzeugung von kontinuierlicher kohärenter VUV–Strahlung bei Lyman– α

2.1 Vier–Wellen–Mischen in Quecksilber

Bei dem in dieser Arbeit beschriebenen Experiment wird ein Vier–Wellen–Mischprozess in Quecksilberdampf untersucht. Dabei werden drei Lichtfelder mit unterschiedlichen Frequenzen in ein nichtlineares Medium gestrahlt. Die Frequenz des entstehenden vierten Feldes entspricht der Summe der einzelnen Frequenzen. Dieser Prozess ist schematisch in Abbildung 2.1 dargestellt.

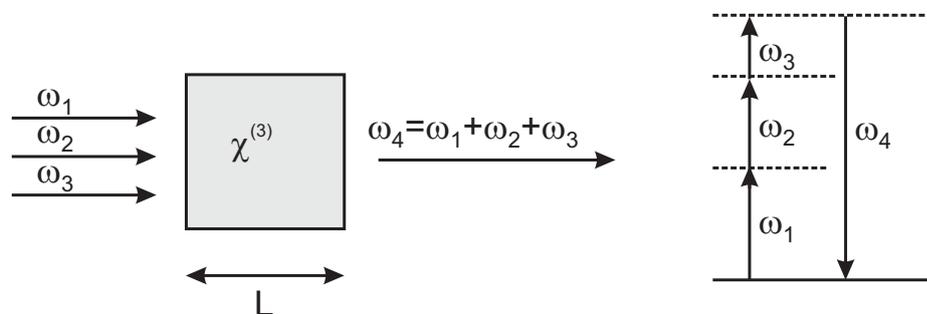


Abbildung 2.1: Vier–Wellen–Mischprozess mit Summenfrequenzbildung. Das nichtlineare Medium wird durch $\chi^{(3)}$ beschrieben.

In diesem Kapitel werden allgemeine Grundlagen zur nichtlinearen Optik im Hinblick auf Vier-Wellen-Mischung mit Summenfrequenzbildung in atomarem Quecksilberdampf beschrieben. Ausgehend von den Maxwellgleichungen wird die nichtlineare Wellengleichung hergeleitet, aus der sich dann mit der nichtlinearen Polarisation die Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik ergibt. Das erzeugte Feld lässt sich dann daraus berechnen. Um einen optimalen Energieübertrag zwischen den eingestrahnten Feldern und dem erzeugten Feld zu erreichen, müssen die Phasengeschwindigkeiten der eingestrahnten Felder auf die Phasengeschwindigkeit des erzeugten Feldes abgestimmt sein. Eine allgemeine Herleitung der Phasenanpassung für fokussierte Gauß-Strahlen findet man in Abschnitt 2.1.2. Darauf folgend wird das Phasenanpassungsintegral für endliche Wechselwirkungslängen beschrieben. Dann wird speziell der Summenfrequenz-Mischprozess in Quecksilberdampf erläutert, der in unserem Experiment verwendet wird. Dabei wird die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung in Quecksilber hergeleitet. Es folgt die Berechnung des Phasenanpassungsintegrals über die lineare Suszeptibilität für das nichtlineare Medium Quecksilber. Abschließend wird die Wellenlängenabhängigkeit der erzeugten Strahlung in der Umgebung von Lyman- α berechnet.

2.1.1 Herleitung der Fundamentalgleichung der Nichtlinearen Optik

Die Grundlage für die Beschreibung der Wechselwirkung von Licht und Materie in der klassischen Physik sind die Maxwellgleichungen

$$\begin{aligned} \nabla \vec{E} &= 0 & \nabla \vec{B} &= 0 \\ \nabla \times \vec{E} &= -\frac{\partial}{\partial t} \vec{B} & \nabla \times \vec{H} &= \frac{\partial}{\partial t} (\epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}), \end{aligned} \quad (2.1)$$

\vec{E} ist das elektrische Feld, \vec{P} die elektrische Polarisation, ϵ_0 die elektrische Feldkonstante, und die magnetische Induktion \vec{B} ist über die Permeabilität μ_0 mit dem magnetischen Feld \vec{H} über

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} \quad (2.2)$$

verknüpft, wobei, wie in der Optik meist üblich, nicht-magnetisierbare Materie im strom- und ladungsfreien Raum angenommen werden kann.

Läuft eine elektromagnetische Welle mit der Frequenz ω durch ein nichtlineares Medium, so bildet sich eine Polarisation \vec{P} aus, die man in einen linearen und einen nichtlinearen Anteil aufspalten kann:

$$\vec{P} = \vec{P}^{\text{L}} + \vec{P}^{\text{NL}}, \quad (2.3)$$

wobei $\vec{P}^{\text{L}} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}$ die lineare Polarisation ist. Aus dem allgemeinen Zusammenhang zwischen dem komplexen Brechungsindex n und der Suszeptibilität $\chi^{(1)}$

$$n^2 = 1 + \chi^{(1)}, \text{ wobei} \quad (2.4)$$

$$n = n' + i \frac{c}{2\omega} \alpha \quad (2.5)$$

gilt, ergibt sich der Brechungsindex n' und die Absorption α zu:

$$n' = 1 + \frac{1}{2} \text{Re}[\chi^{(1)}] \quad (2.6)$$

$$\alpha = \frac{\omega}{c} \text{Im}[\chi^{(1)}], \quad (2.7)$$

wobei die Näherung $n = 1 + \frac{1}{2} \chi^{(1)}$ für verdünnte Gase gemacht wurde und c die Vakuum-Lichtgeschwindigkeit ist.

\vec{P}^{NL} beschreibt die nichtlineare Polarisation und kann als Reihenentwicklung in \vec{E} geschrieben werden:

$$\vec{P}^{\text{NL}} = \epsilon_0 (\chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots), \quad (2.8)$$

dabei sind die nichtlinearen Suszeptibilitäten i -ter Ordnung $\chi^{(i)}$ Tensoren vom Rang $(i + 1)$. Aus Symmetriegründen sind in isotropen Medien die $\chi^{(i)}$ mit gerader Ordnung Null. Dies gilt also auch in Gasen, die im Weiteren behandelt werden. Beiträge von Prozessen höherer Ordnung ($\chi^{(5)}$, $\chi^{(7)}$, ...) sind klein und werden daher vernachlässigt. Daraus folgt, dass nur nichtlineare Prozesse dritter Ordnung, so genannte $\chi^{(3)}$ -Prozesse, betrachtet werden müssen. \vec{P}^{NL} lautet dann in Tensorschreibweise

$$P_i^{\text{NL}} = \epsilon_0 \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l, \text{ mit } i, j, k, l \in \{x, y, z\}. \quad (2.9)$$

$\chi_{ijkl}^{(3)}$ ist ein Tensor vierten Ranges und besteht aus 81 Komponenten, die aber aus Symmetriegründen nicht voneinander unabhängig und nur 21 Komponenten von Null verschieden sind. Eine ausführliche Betrachtung der einzelnen Komponenten von $\chi_{ijkl}^{(3)}$ findet man z. B. in [Boy92].

In unserem Experiment haben alle Lichtfelder dieselbe Polarisation. Betrachtet man nur linear polarisierte Felder in x -Richtung, ist nur die Tensorkomponente $\chi_{xxxx}^{(3)}$ relevant. Im Folgenden werden die Koordinaten-Indizes weggelassen, somit gilt $E = E_x$ und $\chi^{(3)} = \chi_{xxxx}^{(3)}$.

$\chi^{(3)}$ - Prozesse sind also Prozesse, bei denen durch maximal drei einlaufende Felder ein viertes erzeugt wird, dessen Frequenz sich aus der Kombination der Frequenzen der einlaufenden Felder ergibt. Bei Vier-Wellen-Mischung mit Summenfrequenzbildung, auf die ich mich im Folgenden beschränken werde, gilt

$$\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3. \quad (2.10)$$

Ausgehend von den Maxwell-Gleichungen (2.1) und Gl.(2.2) ergibt sich in einem isotropen Medium oder in Medien mit kubischer Symmetrie die nichtlineare Wellengleichung zu

$$\Delta \vec{E} - \frac{(1 + \chi^{(1)})}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}^{\text{NL}}, \quad (2.11)$$

wobei \vec{P}^{NL} der nichtlineare treibende Term ist. Verschwindet die rechte Seite von Gl.(2.11), so ergeben sich die Lösungen der homogenen Wellengleichung für Felder E_j der Frequenzen bei ω_j zu $E_j(z, t) = \frac{1}{2} E_j e^{-i(\omega_j t - k_j z)} + c.c.$, wobei E_j konstant sind. Mit einem nichtlinearen treibenden Term wird die Amplitude langsam entlang der Koordinate z variieren. Die allgemeine Lösung erhält man durch Fourierreihenansatz, wobei ebene Wellen, die sich in z -Richtung ausbreiten, und lineare Polarisation in x -Richtung angenommen werden ($\vec{E} = E \vec{e}_x$ und $\vec{P} = P \vec{e}_x$):

$$E = \frac{1}{2} \sum_i E_i(z, \omega_i) e^{-i(\omega_i t - k_i z)} + c.c., \quad (2.12)$$

$$P^{\text{NL}} = \frac{1}{2} \sum_j P_j(z, \omega_j) e^{-i\omega_j t} + c.c.. \quad (2.13)$$

Eine spezielle Lösung ergibt sich für den Fall der Summenfrequenzbildung (2.10) aus drei einlaufenden Feldern mit

$$E(z, t) = \frac{1}{2} (E_1 e^{-i(\omega_1 t - k_1 z)} + E_2 e^{-i(\omega_2 t - k_2 z)} + E_3 e^{-i(\omega_3 t - k_3 z)} + c.c.). \quad (2.14)$$

Für den nichtlinearen treibenden Term erhält man mit Gl.(2.9):

$$P^{\text{NL}} = \frac{1}{2} P_4 e^{-i\omega_4 t} = \frac{6}{8} \epsilon_0 \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3 e^{-i[(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)t - (k_1 + k_2 + k_3)z]}. \quad (2.15)$$

Berechnet man aus der nichtlinearen Wellengleichung das erzeugte Feld $E = \frac{1}{2}E_4(z)e^{-i(\omega_4 t - k_4 z)} + c.c.$, so ergibt sich die Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik:

$$\frac{\partial E_4}{\partial z} = \frac{i\omega_4}{2n_4\epsilon_0 c} P_4 e^{-ik_4 z}. \quad (2.16)$$

Dabei wird die Näherung der langsam variierenden Amplitude (im Englischen slowly-varying amplitude approximation) gemacht, bei der davon ausgegangen wird, dass die Änderung der Amplitude in z -Richtung kleiner als die Wellenlänge ist und damit $\frac{\partial^2 E_4}{\partial z^2}$ gegenüber $k_4 \frac{\partial E_4}{\partial z}$ vernachlässigt werden kann.

Setzt man Gl.(2.15) für P^{NL} ein, erhält man

$$\frac{\partial E_4}{\partial z} = \frac{3i\omega_4}{4n_4 c} \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3 e^{-i\Delta k z} \quad \text{mit} \quad (2.17)$$

$$\Delta k = k_4 - (k_1 + k_2 + k_3), \quad (2.18)$$

wobei Δk die Phasenfehlانpassung ist. Δk hat eigentlich vektoriellen Charakter, wird aber bei kollinear laufenden Wellen üblicherweise als Skalar behandelt. In dem Grenzfall, in dem das erzeugte Feld E_4 klein ist, nimmt man an, dass die fundamentalen Felder durch den Mischprozess keine Absorption erfahren, d. h. sich nicht über z ändern. Dann lässt sich diese Gleichung über die Länge L des nichtlinearen Mediums integrieren (vgl. Abbildung 2.1) und man erhält

$$E_4(L) = \int_0^L dz \frac{\partial E_4}{\partial z} = \frac{3i\omega_4}{4n_4 c} \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3 \frac{1 - e^{-i\Delta k L}}{i\Delta k}. \quad (2.19)$$

Von weiterem Interesse ist die Intensität der erzeugten Welle:

$$I_4 = \frac{1}{2} \epsilon_0 c n_4 |E_4(L)|^2 \quad (2.20)$$

$$= \frac{9}{32} \frac{\epsilon_0 \omega_4^2 L^2}{n_4 c} |\chi^{(3)}|^2 E_1^2 E_2^2 E_3^2 \frac{\sin^2(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k L}{2})^2}. \quad (2.21)$$

Aus Gl.(2.21) wird ersichtlich, dass die Intensität maximal wird, wenn $\Delta k = 0$ ist. Dieser Fall nennt sich optimale Phasenanpassung und bedeutet, dass die erzeugte Welle eine konstante Phasenbeziehung zu der nichtlinearen Polarisation hat. Die einlaufenden Wellen haben eine Phasengeschwindigkeit $\frac{\omega_i}{k_i}$. Dies führt zu einer „Polarisations-Welle“¹, deren Phase sich wie $\frac{\omega_1}{k_1} + \frac{\omega_2}{k_2} + \frac{\omega_3}{k_3}$

¹die Polarisation bewegt sich nicht im Raum fort

im Raum verändert. Die erzeugte Welle hat die Phasengeschwindigkeit $\frac{\omega_4}{k_4}$. Eine konstante Phasenbeziehung zwischen nichtlinearer Polarisation und erzeugter Welle, also gleiche Phasengeschwindigkeiten, ist mit (2.10) nur gegeben, wenn $\Delta k = k_4 - (k_1 + k_2 + k_3) = 0$ erfüllt ist. Damit findet maximaler Energieübertrag von den einlaufenden Wellen auf die erzeugte Welle statt. Mikroskopisch betrachtet bedeutet dies, dass die individuellen Dipole, die das Medium ausmachen, in Phase schwingen und die emittierten Felder jeden Dipols sich kohärent aufaddieren.

2.1.2 Fokussierte Gauß-Strahlen

Im vorangegangenen Abschnitt wurde davon ausgegangen, dass es sich bei den am Vier-Wellen-Mischprozess beteiligten Feldern um ebene Wellen handelt. Dabei ist optimale Phasen Anpassung bei $\Delta k = 0$ gegeben. In unserem Experiment wird jedoch mit fokussierten Laserstrahlen gearbeitet, die näherungsweise Gauß-förmiges Strahlprofil haben. Man muss also in Gl.(2.14) für die drei einlaufenden Felder Gauß-Strahlen annehmen:

$$E_i(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} E_i(\vec{r}) e^{-i(\omega_i t - k_i z)} + c.c. \quad (2.22)$$

mit den ortsabhängigen Amplituden

$$E_i(\vec{r}) = E_{i0} \frac{b}{b + 2iz} e^{-\frac{k_i r^2}{b + 2iz}}. \quad (2.23)$$

Der konfokale Parameter b ist über $b = kw_0^2$ mit der Strahltaile w_0 verknüpft. In Abbildung 2.2 ist die Gaußsche Grundmode mit den typischen Parametern dargestellt. Man erkennt, dass das Feld eine radiale Symmetrie um die z -Achse besitzt. Die gesamte Leistung \mathcal{P} ergibt sich durch Integration über das Strahlprofil:

$$\mathcal{P}_i = \frac{1}{2} \epsilon_0 c n_i 2\pi \int_0^\infty dr r |E_i(r)|^2 \quad (2.24)$$

$$= \frac{\pi \epsilon_0 c n_i b}{4k_i} |E_{0i}|^2 \quad (2.25)$$

Es wird angenommen, dass die einlaufenden Felder E_1 , E_2 und E_3 kollinear sind und identische konfokale Parameter haben. Mit der Annahme, dass man sich im Grenzfall kleiner Intensität der erzeugten Welle befindet, ergibt sich, dass der erzeugte Strahl auch denselben konfokalen Parameter hat und

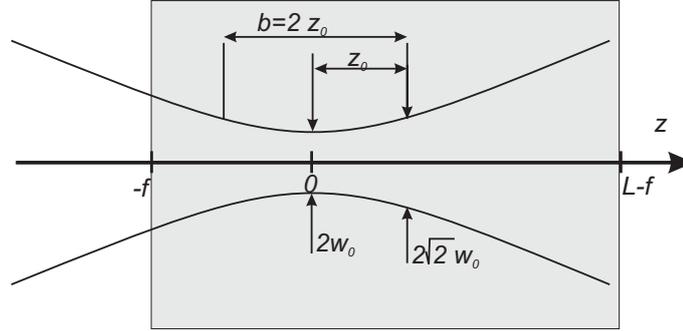


Abbildung 2.2: Fokussierung in das nichtlineare Medium. Gezeigt ist eine Gaußsche Grundmode mit den bestimmenden Parametern w_0 (Strahltaile) und b (konfokaler Parameter). Die Rayleighlänge z_0 wird durch die Aufweitung des Strahls auf $\sqrt{2}w_0$ gegeben. Das homogene Dichteprofil erstreckt sich von $z = -f$ bis $z = L - f$.

kollinear zu den einfallenden läuft [Vid92]. Die Phasenfehlanpassung Δk kann somit als Skalar angenommen werden. Es wird weiterhin angenommen, dass $\Delta k \ll k_i$ ist [Vid92]. Die Amplitude des erzeugten Lichtfeldes lässt sich für die Summenfrequenzbildung dann schreiben als [Bjo75]:

$$E_4(L) = i \frac{3}{2} \pi \frac{k_4}{n_4} \chi^{(3)} E_{10} E_{20} E_{30} \frac{b^2 e^{ik'L}}{b + 2iL} e^{-\frac{k'r^2}{b+2iL}} F(b\Delta k), \quad (2.26)$$

wobei $k' = k_1 + k_2 + k_3$ ist. $F(b\Delta k)$ ist das Phasenanpassungsintegral und lässt sich annähern durch [Bjo75]

$$F(b\Delta k, b/L) = \int_{-f}^{L-f} dz \frac{2b e^{-i\Delta kz}}{(b + 2iz)^2}, \quad (2.27)$$

wobei f die Position des Fokus in Strahlrichtung ist. Es wurde dabei ein homogenes Dichteprofil

$$N(z) = \begin{cases} N & \text{für } -f < z < L - f \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (2.28)$$

angenommen (siehe Abbildung 2.2).

Die Leistung des erzeugten Lichtfeldes lässt sich mit den Annahmen, die oben gemacht wurden, zu

$$\mathcal{P}_4 = \frac{9}{4} \frac{\omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4}{\pi^2 \epsilon_0^2 c^6} |\chi^{(3)}|^2 \mathcal{P}_1 \mathcal{P}_2 \mathcal{P}_3 |F(b\Delta k)|^2 \quad (2.29)$$

berechnen [But90].

Im Grenzfall stark fokussierter Strahlen ist der konfokale Parameter sehr viel kleiner als die Länge des nichtlinearen Mediums ($b \ll L$) und die Grenzen des Phasenanpassungsintegrals können durch $-\infty$ und $+\infty$ ersetzt werden. Dieser Ausdruck lässt sich dann analytisch lösen:

$$\begin{aligned} |F(b\Delta k)|^2 &= \left| \int_{-\infty}^{\infty} dz \frac{2b e^{-i\Delta k z}}{(b + 2iz)^2} \right|^2 \\ &= \begin{cases} 0 & \text{für } b\Delta k > 0 \\ \pi^2 (b\Delta k)^2 e^{b\Delta k} & \text{für } b\Delta k < 0. \end{cases} \end{aligned} \quad (2.30)$$

$|F(b\Delta k)|^2$ ist in Abbildung 2.3 dargestellt. Das Phasenanpassungsintegral wird

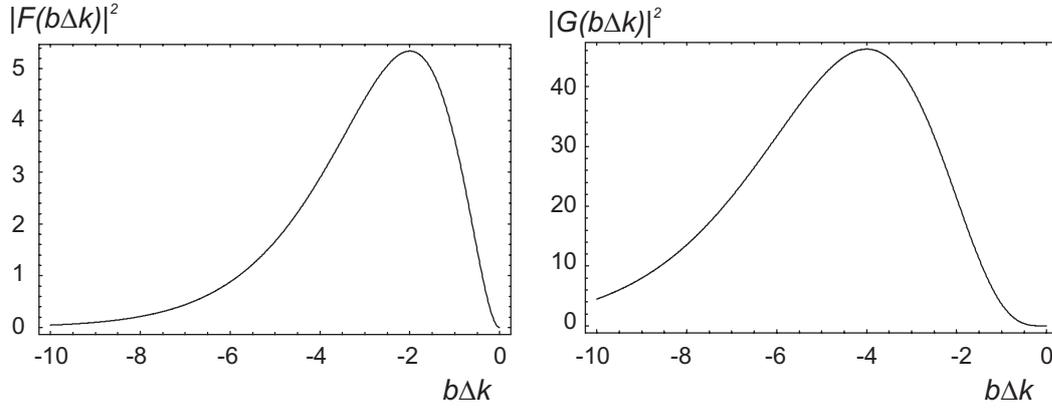


Abbildung 2.3: Phasenanpassungsintegrale $|F(b\Delta k)|^2$ und $|G(b\Delta k)|^2$

maximal bei $b\Delta k = -2$. Die Abweichung von der optimalen Phasenanpassung von $b\Delta k = 0$ für ebene Wellen lässt sich folgendermaßen erklären: Im Fokus (bei $z = 0$) erfahren die einfallenden Strahlen eine Phasenverschiebung von π . Schreibt man $\left(\frac{b}{b+2iz}\right)$ um:

$$\frac{1}{1 + 2i\frac{z}{b}} = \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{2z}{b}\right)^2}} e^{-i \arctan\left(\frac{2z}{b}\right)} \quad (2.31)$$

erkennt man, dass diese zusätzliche Phase von $+\pi/2$ bei $z = -\infty$ über 0 bei $z = 0$ nach $-\pi/2$ bei $z = +\infty$ geht. Daraus resultiert destruktive Interferenz der in dem Medium entlang der z -Achse entstehenden Welle, wenn dieser Phasensprung nicht durch eine Phasenfehlanspassung kompensiert wird.

Optimale Phasenanpassung bei fokussierten Gauss-Strahlen bei $b\Delta k = -2$ ist aber nur der Fall, wenn man davon ausgeht, dass Δk unabhängig von der

Teilchenzahldichte N ist [Bjo75]. Im Experiment lässt sich dies durch Beimischen eines zweiten Gases erreichen. Die Phasenfehlanpassung Δk und die Teilchenzahldichte N lassen sich dann unabhängig voneinander kontrollieren.

Eine andere Möglichkeit, die Phasenanpassung zu optimieren liegt in der Änderung des Druckes und damit der Teilchenzahldichte des nichtlinearen Mediums. Diese Methode ist allerdings nicht immer anwendbar, da die Dispersion eines Mediums je nach nichtlinearer Wechselwirkung und gegebenen einlaufenden und erzeugter Frequenzen positiv oder negativ sein kann. Im Fall von der Erzeugung von Lyman- α -Strahlung durch Summenfrequenz-Mischen mit den in unserem Experiment gegebenen Wellenlängen der einlaufenden Strahlen, ist die Phasenanpassung über die Anpassung des Druckes möglich. Die Größe der Phasenfehlanpassung Δk wird also durch die Änderung der Teilchenzahldichte N geregelt. Aus der Beziehung zwischen Brechungsindex und Teilchenzahldichte $N \propto (n - 1)$ entnimmt man, dass wegen $k \propto n$ auch Δk abhängig von der Teilchenzahldichte N ist. Der konfokale Parameter b bleibt konstant und N ist ein freier Parameter. Es ist nützlich Gl.(2.29) für diesen Fall umzuschreiben:

$$\mathcal{P}_4 = \frac{9}{4} \frac{\omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4}{\pi^2 \epsilon_0^2 c^6 b^2} \left(\frac{N}{\Delta k} \right)^2 |\chi_a^{(3)}|^2 \mathcal{P}_1 \mathcal{P}_2 \mathcal{P}_3 |G(b\Delta k)|^2, \quad (2.32)$$

wobei $\chi_a^{(3)}$ die nichtlineare Suszeptibilität pro Atom ist, $\frac{N}{\Delta k}$ ist unabhängig von der Teilchenzahldichte, und $|G(b\Delta k)|^2$ ist eine neue Größe, die es zu maximieren gilt [Bjo75]:

$$\begin{aligned} |G(b\Delta k)|^2 &= (b\Delta k)^2 |F(b\Delta k)|^2 \\ &= \begin{cases} 0 & \text{für } b\Delta k > 0 \\ \pi^2 (b\Delta k)^4 e^{b\Delta k} & \text{für } b\Delta k < 0. \end{cases} \end{aligned} \quad (2.33)$$

Wie man aus Abbildung 2.3 ersieht, liegt das Maximum von $|G(b\Delta k)|^2$ bei $b\Delta k = -4$.

Aus Gl.(2.32) wird ersichtlich, dass die Leistung \mathcal{P}_4 größer wird, je kleiner der konfokale Parameter b wird, also je schärfer fokussiert wird. Bei gegebenem b muss die Phasenfehlanpassung Δk so angepasst werden, dass mit $b\Delta k = -4$ das Phasenanpassungsintegral $|G(b\Delta k)|^2$ maximal wird. Dies ist bei kollinearere Anordnung der fundamentalen Strahlen nur durch die Änderung der Brechungsindizes, also über die Änderung der Teilchenzahldichte möglich. In unserem Experiment ist die minimalste Fokussierung durch die Größe der Quecksilberdampfzelle und des maximal möglichen Druckes, wie in Abschnitt 2.2 beschrieben wird, gegeben.

Die Phasenfehlانpassung Δk ist ein wellenlängenabhängiger Parameter und wird durch die Niveaustuktur des nichtlinearen Mediums gegeben. In Abschnitt 2.1.5 wird der Zusammenhang von Δk und $\chi^{(1)}$ hergeleitet, der zur Berechnung des Phasenanpassungsintegrals für Quecksilberdampf benötigt wird.

2.1.3 Phasenanpassungsintegral für endliche Wechselwirkungslängen

Im vorangegangenen Abschnitt wurde das Phasenanpassungsintegral (2.27) beziehungsweise (2.33) für den Fall, dass die Wechselwirkungslänge L groß gegenüber dem konfokalen Parameter ist ($L \gg b$), berechnet. Im Fall unseres Experiments mit $b = 0,16$ cm und $L = 1,5$ cm ist dies eine gute Näherung.

Im Zuge der Planung einer neuen Quecksilberdampfzelle, in der die Wechselwirkungszone im Wesentlichen aus einem Düsenstrahl bestehen soll, muss das Phasenanpassungsintegral

$$G(b\Delta k) = b\Delta k \int_{-f}^{L-f} dz \frac{2b e^{-i\Delta k z}}{(b + 2iz)^2} \quad (2.34)$$

für endliche Wechselwirkungslängen L berechnet werden. Dies lässt sich analytisch nicht mehr lösen.

In Abbildung 2.4 ist $|G(b\Delta k)|^2$ gegenüber der Wechselwirkungslänge L aufgetragen. Dabei wurde angenommen, dass die Foki in der Mitte der Wechselwirkungszone, also bei $L/2$ liegen und dass $(b\Delta k) = -4,2$ ist, was dem experimentellen Wert entspricht. Man erkennt, dass $|G(b\Delta k)|^2$ für grosse Wechselwirkungslängen ($L \rightarrow \infty$) einen konstanten Wert einnimmt. Bei $L = 1,5$ cm beträgt die Abweichung zu diesem Wert etwa 1%, so dass die analytische Lösung des Phasenanpassungsintegrals für unsere experimentellen Parameter eine gute Näherung darstellt und für die Rechnungen, die in Abschnitt 2.1.4 folgen, verwendet werden kann.

Eine weitere Frage, die sich stellt ist, ob $(b\Delta k) = -4$ auch für endliche Wechselwirkungslängen die optimale Phasenanpassung ergibt. Abbildung 2.5 zeigt eine Kurvenschar von Phasenanpassungsintegralen mit verschiedenen Verhältnissen von Wechselwirkungslänge zu konfokalem Parameter als Funktion von $(b\Delta k)$. Man sieht sehr deutlich, dass die Maxima nicht alle bei demselben Wert für $(b\Delta k)$ liegen. Man erkennt weiterhin, dass den Kurven eine

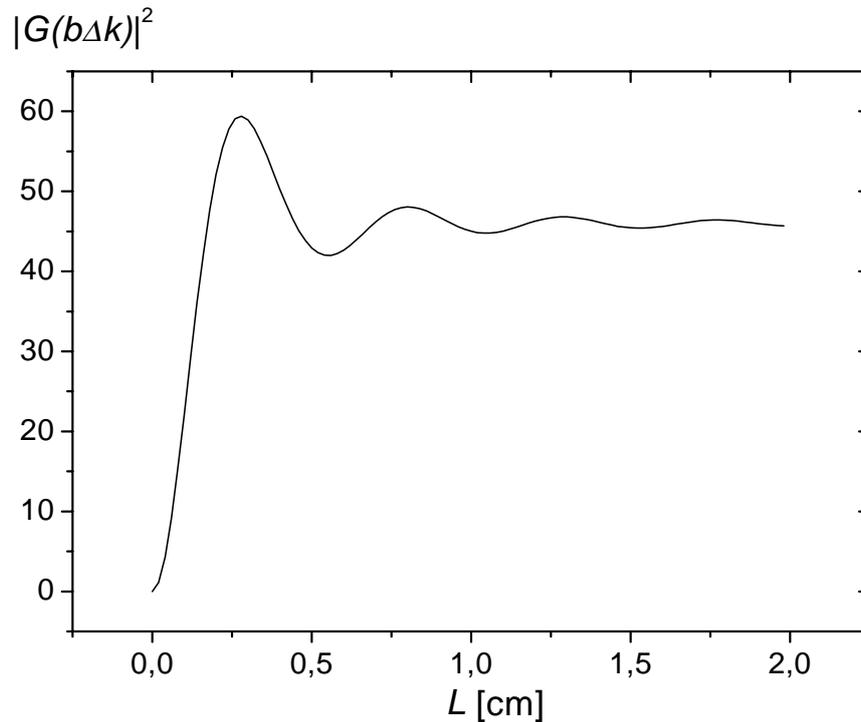


Abbildung 2.4: Abhängigkeit des Phasenanpassungsintegrals $|G(b\Delta k)|^2$ von der Wechselwirkungslänge L für die experimentellen Werte $b = 0,16 \text{ cm}$ und $\Delta k = -26,4 \text{ cm}^{-1}$.

oszillierende Struktur überlagert ist. Für Werte von $L/b > 3$ bildet sich aus dem nebenliegenden Maximum der Oszillation ein zweites globales Maximum der Funktion $|G(b\Delta k)|^2$ aus. Bei $L/b = 3,75$ gibt es zwei Maxima, wobei für noch größere Werte von L/b das zweite Maximum überwiegt. Abbildung 2.5(b) zeigt diese oszillierende Struktur deutlicher sowie das Phasenanpassungsintegral für $L/b = 3,75$, bei dem zwei Maxima auftreten. Dies wird auch noch einmal in Abbildung 2.6 verdeutlicht, bei dem die Maxima und die dazu gehörigen $(b\Delta k)_{\max}$ gegenüber L/b aufgetragen sind. Es ergibt sich, dass das Phasenanpassungsintegral maximal für das Verhältnis von Wechselwirkungslänge und konfokalem Parameter von $L/b = 1,5$ wird. Der Wert von $(b\Delta k)$ ist dabei dann $-4,8$.

Für die Planung einer neuen Quecksilberdampfzelle muss also beachtet werden, dass die Teilchenzahldichte so groß wie möglich wird, damit Δk groß wird und man somit stark fokussieren kann. $(b\Delta k)$ sollte dann $-4,8$ betragen. Bei gegebenen b muss die Wechselwirkungslänge dann so gewählt werden, dass $L = 1,5 \times b$ ist.

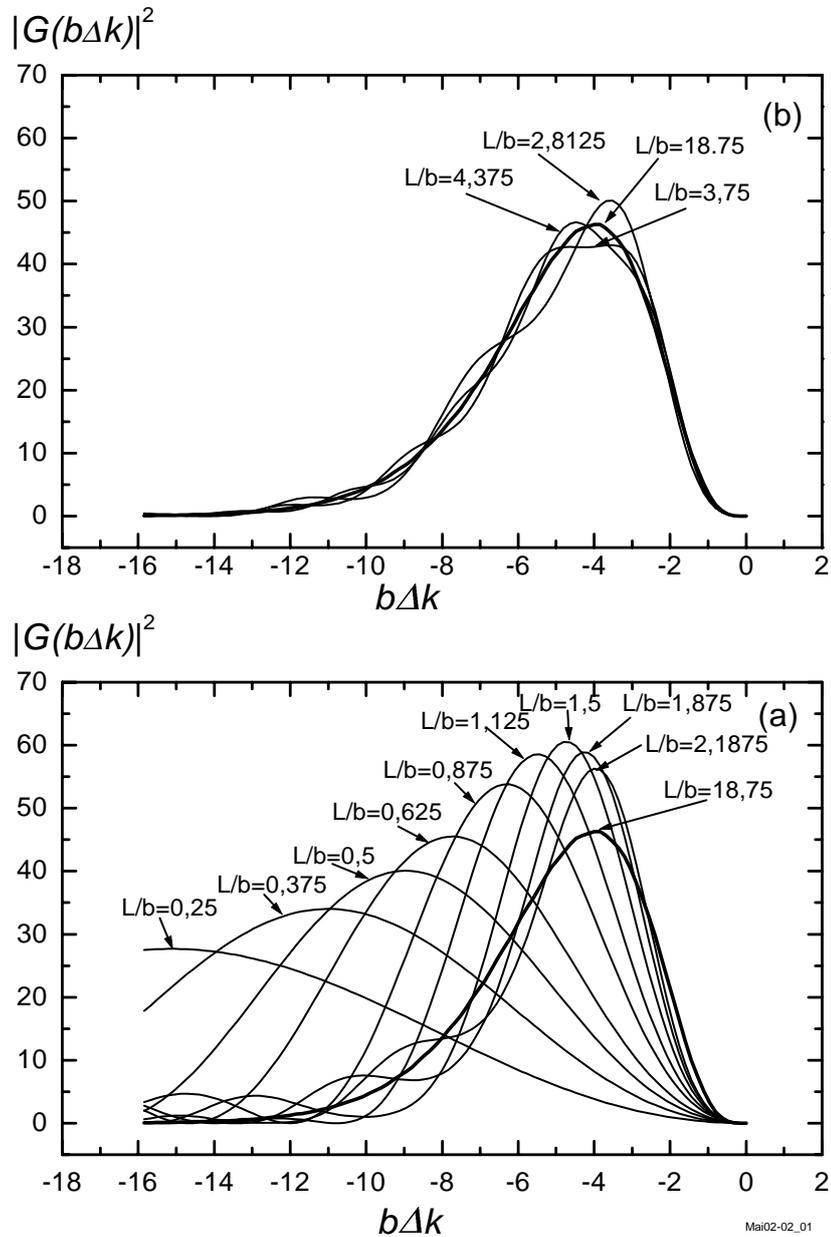


Abbildung 2.5: (a), (b): Phasen Anpassungsintegrale $|G(b\Delta k)|^2$ für verschiedene L/b in Abhängigkeit von $(b\Delta k)$. Die jeweils dicker gezeichneten Linien ($L/b = 18,75$) entsprechen der für unendliche Grenzen analytisch berechneten Kurve aus Abbildung 2.3. (b) verdeutlicht den Wechsel des Maximums bei $L/b = 3,75$ durch die oszillierende Struktur.

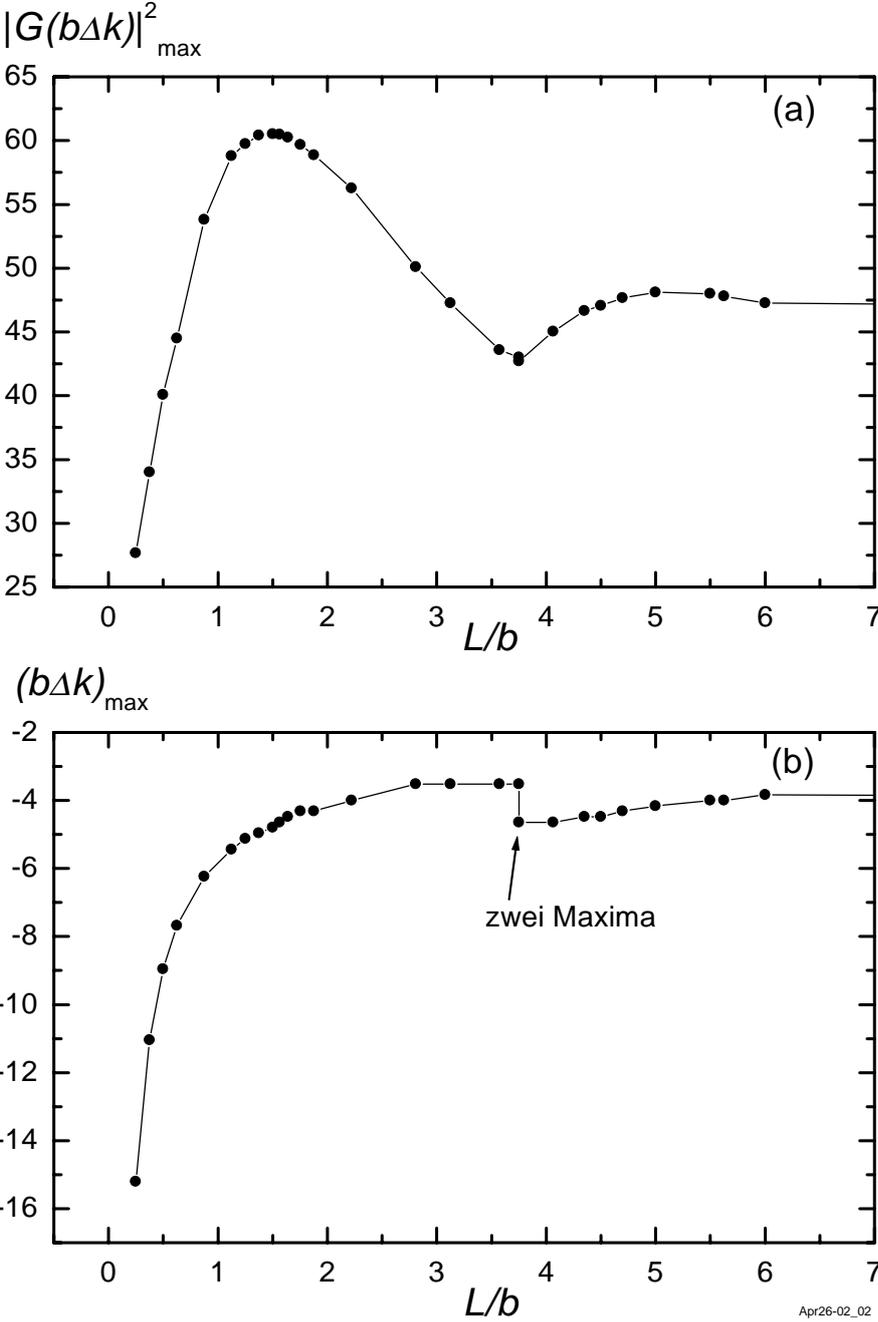


Abbildung 2.6: Aus Abbildung 2.5 übernommene Maxima der Phasenanpassungsintegrale (a) und der dazugehörigen $(b\Delta k)_{\max}$ (b).

Es ist noch darauf hinzuweisen, dass in [Lag87] vergleichbare Rechnungen publiziert wurden, wobei dort allerdings von einem lorentzförmigen Dichteprofil ausgegangen wurde. Dort wurde die oszillierende Struktur auf den Funktionen $|G(b\Delta k)|^2$ für verschiedene L/b nicht beobachtet.

2.1.4 Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität

Die Tensoren der nichtlinearen Suszeptibilität können über die quantenmechanische zeitabhängige Störungstheorie hergeleitet werden. Man ist insbesondere an dem Erwartungswert der nichtlinearen Polarisation \vec{P} interessiert, der sich mittels der Dichtematrix ϱ bestimmen lässt [Vid92]:

$$\vec{P}(t) = N \langle \vec{p} \rangle = N \text{Spur}\{\varrho(t)\vec{p}\} = N \sum_{n,m} \varrho_{nm}(t)\vec{p}_{mn}, \quad (2.35)$$

wobei $\vec{p} = -e\vec{r}$ der elektrische Dipoloperator ist. \vec{p} ist ein Vektor, der aus drei Komponenten p^j besteht, wobei j jeweils den Ortskoordinaten x, y und z entspricht. Die drei Komponenten bestehen bei einem n -Niveau-Atom aus $n \times n$ Matrizen.

Die Zeitabhängigkeit der Dichtematrix ist gegeben durch die von-Neumann-Gleichung

$$\dot{\varrho} = -\frac{i}{\hbar}[H, \varrho] \quad (2.36)$$

mit dem Hamiltonoperator

$$H = H_0 + V, \text{ wobei} \quad (2.37)$$

$$V = -\vec{p}\vec{E} \quad (2.38)$$

ist. V ist der Hamiltonoperator für die Wechselwirkung zwischen Atom und Licht, und H_0 ist der ungestörte Hamiltonoperator, dessen Eigenwerte die Energieniveaus des Atoms sind.

Die Dichtematrix wird störungstheoretisch behandelt:

$$\varrho = \varrho^{(0)} + \varrho^{(1)} + \varrho^{(2)} + \dots \quad (2.39)$$

Die Lösung von Gl.(2.36) erhält man durch Iteration:

$$\begin{aligned} i\hbar\dot{\varrho}^{(0)} &= [H_0, \varrho^{(0)}] \\ i\hbar\dot{\varrho}^{(1)} &= [H_0, \varrho^{(1)}] + [V, \varrho^{(0)}] \\ &\dots \\ i\hbar\dot{\varrho}^{(3)} &= [H_0, \varrho^{(3)}] + [V, \varrho^{(2)}] \\ &\dots \end{aligned} \quad (2.40)$$

Mit den Anfangsbedingungen, dass alle Besetzung im Grundzustand ist, $\varrho_{nm}^{(0)} = \varrho^0$, und alle anderen Terme Null sind, $\varrho_{mn}^{(0)} = 0$, lassen sich $\varrho^{(1)}$, $\varrho^{(2)}$, $\varrho^{(3)}$ usw. damit iterativ berechnen. $\chi^{(1)}$ wird hier exemplarisch aus der Berechnung von $\varrho^{(1)}$ hergeleitet. Die Berechnungen von $\chi^{(2)}$ und $\chi^{(3)}$ erfolgen genauso, sind aber wegen der Vielzahl an Termen mühevoll. Aus Gl.(2.40) ergibt sich

$$i\hbar\dot{\varrho}_{nm}^{(1)} = -\hbar\omega_{mn}\varrho_{nm}^{(1)} + \sum_j p_{nm}^j E_j \varrho_{nn}^0, \quad (2.41)$$

wobei ω_{mn} die Übergangsfrequenz von Niveau m nach Niveau n ist.

Mit dem Fourieransatz

$$\begin{aligned} \varrho_{nm} &= \varrho_{nm}^+ + \varrho_{nm}^- \\ \varrho_{nm}^+ &= \sum_k \varrho_{nm}^+(\omega_k) & \frac{\partial \varrho^+(\omega_k)}{\partial t} &= +i\omega_k \varrho^+(\omega_k) \\ \varrho_{nm}^- &= \sum_k \varrho_{nm}^-(\omega_k) & \frac{\partial \varrho^-(\omega_k)}{\partial t} &= -i\omega_k \varrho^-(\omega_k) \end{aligned} \quad (2.42)$$

ergibt sich bei der Frequenz ω_k

$$\varrho_{nm}^{\pm(1)}(\omega_k) = \frac{\sum_j p_{nm}^j E_j}{\hbar(\mp\omega_k + \omega_{mn})} \varrho_{nn}^0. \quad (2.43)$$

Wegen $P_i^{(1)} = \epsilon_0 \sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j = N \sum_{n,m} \varrho_{nm}^{(1)} p_{mn}^i$ ist

$$P_i^{(1)} = \left(\frac{N}{\hbar} \sum_{n,m} \frac{\sum_j p_{nm}^j p_{mn}^i E_j}{\omega_{mn} - \omega} + \frac{N}{\hbar} \sum_{n,m} \frac{\sum_j p_{nm}^j p_{mn}^i E_j}{\omega_{mn} + \omega} \right) \varrho_{nn}^0 \quad (2.44)$$

und damit

$$\chi_{ij}^{(1)} = \frac{N}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{n,m} \left(\frac{p_{nm}^j p_{mn}^i}{\omega_{mn} - \omega} + \frac{p_{nm}^j p_{mn}^i}{\omega_{mn} + \omega} \right) \varrho_{nn}^0. \quad (2.45)$$

Um die Linienbreite der Niveaus zu berücksichtigen, müssen in den von-Neumann-Gleichungen (2.36) Relaxationsterme phänomenologisch eingeführt werden [She84]. Formal kann man auch die atomaren Übergänge komplex behandeln [But90]:

$$\omega_{ab} \rightarrow \omega_{ab} - i \frac{\Gamma_{ab}}{2}, \quad (2.46)$$

wobei $\Gamma_{ab} > 0$ die natürliche Linienbreite des Niveaus a bei Zerfall in das Niveau b ist. Zusätzlich muss im jeweils zweiten Term von Gl.(2.44) und (2.45) ω_{mn} durch die jeweilige komplex konjugierte Variable ω_{mn}^* ersetzt werden.

$\chi^{(2)}$ und $\chi^{(3)}$ lassen sich äquivalent über $\rho^{(2)}$ beziehungsweise $\rho^{(3)}$ bestimmen. Den allgemeinen Ausdruck für $\chi^{(3)}$ findet man z. B. in [Boy92]. Dieser ist sehr lang und beinhaltet alle Fälle der Vier-Wellen-Mischung mit allen möglichen Polarisationsrichtungen. Mit den Annahmen, die in Abschnitt 2.1.1 an $\chi^{(3)}$ gemacht wurden, soll hier nur der Spezialfall der Summenfrequenzbildung (2.10) mit Berücksichtigung einer Zwei-Photonen-Resonanz behandelt werden. Die Größe der nichtlinearen Suszeptibilität kann erhöht werden, wenn die Frequenzen der eingestrahlten Felder oder die Summe daraus in der Nähe von atomaren Resonanzen liegen. Ein-Photonen-Resonanzen für die Frequenzen ω_1 und ω_3 kommen wegen Absorption der eingestrahlten beziehungsweise der erzeugten Welle nicht infrage. Eine Zwei-Photonen-Resonanz dessen Übergangsfrequenz der Frequenz $\omega_1 + \omega_2$ entspricht, erhöht jedoch die nichtlineare Suszeptibilität, wohingegen die Zwei-Photonen-Absorption, die mit dem Prozess einhergeht, sehr viel kleiner ist. Das dazugehörige Schema ist in Abbildung 2.7 dargestellt.

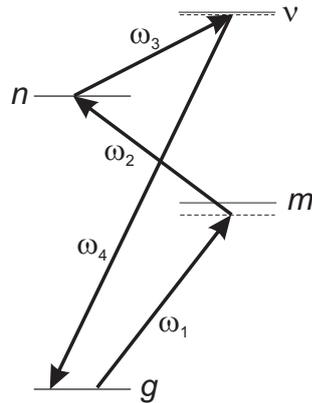


Abbildung 2.7: Mögliche Zweiphotonenresonanz. Über die Zustände m und ν muss summiert werden. g ist der Grundzustand und n der Zwischenzustand, dessen Energie $\hbar\omega_{gn}$ genau der Photonenenergie $\hbar(\omega_1 + \omega_2)$ entspricht.

Die Bedingung der Zwei-Photonen-Resonanz ist erfüllt durch:

$$\begin{aligned}\omega_{gn} &= \omega_1 + \omega_2 \text{ und} \\ \omega_{ng} &= \omega_4 - \omega_3.\end{aligned}\tag{2.47}$$

$\chi^{(3)}$ kann man in einen resonanten und einen nicht-resonanten Term aufspalten, wobei der zweite klein gegenüber dem ersten ist und somit vernachlässigt

wird. $\chi^{(3)}$ lässt sich mit diesen Annahmen schreiben als:

$$\chi^{(3)}(\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3) = \frac{N \varrho^0}{\epsilon_0 \hbar^3} \sum_{m\nu} \left\{ \frac{1}{(\omega_{mg} - \omega_1)(\omega_{ng} - \omega_1 - \omega_2)} \left[\frac{p_{mg} p_{nm} p_{\nu n} p_{g\nu}}{(\omega_{\nu g} - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3)} + \frac{p_{mg} p_{nm} p_{\nu n} p_{g\nu}}{(\omega_{\nu g}^* + \omega_3)} \right] + \frac{1}{(\omega_{mg} - \omega_2)(\omega_{ng} - \omega_2 - \omega_1)} \left[\frac{p_{mg} p_{nm} p_{\nu n} p_{g\nu}}{(\omega_{\nu g} - \omega_2 - \omega_1 - \omega_3)} + \frac{p_{mg} p_{nm} p_{\nu n} p_{g\nu}}{(\omega_{\nu g}^* + \omega_3)} \right] \right\}, \quad (2.48)$$

ϱ^0 ist die Besetzungswahrscheinlichkeit des Grundzustands. Die Besetzungsverteilung auf die Niveaus mit der Energie $\hbar\omega_i$ bei einer Temperatur T ist durch den Boltzmannfaktor $e^{-\frac{\hbar\omega_i}{k_B T}}$ gegeben, wobei k_B die Boltzmannkonstante ist. Da $\hbar\omega_i \gg k_B T$ für alle angeregten Zustände ist, kann man annehmen, dass die Besetzungswahrscheinlichkeit des Grundzustands $\varrho^0 = 1$ ist. Da der Grundzustand von Quecksilber ein S-Zustand ist, muss Entartung nicht berücksichtigt werden. Gleichung (2.48) lässt sich also in diesem Fall noch weiter vereinfachen:

$$\chi^{(3)}(\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3) = \frac{N}{\epsilon_0 \hbar^3} S(\omega_1 + \omega_2) \chi_{12} \chi_{34}, \quad \text{mit} \quad (2.49)$$

$$\chi_{12} = \sum_m \left[\frac{p_{nm} p_{mg}}{(\omega_{mg} - \omega_1)} + \frac{p_{nm} p_{mg}}{(\omega_{mg} - \omega_2)} \right] \quad (2.50)$$

$$\chi_{34} = \sum_\nu \left[\frac{p_{\nu n} p_{g\nu}}{(\omega_{\nu g} - \omega_4)} + \frac{p_{\nu n} p_{g\nu}}{(\omega_{\nu g}^* + \omega_3)} \right] \quad (2.51)$$

$$S(\omega_1 + \omega_2) = \frac{1}{\omega_{ng} - (\omega_1 + \omega_2)}. \quad (2.52)$$

m und ν bezeichnen alle die Niveaus, über die summiert werden muss, das heißt, die jeweils durch einen optischen Dipolübergang erreicht werden können. χ_{12} und χ_{34} sind formal Suszeptibilitäten erster Ordnung. $S(\omega_1 + \omega_2)$ beschreibt die Linienform der Zwei-Photonen-Resonanz, auf die später genauer eingegangen wird.

Die Dipolmatrixelemente $p_{ba} = -er_{ba}$ sind über [Mil73]

$$r_{ba} = \left[\frac{3(J+1)}{2J+3} \right]^{1/2} \sqrt{\frac{f_{ab}}{\Delta E}}, \quad (2.53)$$

wobei r_{ba} in atomaren Einheiten (a_0) ist, mit den Oszillatorstärken f_{ab} verknüpft. a_0 ist der Bohrsche Radius. ΔE ist der Niveauabstand in Rydberg und J der Drehimpuls des Niveaus a . Hier wird vorausgesetzt, dass die magnetische

Tabelle 2.1: Oszillatorstärken der Übergänge $6^1S - n^{2S+1}P$ und $7^1S - n^{2S+1}P$ für $n=6..13$, aus [Alf87] entnommen. Für $n=14$ wurden die Werte durch Extrapolation gewonnen. Die D-Zustände sind doppelt angeregte Zustände und müssen ebenfalls betrachtet werden.

nP	Energie[cm ⁻¹]	$f_{6^1S-n^{2S+1}P}$	$f_{7^1S-n^{2S+1}P}$
6 ³ P	39412,30	0,024	-0,0022
6 ¹ P	54068,781	1,15	-0,15
7 ³ P	69661,89	0,00001	0,11
7 ¹ P	71295,15	0,02	1,24
8 ³ P	76467,067	0,0014	$1,2 \times 10^{-3}$
8 ¹ P	76863,264	0,01	-0,029
[² D _{5/2}]6p' ¹ P	78813,0	0,15	0,018
9 ³ P	79412,745	0,0055	-5×10^{-5}
9 ¹ P	79964,1	0,07	0,029
10 ³ P	80916,686	0,0018	$2,6 \times 10^{-7}$
10 ¹ P	81153,614	0,0155	0,0097
11 ³ P	81811,876	0,0011	$1,6 \times 10^{-6}$
11 ¹ P	81942,444	0,005	0,005
12 ³ P	82379,0	0,0008	$7,5 \times 10^{-6}$
12 ¹ P	82464,05	0,0023	0,0025
13 ³ P	82765,9	0,0005	$1,7 \times 10^{-5}$
13 ¹ P	82823,94	0,0011	0,0015
14 ³ P	83039,3	0,0003	2×10^{-5}
14 ¹ P	83084,0	0,0005	0,0008
[² D _{3/2}]6p' ¹ P	88760	0,53	0,061

Quantenzahl $m_J = 0$ ist, was für die für uns relevanten Übergänge der Fall ist, da der Grundzustand ein S-Zustand ist ($J = 0, m_J = 0$) und nur lineare Polarisation ($\Delta m_J = 0$) betrachtet wird. Einen allgemeineren Ausdruck für p_{ab} findet man z. B. in [Rei84].

In dem hier beschriebenen Experiment wird der $6^1S \rightarrow 7^1S$ -Zwei-Photonen-Übergang zur resonanten Überhöhung von $\chi^{(3)}$ ausgenutzt. Die Oszillatorstärken, die für die Summation in (2.50) und (2.51) benötigt werden, sind in Tabelle 2.1 aufgelistet. Die Vorzeichen entsprechen denen der Produkte aus den Matrixelementen $\langle 7^1S|p|n^{2S+1}P\rangle\langle n^{2S+1}P|p|6^1S\rangle$. Die Frequenz ω_{ng} entspricht

der Lage des 7^1S –Niveaus und wird im Weiteren als $\omega_{7\text{S}}$ bezeichnet.

Die Funktion $S(\omega_1 + \omega_2)$ beschreibt die Linienform des $6^1\text{S} \rightarrow 7^1\text{S}$ –Zwei–Photonen–Übergangs. Auf der Resonanz, wenn die Verstimmung der Summe der Frequenzen $(\omega_1 + \omega_2)$ zur Zwei–Photonen–Resonanz ungefähr der Linienbreite des Niveaus entspricht $((\omega_1 + \omega_2) - \omega_{7\text{S}} \simeq \Gamma_{7\text{S}})$, muss die gesamte Linienbreite $\Gamma_{7\text{S}}$ des Niveaus berücksichtigt werden. Die homogene Linienbreite durch die natürliche Lebensdauer $\tau_{7\text{S}} = 1/\Gamma_{7\text{S}}^0$ wurde schon durch (2.46) eingeführt. Eine weitere homogene Verbreiterung, die Druckverbreiterung, kann einfach zu der natürlichen Linienbreite addiert werden, da sie ebenfalls durch eine Lorentzkurve beschrieben werden kann. Die Druckverbreiterung wird durch das Experiment zu $\Gamma_{7\text{S}}^{\text{Druck}} = 2\pi \times 1,25 \text{ GHz}$ abgeschätzt. Die gesamte homogene Linienbreite ist damit gegeben durch $\Gamma_{7\text{S}}^{\text{hom}} = \Gamma_{7\text{S}}^0 + \Gamma_{7\text{S}}^{\text{Druck}}$. Inhomogene Verbreiterungen lassen sich nicht durch eine Lorentzkurve beschreiben und müssen deshalb anders berücksichtigt werden. Sie sind hauptsächlich durch den Dopplereffekt gegeben, der sich aus der Wechselwirkung des Lichts mit Atomen verschiedener Geschwindigkeiten ergibt. Die Atome mit einer Geschwindigkeit v absorbieren Licht mit einer Frequenz ω' , die proportional zur Geschwindigkeit verschoben ist: $\omega' = \omega + \vec{k}\vec{v}$, wobei \vec{k} der Wellenvektor des Lichtes mit dem Betrag $k = \frac{\omega}{c}$ ist. Die Geschwindigkeiten der Komponente v_{\parallel} , die parallel zur Richtung des eingestrahlt Lichts ist, gehorchen der Maxwell–Boltzmann Verteilung [Rei87]:

$$f(v_{\parallel})dv_{\parallel} = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_w} e^{-\left(\frac{v_{\parallel}}{v_w}\right)^2} dv_{\parallel}, \quad (2.54)$$

wobei schon über die anderen Komponenten integriert wurde.

$$v_w = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}} \quad (2.55)$$

ist die wahrscheinlichste Geschwindigkeit, m ist die Masse des Atoms, T die Temperatur und k_B die Boltzmann–Konstante. Durch den Dopplereffekt kommt es somit zu einer Verschiebung der Resonanzen um kv . In den nahresonanten Termen von χ_{12} und χ_{34} ist $(\omega_{ab} - \omega_i)_{\{i=1,2,4\}} \gg \Gamma_{ab}$, beziehungsweise $\omega_{ab}^* + \omega_3 \gg \Gamma_{ab}$ für alle Übergänge $a \rightarrow b$. Daher kann die Linienbreite dort vernachlässigt werden. Auf der Zwei–Photonen–Resonanz muss jedoch die Linienbreite berücksichtigt werden. Die verschobene $(\omega_{7\text{S}} \rightarrow \omega_{7\text{S}} + kv)$ Linie (Gl.(2.52)) muss mit der Geschwindigkeitsverteilung (2.54) gefaltet, d. h. mit der Wahrscheinlichkeit dieser Verschiebung multipliziert und über alle Ge-

schwindigkeiten integriert werden.

$$S(\omega_1 + \omega_2) = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_w} \int_{-\infty}^{+\infty} dv \frac{e^{-(\frac{v}{v_w})^2}}{(\omega_{7S} + kv) - i\Gamma_{7S}^{\text{hom}}/2 - (\omega_1 + \omega_2)}. \quad (2.56)$$

Die Form, die sich für $S(\omega_1 + \omega_2)$ ergibt, wird als Voigt-Profil bezeichnet. Zur Berechnung von (2.56) wird diese durch die Plasmadispersionsfunktion $Z(\zeta)$ [Fri61] ausgedrückt:

$$S(\omega_1 + \omega_2) = \frac{1}{w} Z(\zeta), \quad (2.57)$$

mit

$$Z(\zeta) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} dx \frac{e^{-x^2}}{x - \zeta}, \quad (2.58)$$

$$\zeta = (\omega_1 + \omega_2 + i\frac{\Gamma_{7S}^{\text{hom}}}{2} - \omega_{7S})/w, \quad (2.59)$$

$$w = \omega_{7S} \frac{v_w}{c} = \frac{\Delta\omega_D}{2\sqrt{\ln 2}}, \quad (2.60)$$

wobei $\Delta\omega_D$ die Dopplerbreite ist. Die Plasmadispersionsfunktion $Z(\zeta)$ hängt mit der Fehlerfunktion, die mit den meisten Rechenprogrammen (z. B. mathematica) berechenbar ist, über

$$Z(\zeta) = i\sqrt{\pi}e^{-\zeta^2}(1 + \text{erf}(i\zeta)). \quad (2.61)$$

zusammen [Fri61].

In unserem Experiment handelt es sich zudem um ein natürliches Isotopengemisch (s. Tabelle 2.2). Die Funktion $S(\omega_1 + \omega_2)$ muss also für alle Iso-

Tabelle 2.2: Häufigkeit [Zad89] und Isotopieverschiebung $\Delta\nu_{\text{iso}}$ der Quecksilber-Isotope im natürlichen Isotopengemisch.

	¹⁹⁶ Hg	¹⁹⁸ Hg	¹⁹⁹ Hg	²⁰⁰ Hg	²⁰¹ Hg	²⁰² Hg	²⁰⁴ Hg
Häufigkeit [%]	0,15344	9,968	16,873	23,096	13,181	29,863	6,865
$\Delta\nu_{\text{iso}}$ [cm ⁻¹]		0,2806	0,2659	0,148	0,1033	0	-0,1453

tope berechnet werden und mit der Häufigkeit und unter Berücksichtigung der Isotopieverschiebung summiert werden. Die Isotopieverschiebung zwischen ²⁰⁰Hg und ²⁰²Hg wurde aus [Smi87] entnommen. Die übrigen sind über die

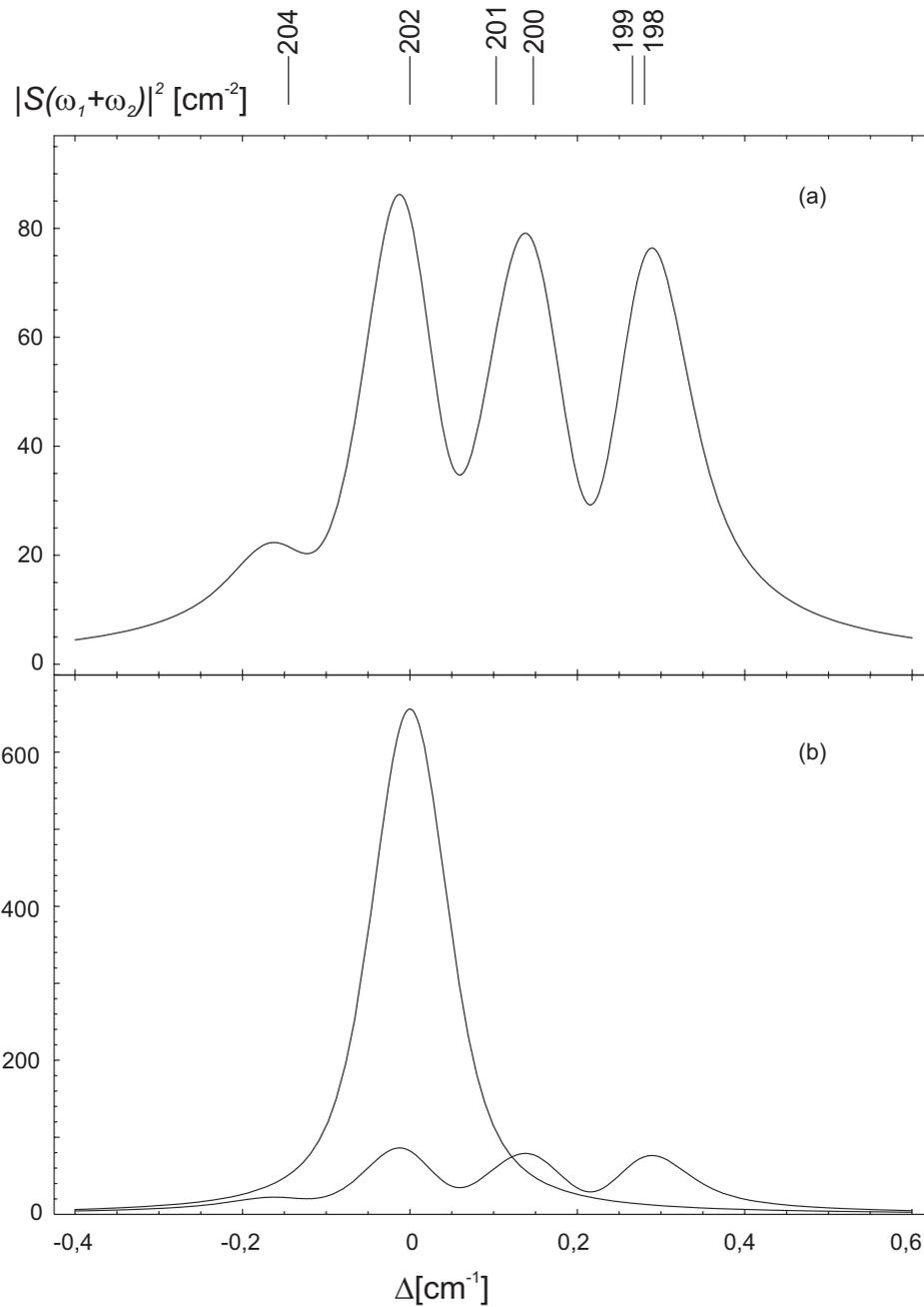


Abbildung 2.8: Linienform $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ der Zwei-Photonen-Resonanz. Die exakte Resonanz wird für das ^{202}Hg -Isotop angenommen. Δ ist damit die Verstimmung der Frequenz gegenüber der des ^{202}Hg -Isotops. (a) Linienform für ein natürliches Isotopengemisch, (b) Vergleich der Linienformen zwischen einem Isotopengemisch (kleine Kurve) und isotopenreinem ^{202}Hg . Die über den Graphen eingezeichneten Striche deuten die Position der Isotope an.

relativen Isotopieverschiebungen aus [Ger77] berechnet. Zur Berechnung von $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ wird das ^{196}Hg -Isotop vernachlässigt. In Abbildung 2.8(a) ist das so berechnete Linienprofil für eine Dopplerbreite von $\Delta\omega_D = 2\pi \times 2,15 \text{ GHz} \hat{=} 0,072 \text{ cm}^{-1}$ und eine Druckverbreiterung von $\Gamma_{7S}^{\text{Druck}} = 2\pi \times 1,25 \text{ GHz} \hat{=} 0,0418 \text{ cm}^{-1}$ bei einem Druck von 45,6 mbar, was den experimentellen Werten entspricht, dargestellt. Abbildung 2.8(b) zeigt zum Vergleich die Linienform für isotopenreines ^{202}Hg . Das Maximum von $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ ist für isotopenreines Quecksilber um ein zehnfaches größer, als das Maximum von $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ eines Isotopengemisches. Da $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ direkt in die erzeugte VUV-Leistung eingeht, kann bei der Verwendung von isotopenreinem Quecksilber die Leistung um ein zehnfaches erhöht werden.

Die nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ lässt sich nun mit den oben besprochenen Funktionen χ_{12} , χ_{34} und $S(\omega_1 + \omega_2)$ berechnen. Da die Zwei-Photonen-Resonanz ausgenutzt wird, sind die Frequenzen ω_1 und ω_2 konstant. χ_{12} und $S(\omega_1 + \omega_2)$ sind daher Konstanten. Für $\lambda_1 = 257 \text{ nm}$ und $\lambda_2 = 399 \text{ nm}$ ergibt sich in atomaren Einheiten für $|\chi_{12}| = 3,496 \times 10^{-4} \frac{(ea_0)^2}{\text{cm}^{-1}}$ und für $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2 = 86,20 \frac{1}{\text{cm}^{-2}}$. e ist die Elementarladung und a_0 der Bohrsche Radius. χ_{34} hingegen ist, da ω_4 durchgestimmt wird, frequenzabhängig. Da für die Berechnung der Leistung der erzeugten Welle \mathcal{P}_4 nur das Betragsquadrat $|\chi^{(3)}|^2$ (Gl.(2.32)) von Interesse ist, ist in Abbildung 2.9 der Betrag $|\chi_a^{(3)}|$ in atomaren Einheiten in der Umgebung von Lyman- α abgebildet. Der Index a bedeutet „pro Atom“.

Die Resonanzen der 10P-, 11P- und 12P-Niveaus sind deutlich an den erhöhten Werten von $\chi^{(3)}$ zu erkennen, die sich aus der Berechnung von χ_{34} ergeben, da bei Resonanzen durch Null geteilt wird. Diese mathematischen Divergenzen sind unphysikalisch. Bei der Berechnung von χ_{34} und χ_{12} wurden Linienbreiten vernachlässigt, die aber im Fall von Resonanzen, wenn $(\omega_{ab} - \omega_i)_{\{i=1,2,4\}} \cong \Gamma_{ab}$, beziehungsweise $\omega_{ab}^* + \omega_3 \cong \Gamma_{ab}$ für die Übergänge $a \rightarrow b$ gilt, zu berücksichtigen sind und damit $|\chi^{(3)}|$ endlich machen. Nullstellen in $|\chi^{(3)}|$ ergeben sich, wenn sich die Terme in Gl.(2.51) gegenseitig wegheben. Lyman- α liegt auf keiner dieser Nullstellen, unglücklicherweise aber sehr in der Nähe, so dass sich für $|\chi_a^{(3)}|$ bei Lyman- α nur ein kleiner Wert von $1,54 \times 10^{-7} \frac{(ea_0)^4}{\text{cm}^{-3}}$ ergibt. Allerdings sollte die Wellenlänge der erzeugten Welle auch außerhalb der Linienbreite einer Resonanz liegen, da die erzeugte Welle im Medium sonst sofort wieder absorbiert werden würde.

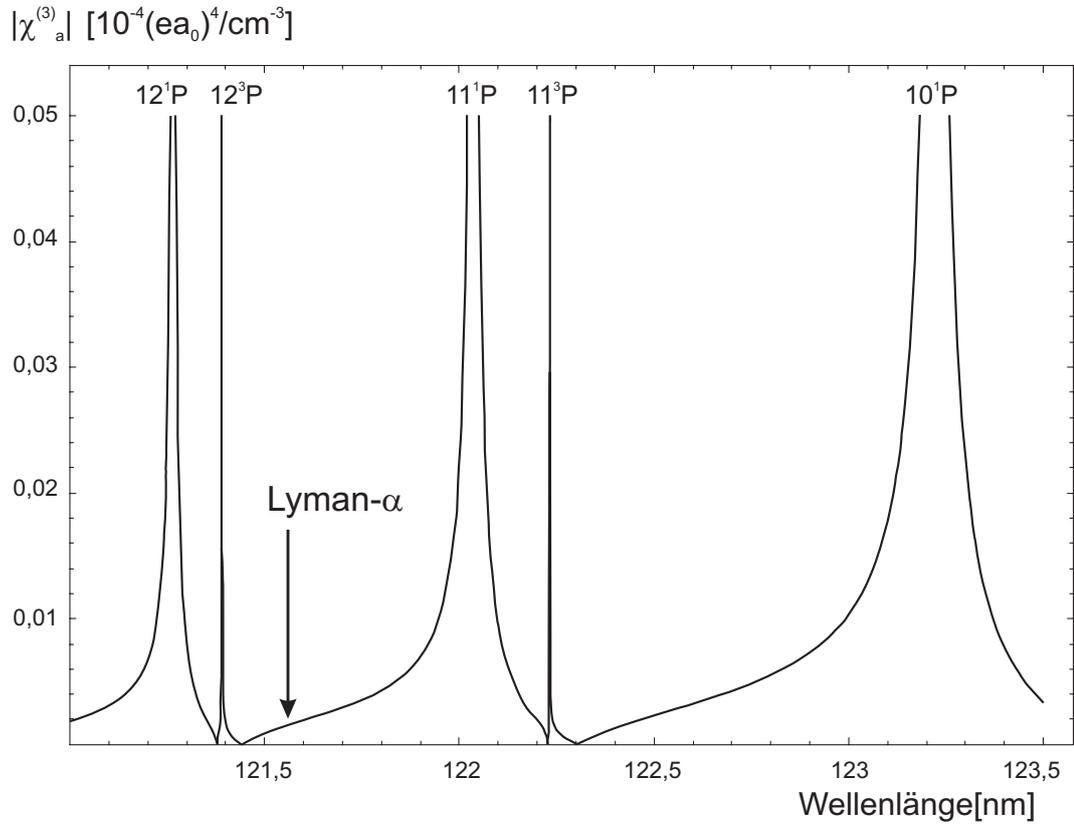


Abbildung 2.9: Berechnete nichtlineare Suszeptibilität pro Atom $|\chi_a^{(3)}| = |(S(\omega_1 + \omega_2) \chi_{12} \chi_{34})_a|$ in atomaren Einheiten in der Umgebung von Lyman- α .

2.1.5 Phasenanpassungsintegral

In Abschnitt 2.1.2 wurde das Phasenanpassungsintegral für Summenfrequenzbildung bei Vier-Wellen-Mischung ganz allgemein für Gaußsche Strahlen hergeleitet. Die Phasenfehlanpassung Δk ist aber ein wellenlängenabhängiger Parameter, der sich aus der Resonanzstruktur des nichtlinearen Mediums ergibt. Δk ist über die Brechungsindizes n_i mit den Wellenlängen bzw. den Frequenzen über $k_i = n_i \frac{\omega_i}{c}$ verknüpft. Der Brechungsindex hängt wiederum mit der linearen Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ gemäß $n = 1 + \frac{1}{2}\chi^{(1)}$ (s. Gl.(2.4)) zusammen. Die allgemeine Gleichung für $\chi^{(1)}$ ist in (2.45) angegeben. Diese Gleichung lässt sich mit [Hil81]

$$p_{mn}^2 = \frac{3}{2} \frac{g_n}{g_m} \frac{\hbar e^2}{\omega_{mn} m_e} f_{nm} \quad (2.62)$$

und der Annahme, dass das Niveau n ein S-Zustand und das Niveau m ein P-Zustand und damit $\frac{g_n}{g_m} = \frac{2J+1}{2(J+1)+1} = \frac{1}{3}$ ist, umschreiben auf die bekanntere Form für die lineare Suszeptibilität (z. B. [Bor80])

$$\chi^{(1)} = \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m_e} \sum_{n,m} \frac{f_{nm}}{\omega_{nm}^2 - \omega^2}. \quad (2.63)$$

e ist die Elementarladung und m_e die Elektronenmasse. Die Oszillatorstärken f_{nm} sind die in Tabelle 2.1 angegebenen.

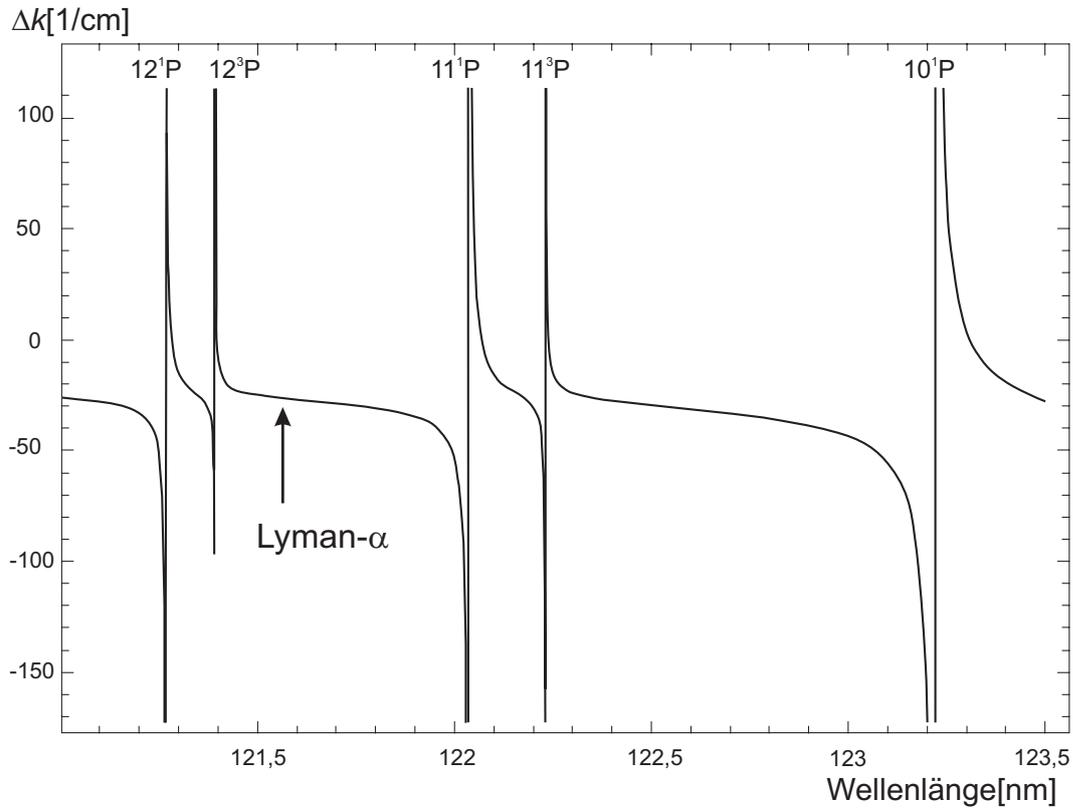


Abbildung 2.10: Berechnete Wellenlängenabhängigkeit der Phasenfehlpassung Δk in der Umgebung von Lyman- α .

Wird die natürliche Linienbreite der Niveaus vernachlässigt, dann ist der Imaginärteil von $\chi^{(1)}$ Null und

$$(n-1) = \frac{1}{2} \text{Re} [\chi^{(1)}] = \frac{1}{2} \chi^{(1)} = \frac{Ne^2}{2\epsilon_0 m_e} \sum_{n,m} \frac{f_{nm}}{\omega_{nm}^2 - \omega^2}. \quad (2.64)$$

In Abbildung 2.10 ist für den im Experiment eingestellten Druck von 45,6 mbar, der einer Teilchenzahldichte von $N = 8,79 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ entspricht,

die Phasenfehlانpassung Δk in Abhängigkeit der Wellenlänge gezeigt. Auch hier sind die Resonanzen an der Divergenz von Δk zu erkennen. Für Lyman- α ergibt sich ein Wert von $\Delta k = -26,42 \text{ cm}^{-1}$. Mit dem experimentell eingestellten konfokalen Parameter $b = 0,16 \text{ cm}$ ergibt sich $b\Delta k = -4,2$ was sehr nahe an dem in Abschnitt 2.1.2 beschriebenen optimalen Wert von $b\Delta k = -4$ liegt.

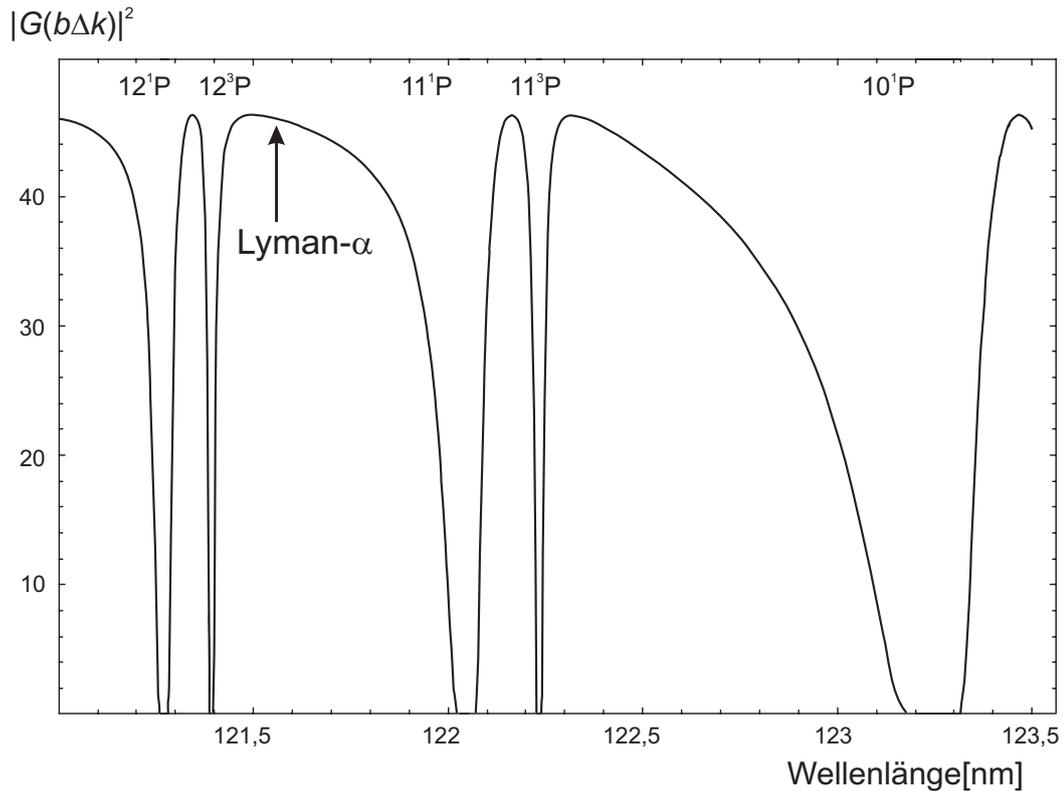


Abbildung 2.11: Berechnete Wellenlängenabhängigkeit des Phasenanpassungsintegrals $|G(b\Delta k)|^2$ in der Umgebung von Lyman- α .

Das Phasenanpassungsintegral $|G(b\Delta k)|^2$ ist die Funktion von Δk , die zur Berechnung der Leistung der VUV-Strahlung benötigt wird. Die Wellenlängenabhängigkeit von $|G(b\Delta k)|^2$ ist in Abbildung 2.11 für die oben angegebenen experimentellen Parameter aufgetragen. Man erkennt die Resonanzen des nichtlinearen Mediums (hier die der 10P-, 11P- und 12P-Niveaus) an den Nullstellen des Phasenanpassungsintegrals. Die Nullstellen entstehen dadurch, dass $\chi^{(1)}$ und damit der Brechungsindex und damit wiederum der Betrag der Phasenfehlانpassung $|\Delta k|$ unendlich² groß an der Stelle einer Resonanz wird.

² „unendlich“ ist hier wieder eine mathematische Divergenz, die zu „sehr groß“ wird, wenn die Linienbreite der Resonanz mit berücksichtigt wird.

In der Funktion des Phasen Anpassungsintegrals steht Δk im Argument der Exponentialfunktion, die damit gegen Null geht, wenn $\Delta k < 0$ ist. Für $\Delta k > 0$ ist $|G(b\Delta k)|^2 = 0$ (Gl.(2.33)). Bei der Wellenlänge von Lyman- α ist das Phasen Anpassungsintegral für die experimentell eingestellten Parameter nahezu maximal.

2.1.6 Wellenlängenabhängigkeit der VUV-Strahlung

Das durch den Vier-Wellen-Mischprozess erzeugte Spektrum im Vakuum-UV lässt sich aus den in den vorhergehenden Abschnitten beschriebenen Funktionen berechnen. Die Leistung der erzeugten Strahlung bei einer bestimmten Frequenz lässt sich durch Gl.(2.29) beschreiben. Um die beschriebenen Funktionen $|\chi^{(3)}|_a$, $|F(b\Delta k)|^2$ und $S(\omega_1 + \omega_2)$ und damit das Spektrum zu berechnen³, wird Gl.(2.29) in das CGS-System umgerechnet:

$$\mathcal{P}_4 = 7,8 \times 10^{-49} \omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4 \mathcal{P}_1 \mathcal{P}_2 \mathcal{P}_3 N^2 |(S(\omega_1 + \omega_2) \chi_{12} \chi_{34})_a|^2 |F(b\Delta k)|^2. \quad (2.65)$$

Die Einheiten der Frequenzen ω_i sind cm^{-1} , die der Leistungen \mathcal{P}_i W, die der Dichte N cm^{-3} , die der Suszeptibilitäten χ_{12} und χ_{34} $\frac{(\text{ea}_0)^2}{\text{cm}^{-1}}$ und die von $S(\omega_1 + \omega_2)$ $\frac{1}{\text{cm}^{-1}}$. Dies ist die Gleichung, die auch [Smi87] für ihre Berechnungen benutzen. Die Konvertierung von SI- auf CGS-Einheiten für die einzelnen Funktionen ist in Tabelle 2.3 zusammengestellt.

Tabelle 2.3: Umrechnung von SI- auf CGS-Einheiten

SI	CGS
$\omega [\frac{\text{rad}}{\text{s}}]$	$2\pi c 100 \omega [\text{cm}^{-1}]$
$\chi^{(3)} [\frac{\text{m}^2}{\text{V}^2}]$	$\frac{1}{6\hbar\epsilon_0} \frac{1}{2\pi c 100} \left(\frac{e^2 a_0^2}{\hbar 2\pi c 100}\right)^2 S \chi_{12} \chi_{34} [\frac{(\text{ea}_0)^4}{(\text{cm}^{-1})^3}]$
$N [\text{m}^{-3}]$	$10^6 N [\text{cm}^{-3}]$

Setzt man die experimentellen Werte für die Frequenzen und die Leistungen und die berechneten Werte für die Suszeptibilitäten, für $S(\omega_1 + \omega_2)$ und für das Phasen Anpassungsintegral ein (Tabelle 2.4), so ergibt sich eine Leistung von

³Hier wird wieder mit $|F(b\Delta k)|$ und nicht mit $|G(b\Delta k)|$ gerechnet, da dann Gl.(2.65) übersichtlicher aussieht und mit [Smi87] vergleichbar ist. Für die Berechnung von \mathcal{P}_4 ändert sich nichts.

18,8 nW bei der Wellenlänge für Lyman- α . Die Werte für die Laserleistungen entsprechen den effektiven Leistungen in der Quecksilberdampfzelle. Das ge-

Tabelle 2.4: Werte für die freien Parameter zur Berechnung der Leistung der erzeugten Strahlung und die damit berechneten Werte der Funktionen bei der Wellenlänge von Lyman- α .

\mathcal{P}_1	0,5 W	N	$8,79 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$
\mathcal{P}_2	0,57 W	$\Delta\omega_D$	$0,0717 \text{ cm}^{-1}$
\mathcal{P}_3	1,2 W	$ \chi_{12} $	$3,50 \times 10^{-4} \frac{(\text{ea}_0)^2}{\text{cm}^{-1}}$
ω_1	$38872,7 \text{ cm}^{-1}$	$ \chi_{34} $	$4,76 \times 10^{-5} \frac{(\text{ea}_0)^2}{\text{cm}^{-1}}$
ω_2	$25055,6 \text{ cm}^{-1}$	$ S(\omega_1 + \omega_2) ^2$	$86,20 \frac{1}{\text{cm}^{-2}}$
ω_3	$18335,7 \text{ cm}^{-1}$	Δk	$-26,42 \frac{1}{\text{cm}}$
ω_4	$82263,9 \text{ cm}^{-1}$	$ F(b\Delta k) ^2$	2,57
b	0,16 cm	$ G(b\Delta k) ^2$	45,99
T	220 °C	\mathcal{P}_4	18,8 nW

samte berechnete Spektrum in der Umgebung von Lyman- α ist in Abbildung 2.12 gezeigt. Das Programm zur seiner Berechnung ist im Anhang zu finden.

Auch hier erkennt man die Resonanzen des nichtlinearen Mediums an den Nullstellen der Leistung. Die Formen der Resonanzen entstehen dabei aus der Multiplikation der „sehr großen“ Werte der nichtlinearen Suszeptibilität und der „Null“ des Phasenanpassungsintegrals. Hier sei nochmals darauf hingewiesen, dass sowohl die Linienbreiten dieser Resonanzen als auch die Absorption des erzeugten Lichts nicht berücksichtigt wurden. Beides hat Einfluss auf die exakte Form der Resonanz. Da wir aber hauptsächlich an dem Wert für die erzeugte Leistung \mathcal{P}_4 bei der Wellenlänge von Lyman- α , die weit genug außerhalb der Linienbreiten von Resonanzen liegt, interessiert sind, können diese Beiträge vernachlässigt werden.

Die Leistung des erzeugten Lichts bei Lyman- α ist sehr klein im Vergleich zu möglichen Leistungen in der Umgebung von Lyman- α . Dies ist hauptsächlich durch den relativ kleinen Wert für die nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$, also durch die Niveaustuktur des nichtlinearen Mediums gegeben.

Durch äußere Felder kann man durch das Verschieben der Niveaus die nichtlineare Suszeptibilität bei der erzeugten Wellenlänge erhöhen. In [Fre78] wird zur Erzeugung von VUV-Strahlung durch Vier-Wellen-Mischen in Strontium durch ein Magnetfeld mit 5,5 T das relevante Niveau um 0,1 Å verschoben. Im

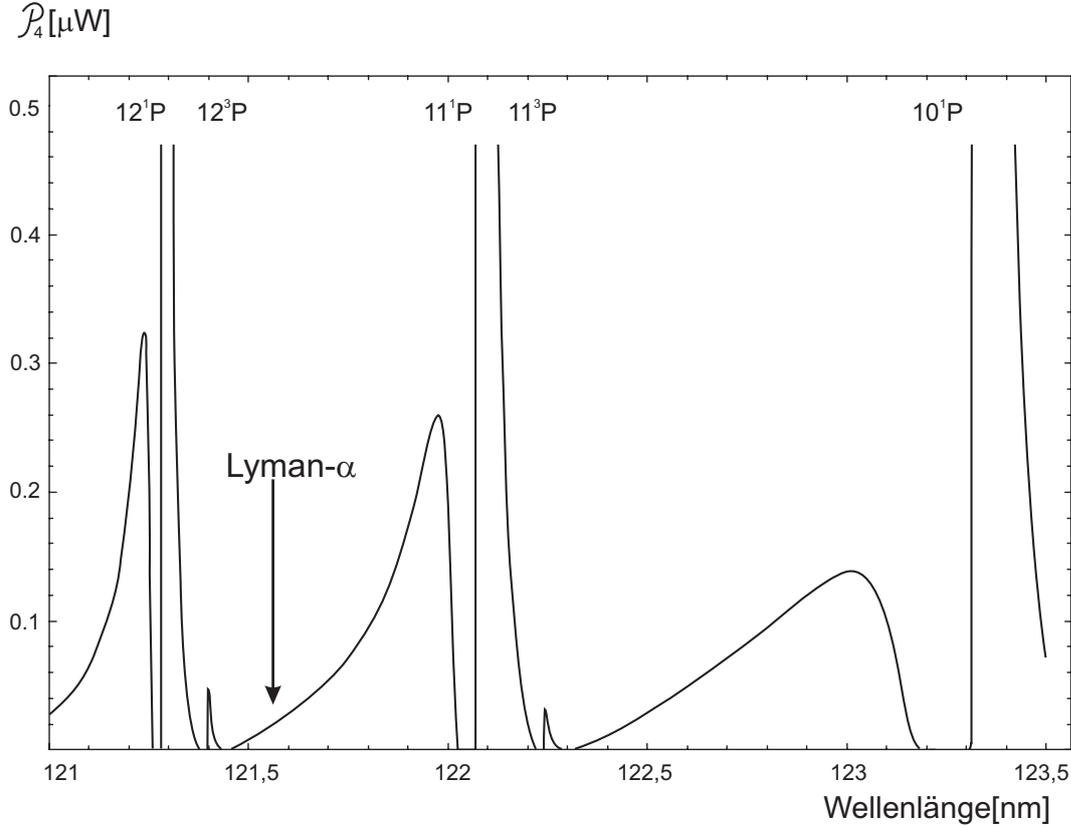


Abbildung 2.12: Berechnetes Spektrum des erzeugten Vakuum-UV Signals in der Umgebung von Lyman- α .

Fall von Quecksilber kann man folgendes abschätzen. Die relevanten Niveaus, in deren Nähe Lyman- α erzeugt wird, sind das 11^1P_1 - und das 12^1P_1 -Niveau, bei denen die Gesamtdrehimpulse jeweils $J = 1$ sind. Im Magnetfeld spalten diese Niveaus in jeweils drei Unterniveaus nach den magnetischen Quantenzahlen $m_J = 0, -1, +1$ auf (Zeemaneffekt). Die Energieverschiebung im Magnetfeld H ist gegeben durch [Sob79]

$$\Delta E = g\mu_B m_J H, \quad (2.66)$$

$$\text{mit } g = 1 + \frac{J(J+1) - L(L+1) + S(S+1)}{2J(J+1)}. \quad (2.67)$$

Der Landé-Faktor g für das 11^1P_1 - und das 12^1P_1 -Niveau ist jeweils $g = 1$. Für die Energieverschiebung ergibt sich damit $\Delta E = 14 \text{ GHz/T}$. Um eine signifikante Erhöhung der Leistung der erzeugten VUV-Strahlung zu erreichen, müsste das Spektrum, je nach m_J -Zustand, um $\pm 0,24 \text{ nm}$ verschoben werden. In Abbildung 2.12 erkennt man, dass einerseits ein ($m_J = -1$)-Niveau der

12^1P -Resonanz und andererseits ein ($m_J = +1$)-Niveau der 11^1P -Resonanz in Richtung Lyman- α verschoben wird. Es würde sich theoretisch eine Leistung von etwa 300 nW ergeben. Das dazu benötigte Feld müsste dann allerdings etwa 350 T betragen. Diese Magnetfeldstärke ist momentan nicht Stand der Technik. Nimmt man ein Magnetfeld von 5,5 T an, wie es in [Fre78] genutzt wurde, ergibt sich eine Verschiebung der Niveaus um $\pm 0,004$ nm. In Abbildung 2.12 erkennt man, dass dies zu keiner Erhöhung der VUV-Leistung führt.

Das Phasenanpassungsintegral ist nahezu maximal bei Lyman- α . Die Form der Zwei-Photonen-Resonanz $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ liefert für alle erzeugten Wellenlängen einen konstanten Wert, der von der Verstimmung zur Zwei-Photonen-Resonanz, der relativen Häufigkeit und der Temperatur abhängt. Die Form des VUV-Spektrums ändert sich nicht, nur der Absolutwert der erzeugten Leistung, wenn sich der Beitrag der Zwei-Photonen-Resonanz ändert. Mit einem größeren Wert für $|S(\omega_1 + \omega_2)|^2$ durch die Verwendung von isotopenreinem Quecksilber könnte die Leistung um einen Faktor zehn erhöht werden.

2.2 Experimenteller Aufbau

In dem hier beschriebenen Experiment wird schmalbandige, abstimmbare Laserstrahlung im Vakuum-Ultraviolett-Bereich in der Umgebung von Lyman- α durch Summenfrequenzbildung in einer Quecksilberdampfzelle hergestellt.

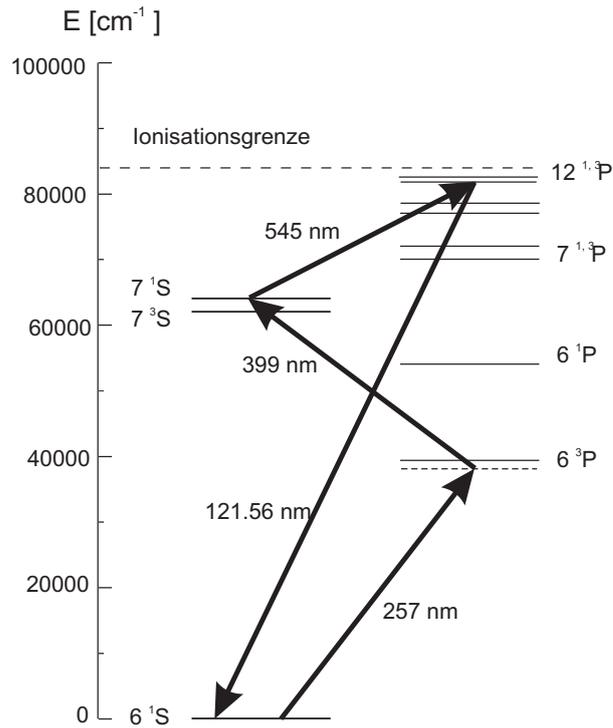


Abbildung 2.13: Energieniveaus des Quecksilberatoms. Eingezeichnet sind die relevanten Niveaus und das zur Summenfrequenzbildung benutzte Laserlicht.

Ein vereinfachtes Energieniveauschema von Quecksilber, in dem der Summenfrequenz-Mischprozess stattfindet, ist in Abbildung 2.13 gezeigt. Zur Generierung der VUV-Strahlung bei einer Wellenlänge von 121,56 nm werden drei Laser bei jeweils 257 nm, 399 nm und 545 nm verwendet. Die Laserfelder der Wellenlängen 257 nm und 399 nm werden dabei so gewählt, dass eine Zwei-Photonen-Resonanz auf dem $6^1\text{S} - 7^1\text{S}$ Übergang erreicht wird, die, wie in Abschnitt 2.1.4 erläutert, zur Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität und damit der Leistung des erzeugten Lichts führt. Das Laserlicht bei 545 nm ist so gewählt, dass die resultierende Wellenlänge der des $1\text{S} - 2\text{P}$ -Übergangs in Wasserstoff (Lyman- α -Übergang) entspricht. Im Folgenden werden die einzelnen Teile des experimentellen Aufbaus erläutert.

2.2.1 Lasersystem

Der experimentelle Aufbau zur Erzeugung der kohärenten VUV-Strahlung ist schematisch in Abbildung 2.14 gezeigt. Die erste fundamentale Wellenlänge bei

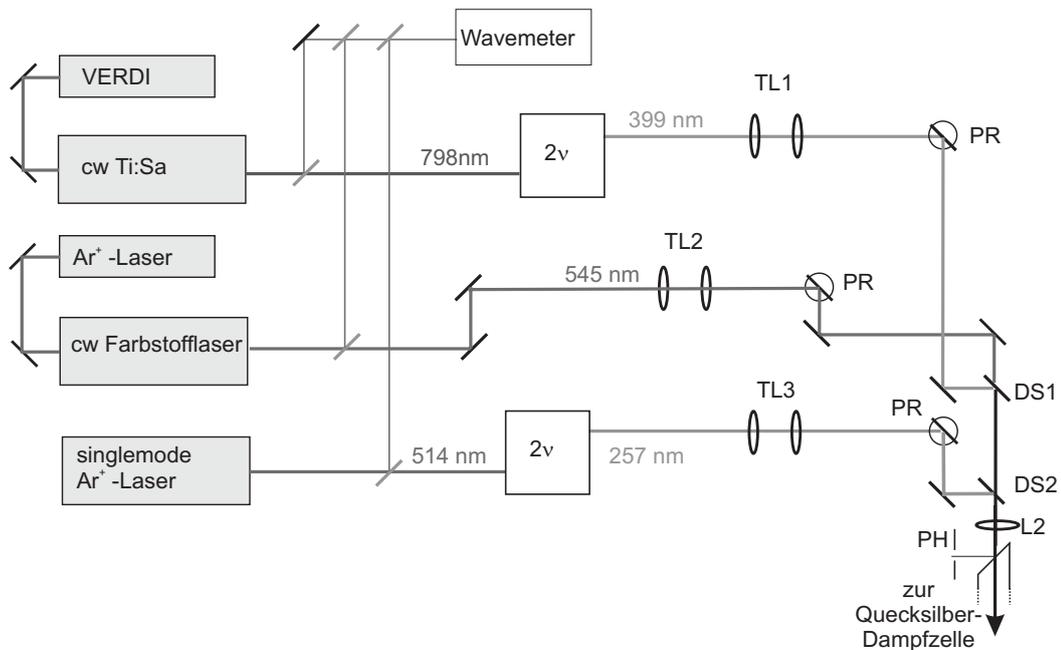


Abbildung 2.14: Übersicht des Lasersystems. Ti:Sa: Titan-Saphir-Laser; 2ν : Resonator zur Frequenzverdopplung, TL_i : Linsenpaare, die ein Teleskop zur Strahlanpassung bilden; DS: dichroitische Spiegel; PR: Polarisationsrotation; L2: Quarzlinse zum Fokussieren in die Quecksilberdampfzelle; PH: Pinhole

257 nm, im UV, wird durch Frequenzverdopplung eines singlemode Ar^+ -Laser erzeugt. Auf den Aufbau der Frequenzverdopplung wird später nochmals eingegangen. Der Ar^+ -Laser (Spectra 2030) läuft aufgrund eines Prismas bei 514 nm und wird durch ein Etalon, das sich im Laserresonator befindet, auf einer einzigen Mode des Resonators (engl. singlemode) gehalten. Das Laserlicht mit einer Ausgangsleistung von bis zu 2.2 W wird dann in einem Überhöhungsresonator zur Frequenzverdopplung in einem β -Barium-Borat Kristall ($\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$, im Folgenden BBO) zu 257 nm mit bis zu 750 mW Ausgangsleistung konvertiert.

Um zusammen mit dem Licht bei 257 nm die $6^1\text{S} - 7^1\text{S}$ -Zwei-Photonen-Resonanz zu erreichen, wird abstimmbare Laserstrahlung bei einer Wellenlänge von 399 nm benötigt. Diese Wellenlänge im tiefen Blau-Violett wird durch Frequenzverdopplung eines Titan-Saphir-Lasers (Coherent 899-21) erzeugt. Der Titan-Saphir-Laser wird durch einen frequenzverdoppelten Nd:YVO₄-Laser

(Verdi10 von Coherent) mit 10,5 W Ausgangsleistung gepumpt und hat damit eine Ausgangsleistung von 1,9 W bei 798 nm. Das daraus in einem Lithium-tri-Borat-Kristall (LiB_3O_5 , im Folgenden LBO) erzeugte frequenzverdoppelte Licht hat eine Ausgangsleistung von bis zu 700 mW bei 399 nm.

Im letzten Schritt wird zur Erzeugung der VUV-Strahlung bei Lyman- α Laserlicht bei einer Wellenlänge von 545 nm benötigt. Diese wird mit einem Farbstofflaser (Coherent 699-21) erzeugt. Als Pumplaser dient hier ein Ar^+ -Laser (Coherent Innova 100) bei einer Ausgangsleistung von 9 W. Als Farbstoff wird Rhodamin 110 verwendet, der in Ethylenglycol gelöst ist. Damit ergibt sich eine typische Ausgangsleistung von 1,2 W bei 545 nm.

Die Wellenlängen werden durch ein Wavemeter (Burleigh, WA1500 VIS) gemessen. Über ein Programm wird am Mess-PC, der am Wavemeter angeschlossen ist, die Abweichung der Frequenz von der Zwei-Photonen-Resonanz und von Lyman- α abgelesen. Da das Wavemeter nur eine Wellenlänge gleichzeitig messen kann und dafür eine Messzeit von einer Sekunde benötigt wird, stehen kleine Fähnchen in den Strahlengängen zum Wavemeter, die von dem PC aus angesteuert werden und so nacheinander alle drei Sekunden geöffnet werden können.

Um die drei konfokalen Parameter aneinander anzupassen, befindet sich wie in Abbildung 2.14 ersichtlich in jedem Strahlengang ein Teleskop aus zwei Linsen (TL1: $f_1 = 50$ mm, $f_2 = 100$ mm, TL2: $f_1 = 100$ mm, $f_2 = 400$ mm, TL3: $f_1 = 100$ mm, $f_2 = 100$ mm). Zwischen den beiden Linsen des Teleskops TL3 steht zur Modenfilterung des Strahls ein Pinhole mit einem Durchmesser von 20 μm . Diese drei Teleskope passen sowohl die Strahldurchmesser als auch die Foki hinter der Linse L2 in der Quecksilberdampfzelle an. Um die Dispersion der Linse auszugleichen, müssen die Strahlen dazu vorfokussiert werden. Die Strahlparameter werden hinter der Linse L2, die die Strahlen in die Quecksilberdampfzelle fokussiert, gemessen, indem der am Eintrittsfenster reflektierte Anteil mit verschiedenen Pinholes vermessen wird. Die konfokalen Parameter b ergeben sich für die drei Wellenlängen zu $b_{545} = 1,89$ mm, $b_{257} = 1,87$ mm und $b_{399} = 1,59$ mm.

Zwei übereinander stehende Spiegel verlegen den Strahlengang auf die Höhe der Quecksilberdampfzelle und drehen dabei die Polarisation des Lichts um 90° , so dass das Licht am Eingangsfenster der Quecksilberdampfzelle am wenigsten Verlust erleidet. Das Eingangsfenster hat einen Winkel von 45° zur Strahlrichtung, der nicht ganz dem Brewsterwinkel entspricht. Dies hat den Vorteil, dass

man die drei Strahlen vorjustieren kann, indem die am Fenster reflektierten Strahlen gleichzeitig durch ein Pinhole gefädelt werden.

Die drei Strahlen werden an zwei dichroitischen Spiegeln (Beschichtung von Laseroptik Garbsen) überlagert. Dichroitische Spiegel sind hochreflektierend für eine Wellenlänge und hochtransmittierend und mit einer Antireflex-Beschichtung versehen für die andere Wellenlänge. An DS1 wird das Licht mit 399 nm reflektiert und das Licht mit 545 nm transmittiert. DS2 transmittiert die beiden Strahlen mit 399 nm und 545 nm und reflektiert das Licht mit 257 nm. Die Quarzlinse L2 mit $f = 150$ mm für sichtbares Licht fokussiert alle drei Strahlen in die Quecksilberdampfzelle. Aufgrund von Reflexionen an den Linsen und am Eintrittsfenster ergibt sich, dass die effektiven Leistungen der Laserstrahlung in der Quecksilberdampfzelle geringer sind als direkt hinter dem Laser beziehungsweise hinter den Frequenzverdopplungsresonatoren. Die Effizienzen betragen 70 % für die Strahlung bei 399 nm und 545 nm und 60 % für die Strahlung bei 257 nm.

2.2.2 Frequenzverdopplung

Wie schon im vorangegangenen Kapitel erwähnt, werden die Strahlen bei den Wellenlängen von 399 nm und 257 nm durch Frequenzverdopplung erzeugt. Die Frequenzverdopplungsresonatoren, die im Eigenbau entstanden sind, sind ein wesentlicher Bestandteil des experimentellen Aufbaus und werden im Folgenden detailliert beschrieben.

Frequenzverdopplung ist ein nichtlinearer Prozess zweiter Ordnung, der in Kristallen stattfinden kann. Dabei hängt die Leistung des frequenzverdoppelten Lichts quadratisch von der Leistung des Lichts mit der fundamentalen Wellenlänge ab. Um die Leistung des fundamentalen Lichts und damit die der zweiten Harmonischen zu erhöhen, befindet sich der nichtlineare Kristall, dessen Endflächen im Brewsterwinkel für die Fundamentale geschnitten sind, in einem Überhöhungsresonator, der für die fundamentale Wellenlänge resonant gehalten wird. Der experimentelle Aufbau ist in Abbildung 2.15 dargestellt. Der Überhöhungsresonator ist ein z-förmig gefalteter Ringresonator, der aus vier Spiegeln (dielektrische Beschichtung von Laseroptik Garbsen) besteht. Das fundamentale Licht wird über den Spiegel Sp1 eingekoppelt und durch den gekrümmten Spiegel Sp3 in den Kristall fokussiert. Das Licht der zweiten Harmonischen wird über den dichroitischen Spiegel (hochreflektierend für die Fundamentale und hochtransmittierend für die zweite Harmonische) Sp4

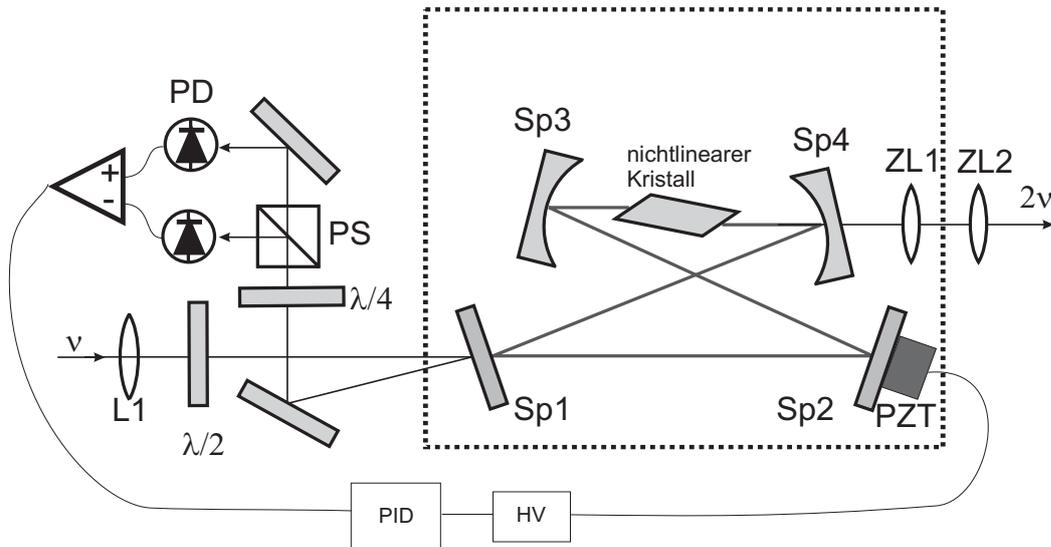


Abbildung 2.15: Aufbau der Frequenzverdopplung. Sp1–4: Resonatorspiegel, L1: Linse zur Modenanpassung, PS: Polarisationsstrahlteiler, PZT: Piezotranslator, ZL1, ZL2: Zylinderlinsen zur Astigmatismuskompensation, PD: Photodioden; Subtrahierer, PID-Regler und Hochspannungsverstärker werden zur Regelung der Resonatorlänge benötigt.

ausgekoppelt.

Mit dem Hänsch–Coulliaud–Verfahren [Hae80] wird die Länge des Resonators auf ein Vielfaches der Wellenlänge des fundamentalen Lichts resonant gehalten. Durch die verschiedenen optischen Weglängen im Kristall kann der Resonator nicht gleichzeitig für Licht mit für den Kristall ordentlicher und außerordentlicher Polarisation resonant sein. Das $\lambda/2$ -Plättchen dreht die Polarisation des einfallenden Strahls leicht gegenüber der für den Kristall ordentlichen Polarisation. Der so entstandene kleine Anteil außerordentlicher Polarisation wird am Einkoppelspiegel reflektiert und interferiert mit dem aus dem Resonator wieder austretenden Licht. Dieses Licht erhält somit eine frequenzabhängige elliptische Polarisation. Über die Analyse durch ein $\lambda/4$ -Plättchen und einen Polarisationsstrahlteiler erhält man dispersionsförmige Resonanzen, die als Fehlersignal zur Regelung benutzt werden. Die Regelschleife besteht ferner aus einem PID-Regler, dessen Ausgangsspannung über einen Hochspannungsverstärker die Länge des Piezotranslators ändert, auf den der Spiegel Sp2 aufgeklebt ist.

Die Mode der Fundamentalen wird mit der Linse L1 an die Mode des Resonators angepasst.

Um optimalen Energieübertrag von der Fundamentalen auf die zweite Harmonische zu erhalten, muss die Phasengeschwindigkeit der beiden Wellen im Kristall gleich sein. Phasenanpassung über die Temperatur, bei der fundamentaler und der erzeugter Strahl in derselben Richtung laufen, wird in beiden Fällen nicht angewendet. In BBO ist dies nicht möglich, da die Brechungsindizes nur sehr schwach temperaturabhängig sind, und LBO wäre bei einer Temperatur von ca. 700 °C bei der Wellenlänge von 399 nm phasengangepasst [Döh02], was nicht praktikabel ist. Deshalb wird in beiden Fällen Phasenanpassung über den Winkel zwischen Strahlrichtung und optischer Achse des Kristalls vorgenommen. Es wird in beiden Kristallen Typ-I Phasenanpassung gemacht, wobei die Doppelbrechung des Kristalls ausgenutzt wird. Der einfallende Strahl hat ordentliche Polarisation (d. h. Polarisation parallel zu der Ebene, die durch die optische Achse des Kristalls und den \vec{k} -Vektor der einfallenden Welle gegeben ist) und der erzeugte Strahl hat außerordentliche Polarisation (d. h. Polarisation senkrecht zu der oben beschriebenen Ebene). Strahlen mit ordentlicher Polarisation und mit außerordentlicher Polarisation haben jeweils unterschiedliche Ausbreitungsrichtungen, damit laufen Fundamentale und zweite Harmonische nicht parallel. Da aber Frequenzverdopplung über die gesamte Länge des Kristalls stattfindet, ergibt sich der so genannte walk-off-Winkel, der sich in starkem Astigmatismus äußert. Das Teleskop aus Zylinderlinsen (ZL1 und ZL2) korrigiert diesen Astigmatismus der zweiten Harmonischen. Zur optimalen Kompensation des Astigmatismus kann der Abstand ZL1–ZL2 variiert werden. ZL1 ist zusammen mit den vier Resonatorspiegeln und der Kristallhalterung auf einem Breadboard montiert, das auf zwei 3 und 4 cm dicken Aluminiumplatten steht, die jeweils mit Gummimatten gegeneinander und vom optischen Tisch schwingungsisoliert sind.

Um die Position des Kristalls im Resonator möglichst optimal einstellen zu können, ist die Kristallhalterung an drei Mikrometer-Verschiebetischen und einem Spiegelhalter befestigt. Es gibt damit die Möglichkeit der Translation längs der Strahlrichtung, um die optimale Position des Fokus im Kristall zu finden, und jeweils senkrecht dazu, um eine gute Stelle auf der Oberfläche des Kristalls zu finden. Die Rotationen durch den Spiegelhalter ermöglichen die optimale Einstellung des Phasenanpassungswinkels.

Die Resonatorparameter (Spiegelabstände und Krümmungsradien der Spiegel) lassen sich mit ABCD-Matrizen berechnen [Kog66]. Mit bekannten Krümmungsradien lässt sich über den Spiegelabstand der konfokale Parameter b variieren. Der optimale Wirkungsgrad der Frequenzverdopplung wird nach [Boy68] erreicht, wenn sich für die Länge des Kristalls $L = 2,84b$ ergibt. Der Winkel

zwischen dem einfallenden Strahl und der Spiegelnormale beträgt bei allen Spiegeln beider Resonatoren etwa $12,8^\circ$.

Tabelle 2.5: Eigenschaften und Bauteile der beiden Frequenzverdopplungsresonatoren

	BBO	LBO
Fundamentales Licht	2,2 W @ 514 nm	1,9 W @ 798 nm
Frequenzverdoppeltes Licht	750 mW @ 257 nm	700 mW @ 399 nm
Linse zur Modenanpassung L1	$f = 750$ mm	$f = 400$ mm
Einkoppelspiegel Sp1	$R > 98\%$ @ 514 nm	$R = 98\%$ @ 798 nm
Spiegel Sp2, Sp3, Sp4	$R > 99,7\%$ @ 514 nm $T > 85\%$ @ 257 nm	$R > 99,8\%$ @ 798 nm $T > 85\%$ @ 399 nm
Krümmungsradien Sp3, Sp4	$r = -75$ mm	$r = -75$ mm
Spiegelabstände		
Sp1–Sp2	27,7 cm	26,8 cm
Sp1–Sp4	19,4 cm	18,9 cm
Sp2–Sp3	20,5 cm	20,1 cm
Sp3–Sp4	8,5 cm	8,5 cm
Zylinderlinsen	$f_{ZL1} = 100$ mm $f_{ZL2} = 700$ mm	$f_{ZL1} = 100$ mm $f_{ZL2} = 200$ mm
Abstand der Zylinderlinsen		
Sp4 – ZL1	~ 14 cm	~ 14 cm
ZL1 – ZL2	~ 31 cm	$\sim 55,5$ cm
Kristallabmessungen	$3 \times 3 \times 11$ mm	$3 \times 3 \times 11$ mm
Phasenangepassungswinkel	$\theta = 50,1^\circ$	$\phi = 31,9^\circ, \theta = 90^\circ$
Überhöhung der fundamentalen Strahlen	> 60	> 60
Lieferant des Kristalls	Cleveland Crystals	Photox

Um Kondensation von Feuchtigkeit auf die Kristalle zu verhindern, werden sie über eine Temperaturregelung (OMRON) auf einer Temperatur von 45°C (LBO) bzw. 50°C (BBO) gehalten. BBO ist zudem leicht hygroskopisch. Als Heizelement dient ein Widerstand im Kristallhalter. Das frequenzverdoppelte Licht hat eine so hohe Leistungsdichte, dass Sauerstoffatome aus dem Kristall herausgerissen werden können. Zur Regeneration werden die Kristalle

mit Sauerstoff gespült. Diese Spülung verhindert zusätzlich, dass sich Staub auf die Kristallendflächen setzt und festgebrannt wird. Die Kristalle sind nicht mit einer Antireflex-Beschichtung versehen, da die im Resonator umlaufende Leistung für eine dielektrische Beschichtung zu groß ist. Stattdessen sind die Kristalle wie oben beschrieben im Brewsterwinkel geschnitten.

Die Eigenschaften der beiden Frequenzverdopplungsresonatoren sind in Tabelle 2.5 aufgelistet.

2.2.3 Quecksilberdampfzelle

Im Folgenden wird die Quecksilberdampfzelle, in der der Vier-Wellen-Mischprozess stattfindet erläutert. Die Zelle und die Vakuumpumpe ist in in Abbildung 2.16 skizziert.

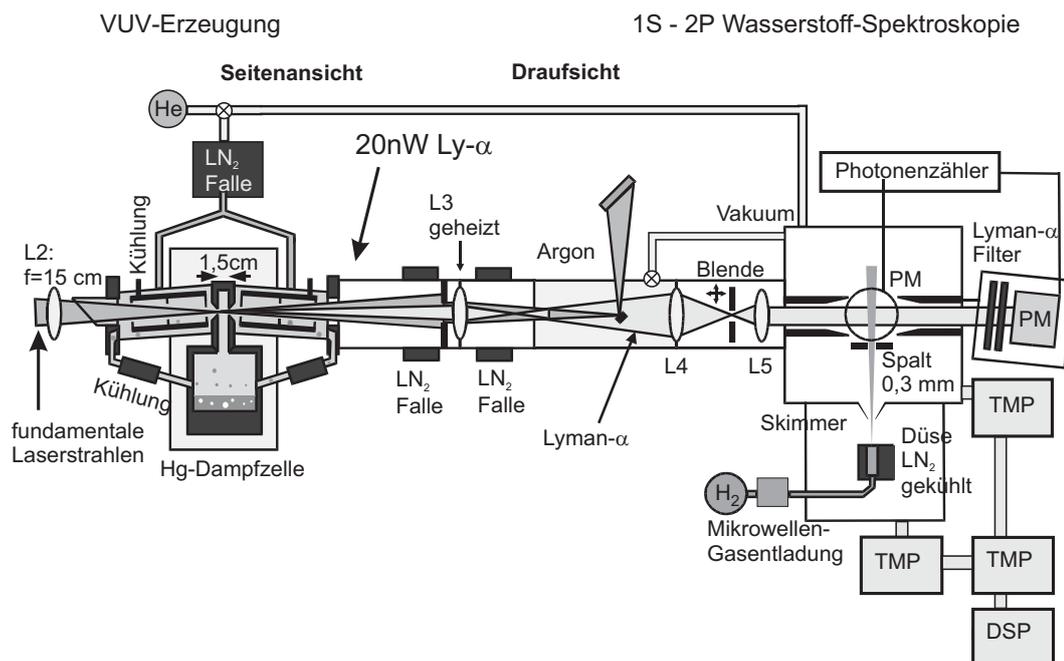


Abbildung 2.16: Aufbau des Vakuumsystems mit Quecksilberdampfzelle und der Spektroskopie. L2: Quarzlinse; L3–L5: MgF₂-Linsen; PM: Photomultiplier; LN₂: flüssiger Stickstoff; TMP: Turbo-Molekular-Pumpe; DSP: Drehschieberpumpe

Als nichtlineares Medium im Vierwellen-Mischprozess wird Quecksilberdampf verwendet. Quecksilber ist ein bei Zimmertemperatur flüssiges Metall mit einem Dampfdruck von $p_D = 2 \text{ mbar}$ bei 20°C [Ard64].

Wie schon in Abschnitt 2.1 erläutert wurde, wird die Leistung des erzeugten Lichts größer, je stärker die Fundamentalstrahlen fokussiert werden. Dies ist aber nur bedingt möglich. Zum einen ist man wegen der Größe der Quecksilberdampfzelle mit der Fokusslänge begrenzt, und zum anderen darf der Druck, den man dann einstellen muss, um mit $b\Delta k = -4$ die optimale Phasen Anpassung zu erhalten, nicht zu hoch werden, da sonst die die Zelle abschließenden optischen Elemente mit Quecksilber kontaminiert werden. Man muss also einen Kompromiss zwischen möglichst starker Fokussierung und möglichst geringem Druck finden. Mit $f_{L2} = 150$ mm und einem Quecksilber-Druck von 45,6 mbar ist ein guter Kompromiss gegeben, wie Abbildung 2.11 aus Abschnitt 2.1.5 zeigt.

Die Seite, in der die fundamentalen Strahlen eintreten, ist durch ein im Winkel von 45° mit Torrseal aufgeklebtes 3 mm dickes Quarzplättchen gegenüber Normaldruck abgeschlossen. In der Quecksilberdampfzelle befindet sich neben dem Quecksilber ca. 65 mbar Helium, das als Puffergas dient. An der anderen Seite ist eine mit Indium gedichtete Linse angebracht, welche die mit Helium gefüllte Zone von dem darauf folgenden Bereich abtrennt, der zum Nachweis beziehungsweise zur Spektroskopie führt und auf den später noch eingegangen wird.

Die Quecksilberdampfzelle besteht aus einem Reservoir, in dem sich 300 g Quecksilber befinden, das auf bis zu 220°C geheizt wird. Über diesem Reservoir befindet sich ein schmaler, ebenfalls auf 220°C geheizter Schacht, in dem ein der Temperatur entsprechender Druck von 45,6 mbar herrscht [Ard64]. Zwei Löcher erlauben optischen Zugang. Die langen Seitenteile werden von Ethylenglycol, das durch eine Farbstofflaser-Pumpe umgewälzt wird, durchflossen und damit auf ca. 20°C gekühlt. Durch die optischen Zugänge können Quecksilberatome aus dem Schacht entweichen. Diese sollten durch Stöße mit dem Puffergas daran gehindert werden, auf geradem Weg die Optiken zu erreichen. Sie werden dazu gezwungen, mit der Wand zu thermalisieren und werden über die wassergekühlten seitlichen Rohre in das Reservoir zurückgeführt. In diesen Rohren befinden sich jeweils drei Blenden, welche die Entstehung von Konvektionsströmen aufgrund der thermischen Gradienten zwischen geheiztem Schacht und Fenster beziehungsweise Linse verhindern. In der vorherigen Version der Quecksilberdampfzelle waren diese Blenden noch nicht vorhanden, was dazu führte, dass das Fenster beziehungsweise die Linse schon bei sehr niedrigen Temperaturen bedampft wurden. Sowohl durch diese Blenden, als auch durch das Puffergas wird dies verhindert. Bei zu hohen Temperaturen und damit einem zu hohen Druck, könnte das Quecksilber jedoch als Atomstrahl

aus den Löchern wie aus einer Düse austreten und damit auf direktem Weg das Fenster und die Linse kontaminieren. Sowohl die Linse als auch das Fenster werden daher auf 65 °C geheizt, um Niederschlag von Teilchen zu soweit wie möglich zu verhindern. Die Vakuumrohre vor und hinter der Linse werden darüberhinaus mit Hilfe von flüssigem Stickstoff gekühlt, um Verunreinigungen dort ausfrieren zu lassen.

Um unnötige Kontamination der Optiken zu vermeiden, wird die Quecksilberdampfzelle nur zum Experimentieren aufgeheizt. Das Heizen der Quecksilberdampfzelle führt dazu, dass Teilchen von den Wänden abgasen, so wie es beim Ausheizen von Vakuumapparaturen erwünscht ist. Hier ist dies jedoch störend, da diese Gase im VUV absorbieren können. So gab es z. B. ein Problem, als die Seitenteile der Quecksilberdampfzelle noch mit Wasser gekühlt wurden. Molekularer Wasserstoff ist vermutlich durch die Stahlwände diffundiert und über eine Reaktion, bei der Quecksilberatome, molekularer Wasserstoff und UV-Licht beteiligt sind, zu atomarem Wasserstoff gespalten worden. Die Gase werden daher im kalten Zustand der Quecksilberdampfzelle zusammen mit dem Puffergas vor dem Aufheizen durch eine Turbomolekularpumpe mehrere Stunden abgepumpt. Ein Wellenschlauch verbindet die Quecksilberdampfzelle mit der Spektroskopiekammer, die von einer großen Turbomolekularpumpe (1000 l/s, Pfeiffer TMU 1600 MC) gepumpt wird. Um zu verhindern, dass Quecksilberatome in die Spektroskopiekammer und die Turbomolekularpumpe gelangen, befindet sich vor der Pumpe ein mit flüssigem Stickstoff gekühltes Stahlrohr, eine so genannte Kühlfalle, die Restteilchen ausfrieren lässt. Nach dem Abpumpen wird die Quecksilberdampfzelle mit Helium gefüllt. Dies geschieht auch über die Kühlfalle, um eventuellen im Helium befindlichen Schmutz auszufrieren. Das Aufheizen dauert typischerweise eine Stunde.

Um die fundamentalen Strahlen von dem erzeugten VUV-Strahl zu trennen, befindet sich im Strahlengang hinter der Quecksilberdampfzelle die Linse L3 ($f_{L3} = 130$ mm für die Wellenlänge 120 nm) aus Magnesiumfluorid (MgF_2) (Acton). MgF_2 ist ein bis 120 nm ausreichend transparentes Material, dessen Transmission 48 % bei einer Dicke von 2–3 mm beträgt [Act02]. Durch die Dispersion der Linse fokussiert der VUV-Strahl sehr weit vor den Fundamentalstrahlen, in deren Foki ein polierter Stahlstift steht, der diese aus der Vakuumapparatur herausreflektiert. Die Abschwächung des VUV-Strahls durch dieses Hindernis kann auf 20 % abgeschätzt werden.

Die Linse L3 ist mit einem Indiumdraht auf einen CF-40 Vakuumflask

gequetscht und dichtet somit den Bereich, in dem sich Quecksilberdampf und Helium befindet, gegenüber dem Vakuum-Bereich ab. Die Linse L3 bleibt auf der Helium-Seite weitgehend sauber. Auf der Vakuum-Seite hingegen bildet sich ein bräunlicher Fleck auf der Linse, der wahrscheinlich darauf zurückzuführen ist, dass organische Moleküle, die sich als Verunreinigungen noch im Vakuum befinden, durch die hohe Leistung des UV-Lichts aufgebrochen werden und sich auf der Linse niederschlagen. Dies kann durch ein zusätzliches Puffergas, in diesem Fall Argon, verhindert werden. Die ebenfalls mit Indiumdraht an einen Flansch gequetschte Linse L4 dichtet den mit Argon gefüllten Bereich vom Rest des Vakuums ab. Ab dort ist kein Puffergas mehr nötig, da die Leistung der VUV-Strahlung sehr gering ist und höchstens Streulicht der UV-Strahlung auftritt.

Die zwei MgF_2 -Linsen L4 und L5 (Acton) mit $f_{L4} = 65\text{ mm}$ und $f_{L5} = 32\text{ mm}$ für 120 nm bilden mit einem Abstand von 185 mm ein Teleskop. Diese Teleskoplinsen werden, wie in Kapitel 3 erläutert wird, benötigt, um den Strahl zu kollimieren. Der daraus resultierende Strahldurchmesser kann mithilfe der ABCD-Matrizen-Methode [Kog66] zu 1 cm bestimmt werden. Im Fokus zwischen den Linsen befindet sich eine Blende mit einer 5 mm großen Öffnung, die in allen drei Raumrichtungen verschiebbar ist und auch aus dem Strahlengang heraus geklappt werden kann. Der Photomultiplier (Hamamatsu, R1459), mit dem die VUV-Photonen gezählt werden, ist im Prinzip „solarblind“, d. h., dass die Quanteneffizienz für Wellenlängen $> 180\text{ nm}$ unter 1% liegt und größere Wellenlängen rapide abnimmt. Bei 257 nm hat der Photomultiplier noch eine Quanteneffizienz von $0,001\%$. Nimmt man beispielsweise eine Leistung von 10 nW bei Lyman- α an, dann reichen $40\text{ }\mu\text{W}$ Streulicht bei 257 nm aus, um eine genauso große Zählrate wie für Lyman- α zu erhalten. Die Blende soll also verhindern, dass Streulicht auf den Photomultiplier trifft und auch in die Spektroskopiezone gelangt. Die Transmission der VUV-Strahlung wird mit 90% abgeschätzt. Zusätzlich befinden sich zwei Interferenzfilter, so genannte Lyman- α -Filter (Acton), vor dem Photomultiplier, die nur 18% des Lichts bei Lyman- α aber auch nur $<0,8\%$ des Lichts der Fundamentalen transmittieren. Die VUV-Photonen, die auf den Photomultiplier, dessen Quanteneffizienz bei Lyman- α etwa 12% beträgt treffen, werden dann mittels eines Photonenzählers (SR 400, Stanford Research) gezählt. Die gesamte Detektionseffizienz, die durch das Verhältnis von gezählten zu erzeugten Photonen gegeben ist, ergibt sich somit zu $0,03\%$.

2.3 Experimentelle Ergebnisse

2.3.1 Zwei-Photonen-Resonanz

In Abschnitt 2.1.4 wurde dargelegt, wie zur Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität und damit der Intensität der VUV-Strahlung Resonanzen ausgenutzt werden können. In dem hier beschriebenen Experiment wird eine Zwei-Photonen-Resonanz auf dem $6^1S - 7^1S$ -Übergang ausgenutzt.

Im Experiment wird Quecksilber verwendet, das aus einem natürlichen Isotopengemisch (siehe Abschnitt 2.1.4) besteht. Die Isotope mit gerader Massenzahl haben einen Kernspin $I = 0$, ^{199}Hg hat $I = \frac{1}{2}$ und ^{201}Hg hat $I = \frac{3}{2}$. Für das 7^3S -Niveau, in dem der Gesamt-Elektronenspin $S = 1$ ist, gibt es wegen ihres Kernspins I eine Hyperfeinaufspaltung für die Isotope ^{199}Hg und ^{201}Hg . Für das 7^1S -Niveau, in dem der Gesamt-Elektronenspin $S = 0$ ist, gibt es bei allen Isotopen keine Hyperfeinaufspaltung.

Die Isotopieverschiebung des 7^1S -Niveaus, die sich aus den unterschiedlichen Massen der Isotope ergibt, beträgt jeweils einige Gigahertz, so dass nur ein Isotop zur resonanten Überhöhung beim Vier-Wellen-Mischprozess teilnehmen kann. Da ^{202}Hg das am häufigsten vorhandene Isotop ($\sim 30\%$) ist, wird dessen Resonanz ausgenutzt. Die Überhöhung durch die Zwei-Photonen-Resonanz ist in Abbildung 2.17 zu sehen. Auf den Maxima ist die Resonanzbedingung jeweils für die einzelnen Isotope erfüllt. Man erkennt, dass die Zählrate der VUV-Strahlung um ein 20-faches größer ist wenn die Laser auf das Maximum der Zwei-Photonen-Resonanz gestimmt ist, als wenn die Verstimmung beispielsweise $0,4\text{ cm}^{-1}$ zum ^{202}Hg -Isotop beträgt. Dies zeigt, dass die Ausnutzung der Zwei-Photonen-Resonanz die Leistung der erzeugten VUV-Strahlung signifikant erhöhen kann.

Um den Einfluss der Zwei-Photonen-Resonanz zu messen, wurde die Leistung des generierten Lichts im VUV bei $121,56\text{ nm}$ aufgenommen, während der Titan-Saphir-Laser mittels eines internen Galvoplättchens und damit das Licht bei 399 nm im Bereich einiger Gigahertz durchgestimmt wurde. Die Leistung der VUV-Strahlung bei $121,56\text{ nm}$ kann über einen Bereich von einigen Gigahertz als konstant angenommen werden.

Die natürliche Linienbreite des 7^1S -Niveaus ist gegeben über die Lebens-

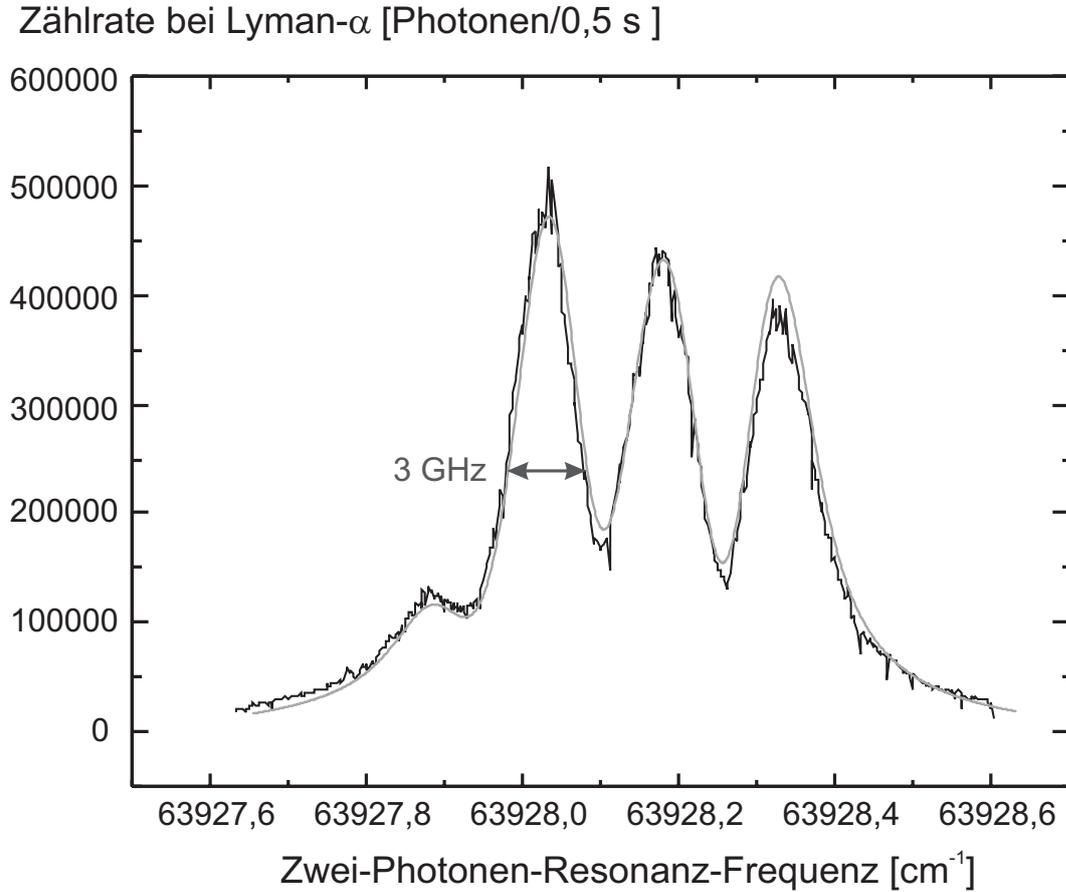


Abbildung 2.17: Gemessene Linienform der Zwei-Photonen-Resonanz. Die helle überlagerte Linie zeigt die berechnete Zwei-Photonen-Resonanz, wie sie in Abbildung 2.8 dargestellt ist.

dauer von $\tau = 32,1 \text{ ns}$ [Ben89] durch

$$\Gamma = \frac{1}{\tau} = 2\pi \times 5,0 \text{ MHz.} \quad (2.68)$$

Die Dopplerbreite (Volle Breite bei halbem Maximum, Full Width Half Maximum, FWHM) $\Delta\omega_D$ lässt sich bei einer Temperatur $T = 220 \text{ }^\circ\text{C}$ zu

$$\Delta\omega_D = \omega_0 \sqrt{\frac{8k_B T \ln 2}{mc^2}} = 2\pi \times 2,15 \text{ GHz} \quad (2.69)$$

bestimmen. ω_0 ist die Kreisfrequenz des Zwei-Photonen-Übergangs auf das Niveau, k_B ist die Boltzmannkonstante, m die Masse des Quecksilberatoms und c die Lichtgeschwindigkeit. Die Linienbreite ist durch die Funktion $S(\omega_1 + \omega_2)$ (Gl.2.56) gegeben, die in Abschnitt 2.1.4 hergeleitet wurde. Zu der gemessenen

Linienbreite von 3 GHz trägt hauptsächlich die Dopplerbreite (2.69) bei. Die Druckverbreiterung kann durch Anpassen der berechneten Linienform (vgl. Abbildung 2.8) an die gemessene Linie zu 1,25 GHz abgeschätzt werden. Da die Isotopieverschiebung des 7^1S -Niveaus größer als die Verbreiterung der Linie ist, können die Isotope gut aufgelöst werden.

Zu der Zwei-Photonen-Resonanz tragen jeweils nur Atome eines Isotops bei. Bei ^{202}Hg sind das etwa 30%. Bei der Verwendung von isotonenreinem Quecksilber ist eine Erhöhung der Leistung der erzeugten Strahlung um einen Faktor zehn zu erwarten. Allerdings kostet 1 mg isotonenreines Quecksilber ca. 60 EUR. In unserer jetzigen Quecksilberdampfzelle befinden sich 300 g Quecksilber. Die Verwendung von isotonenreinem Quecksilber würde daher die Entwicklung einer neuen Dampfzelle mit geringem Quecksilber-Vorrat erfordern.

2.3.2 Wellenlängenabhängigkeit der VUV-Strahlung

Die Wellenlänge des Titan-Saphir-Laser wird so gewählt, dass die Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg -Isotops erreicht wird. Das Wavemeter, das die Wellenlänge der drei Laser misst, hat eine Messgenauigkeit von $\pm 0,01 \text{ cm}^{-1}$. Der Titan-Saphir-Laser lässt sich auf diese Genauigkeit einstellen. Er lässt sich bei dieser Frequenz über mehrere Stunden auf den internen Referenzresonator locken. Ab und zu springt der singlemode Ar^+ -Laser auf eine andere Mode des Etalons, dann muss die Frequenz des Titan-Saphir-Lasers per Hand nachgestellt werden.

Der Wellenlängenbereich der erzeugten VUV-Strahlung ist durch den Wellenlängenbereich des Farbstoffes gegeben, mit dem der Farbstofflaser betrieben wird. Mit Rhodamin 110 läuft der Laser von 540 nm bis 580 nm recht stabil. Damit ergibt sich ein Bereich im VUV von 121 nm bis 123 nm. Mit einem anderen Farbstoff könnte man diesen Bereich noch erweitern, da wir aber hauptsächlich an Strahlung bei Lyman- α interessiert sind, ist mit Rhodamin 110 der optimale Farbstoff gewählt worden. Um die Wellenlängenabhängigkeit aufzunehmen, muss der Farbstofflaser über mehrere Nanometer durchgestimmt werden. Dazu ist das Lyotfilter des Lasers als größtes Stellelement am geeignetsten. An der Verstellerschraube ist ein Motor angebracht, der das Filter gleichmäßig dreht. Das Lyotfilter ist nicht kontinuierlich durchstimmbar, sondern macht Sprünge von 7 cm^{-1} , die aber nicht aufgelöst werden. Die an dem Photomultiplier gezählten Photonen werden über eine Sekunde integriert.

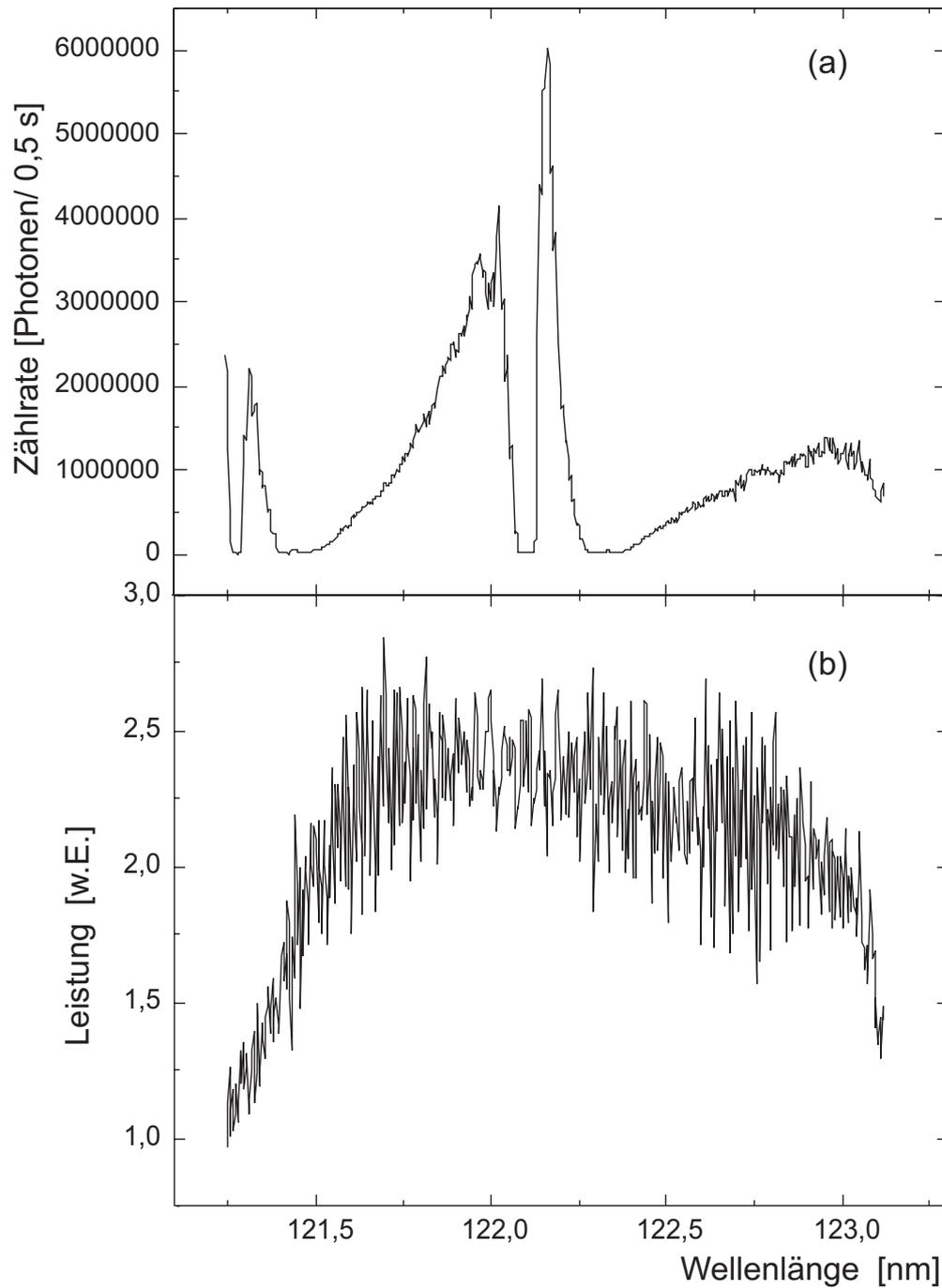


Abbildung 2.18: (a) Gemessene Wellenlängenabhängigkeit der Leistung der durch Vier-Wellen-Mischen erzeugten VUV-Strahlung. (b) Wellenlängenabhängigkeit der Leistung des Farbstofflasers.

In Abbildung 2.18(a) ist die Wellenlängenabhängigkeit der erzeugten VUV-Strahlung in der Nähe von Lyman- α gezeigt. Dargestellt sind die am Photomultiplier gezählten Photonen pro Sekunde. Abbildung 2.18(b) zeigt die Leistung des Farbstofflasers, der wie zu sehen, nicht bei allen Wellenlänge die gleich Leistung liefert.

Die Leistung \mathcal{P} ergibt sich aus

$$\mathcal{P} = \frac{\# \text{ Photonen}}{\text{s}} h\nu. \quad (2.70)$$

Die tatsächliche Leistung erhält man, wenn man die in Abschnitt 2.2.3 beschriebene gesamte Detektionseffizienz von 0,03 % einrechnet. Bei dem hier gezeigten Spektrum ergibt sich bei gemessenen $1,1 \times 10^6$ Photonen/s bei Lyman- α eine Leistung von 6 nW. Die Leistungen der fundamentalen Strahlen bei 399 nm, 257 nm und 545 nm betragen dabei jeweils etwa 620 mW, 520 mW und 1,3 W, was jeweils 435 mW, 310 mW und 910 mW effektiver Leistung in der Quecksilberdampfzelle entspricht. Dies sind typische erreichbare Leistungen. Die berechnete (s. Abbildung 2.12) und die gemessene Wellenlängenabhängigkeit der Leistung der VUV-Strahlung stimmen gut überein. Die Maxima in dem gemessenen Spektrum sind endlich, im Gegensatz zu denen im berechneten Spektrum, was sowohl durch die Linienbreiten der benachbarten Niveaus als auch durch Absorption der generierten Strahlung zustande kommt. Dies wurde in den Berechnungen nicht berücksichtigt.

Die Leistung der erzeugten Strahlung kann einerseits erhöht werden, indem die Leistungen der Fundamentalstrahlen erhöht werden. Eine Leistung von 20 nW konnte mit fundamentalen Leistungen von 810 mW, 850 mW und 1,7 W, was jeweils 0,57 mW, 0,5 mW und 1,2 W entspricht, erzeugt werden. Die von uns verwendeten Laser werden nahezu an den jeweiligen maximalen Ausgangsleistungen betrieben, so dass so keine Erhöhung zu erwarten ist.

Zum anderen kann die Leistung erhöht werden, indem stärker in das nichtlineare Medium fokussiert wird. Aus Gl.(2.32) entnimmt man, dass die Leistung quadratisch zum Kehrwert des konfokalen Parameters ist. Das bedeutet, je stärker fokussiert wird, desto mehr Leistung kann bei gleicher Phasen Anpassung erzeugt werden. Um weiterhin optimale Phasen Anpassung mit $(b\Delta k) = -4$ zu gewährleisten, muss die Phasenfehlanpassung $|\Delta k|$ vergrößert werden. Dies ist möglich, indem die Dichte des nichtlinearen Mediums erhöht wird. Dies hat zur Folge, dass durch höhere Druckverbreiterung das Maximum der Zwei-Photonen-Resonanz kleiner wird. Dieser Effekt ist jedoch gegenüber dem dominierenden Effekt der Leistungserhöhung durch das schärfere Fokus-

sieren vernachlässigbar.

Eine weitere Möglichkeit, die Leistung zu erhöhen, besteht darin, die nicht-lineare Suszeptibilität, speziell χ_{12} , dadurch zu erhöhen, dass die Verstimmung der Wellenlänge der ersten Laserstrahlung zum 6^3P -Niveau verkleinert wird. Damit wird der Wert der Phasenfehlanpassung Δk bei Lyman- α kleiner und es ändert sich damit die Phasenanpassung $|G(b\Delta k)|^2$. Um die Phasenanpassung zu optimieren, kann man in dem Fall den Druck und damit Δk oder die Fokussierung, also den konfokalen Parameter b ändern. Erniedrigung der Temperatur und damit des Druckes bei gleich bleibendem konfokalen Parameter führt dazu, dass sowohl die Druck- als auch die Dopplerverbreiterung kleiner werden und das Maximum der Zwei-Photonen-Resonanz größer wird, und damit die Leistung der erzeugten VUV-Strahlung zusätzlich erhöht werden würde. Änderung vom konfokalen Parameter bei unverändertem Druck heißt weniger scharf zu fokussieren, was zur Folge hat, dass die erzeugte Leistung geringer werden würde. Detaillierte Abschätzungen werden im Ausblick beschrieben.

Es konnte die Erzeugung von kontinuierlicher Strahlung bei Lyman- α mit einer Leistung von bis zu 20 nW gezeigt werden. Typischerweise werden 10 nW, mit denen eine Spektroskopie, wie sie im nächsten Kapitel beschrieben wird, durchgeführt wird, erzeugt. Eine Erhöhung der Leistung wäre in vielerlei Hinsicht wünschenswert. Mit dem momentanen Aufbau ist dies allerdings nicht möglich.

Kapitel 3

Kontinuierliche kohärente Lyman- α -Spektroskopie an Wasserstoff

3.1 Theoretische Beschreibung

Die Energieniveaus des Wasserstoffatoms lassen sich theoretisch sehr genau bestimmen. Mehrere wichtige Niveauabstände sind experimentell mit höchster Präzision bestimmt worden. Einen Überblick gibt z. B. [Eid01]. Nachfolgend sind die wichtigsten Daten für die 1S-2P-Spektroskopie zusammengestellt.

Die Energie eines Zustands mit den Quantenzahlen n (Hauptquantenzahl), L (Bahndrehimpuls), S (Elektronenspin), J (Gesamtdrehimpuls), I (Kernspin) und F (Gesamtspin) kann wie folgt ausgedrückt werden:

$$E(n, J, L, S, F, I) = E_{\text{Dirac}}(n, J, L, S) + E_{\text{Lamb}}(n, J, L) + E_{\text{HFS}}(n, J, L, F, I). \quad (3.1)$$

E_{Dirac} bezeichnet die Energie des Niveaus aufgrund der Coulombwechselwirkung zwischen Kern und Elektron. Sie beinhaltet durch Diracs relativistische Betrachtung des Elektrons die Spin-Bahn-Kopplung und die daraus resultierende Feinstruktur. Mit E_{Lamb} werden zusätzliche Beiträge durch die endliche Kernmasse und die aus der quanten-elektrodynamischen Betrachtung resultierende Selbstenergie sowie Quantenfluktuationen berücksichtigt, die die Lamb-Verschiebung und damit die Aufhebung der Entartung der Bahndrehimpulse verursachen. Der dritte Term, E_{HFS} , berücksichtigt die Wechselwirkung zwi-

schen magnetischem Dipol- und elektrischem Quadrupolmoment des Kerns mit dem Elektron. Daraus resultiert die Hyperfeinstruktur. Auf eine eingehende theoretische Beschreibung der einzelnen Terme wird hier verzichtet und auf ausführliche Arbeiten verwiesen: [Eid01], [Pac96], [Hub97], [Nie00]. Für die Niveaus $n = 1$ und $n = 2$ werden nun die wichtigsten Beiträge zur Aufspaltung beschrieben.

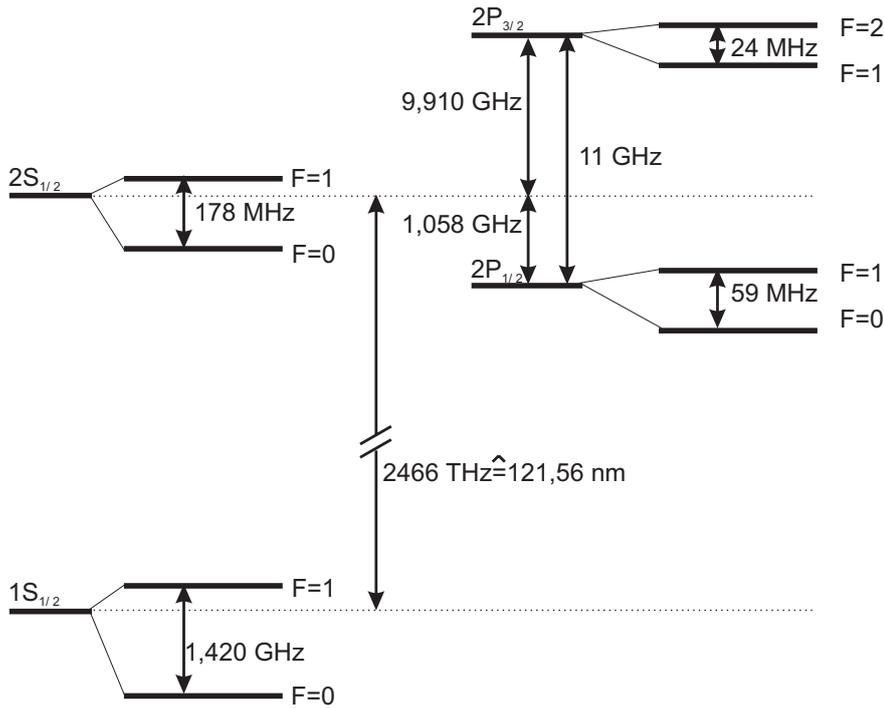


Abbildung 3.1: Energieniveauschema der Niveaus $n = 1$ und $n = 2$ des Wasserstoffatoms (nicht maßstabsgetreu).

Aus der Kopplung zwischen dem Bahndrehimpuls \vec{L}^1 und dem Elektronenspin \vec{S} resultiert die Feinstruktur und es ergibt sich ein Gesamtdrehimpuls von $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$; aus der Kopplung zwischen dem Gesamtdrehimpuls \vec{J} und dem Kernspin \vec{I} resultiert die Hyperfeinstruktur und es ergibt sich ein Gesamtspin $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$. Der Elektronenspin ist $S = \frac{1}{2}$. Für einen S-Zustand ($L = 0$) gibt es keine Feinstruktur, der Gesamtdrehimpuls ist immer $J = \frac{1}{2}$. Für einen P-Zustand ($L = 1$) ergibt sich eine Feinstruktur-Aufspaltung: $J = \frac{3}{2}$ und $J = \frac{1}{2}$. Mit dem Kernspin $I = \frac{1}{2}$ ergeben sich die Hyperfeinzustände $F = 0$ und $F = 1$ für die Zustände mit $J = \frac{1}{2}$ sowie $F = 1$ und $F = 2$ für die

¹Die Drehimpulsoperatoren werden hier als Vektoren dargestellt, deren Eigenwerte als entsprechende Buchstaben.

Zustände mit $J = \frac{3}{2}$. Durch die Lamb-Verschiebung wird die Entartung der $2S_{1/2}$ - und $2P_{1/2}$ -Niveaus aufgehoben. Die Energieniveaus von $n = 1$ und $n = 2$ mit Berücksichtigung der Fein- und Hyperfeinstruktur sind in Abbildung 3.1 skizziert.

3.1.1 Linienstärken

Betrachtet man optische Übergänge, insbesondere Dipolübergänge, ist man an den Linienbreiten und an den Linienstärken, d. h. an der Intensität eines Übergangs interessiert. Die natürliche Linienbreite Γ_{2P}^{nat} des $1S \rightarrow 2P$ -Übergangs ist durch die Lebensdauer τ des $2P$ -Niveaus gegeben. Mit $\tau = 1,6 \text{ ns}$ [Cor77] ergibt sich $\Gamma_{2P}^{\text{nat}} = 2\pi \times 100 \text{ MHz}$.

Die Übergangs-Linienstärken $S(\gamma, \gamma')$ sind für Anfangs- und Endzustände symmetrisch, d. h. $S(\gamma, \gamma') = S(\gamma', \gamma)$. Für zusammengesetzte Drehimpulse $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$ gilt [Sob79]:

$$S(\gamma I J F; \gamma' I J' F') = \frac{(2F+1)(2F'+1)}{(2I+1)} \left\{ \begin{array}{ccc} J & F & I \\ F' & J' & 1 \end{array} \right\}^2 S(\gamma I J; \gamma' I J') \quad (3.2)$$

γ bezeichnet alle sonstigen Quantenzahlen, die zur Berechnung von S nicht relevant sind. Die geschweiften Klammern bezeichnen das so genannte $6j$ -Symbol. $6j$ -Symbole können mithilfe der Formel von Racah [Mes85] berechnet werden. Diese Formel enthält zwar nur elementare Funktionen, ist aber sehr mühsam zu berechnen. Nützt man diverse Symmetrien und Sonderfälle aus, können die gesuchten $6j$ -Symbole in bekannte umgeformt und z. B. in [Sob79] nachgeschlagen werden. In Tabelle 3.1 sind die für die Berechnung von Gl.(3.2) beziehungsweise (3.4) wichtigen $6j$ -Symbole aufgeführt. Da $S(\gamma I J; \gamma' I J')$ nicht von F und L abhängt, ist es für alle Übergänge $1S_{1/2} \rightarrow 2P_{3/2}$, beziehungsweise $1S_{1/2} \rightarrow 2P_{1/2}$ gleich.

Um relative Höhen von Linien in einem Spektrum zu beschreiben, ist es nützlich, relative Übergangslinienstärken S_R zu definieren:

$$S_R(F, F') = \frac{S(\gamma I J F; \gamma' I J' F')}{S(\gamma I J; \gamma' I J')} \quad (3.3)$$

$$= \frac{(2F+1)(2F'+1)}{(2I+1)} \left\{ \begin{array}{ccc} J & F & I \\ F' & J' & 1 \end{array} \right\}^2 \quad (3.4)$$

Für den Übergang $1S_{1/2} \rightarrow 2P_{3/2}$ ergeben sich folgende relative Übergangs-

Tabelle 3.1: $6j$ -Symbole für die Berechnung von $S_R(F, F')$ (Gl.(3.4))

Übergang	$6j$ -Symbol
$1S_{1/2}(F = 0) \rightarrow 2P_{1/2}(F' = 0) :$	$\left\{ \begin{array}{ccc} 1/2 & 0 & 1/2 \\ 0 & 1/2 & 1 \end{array} \right\} = 0$
$1S_{1/2}(F = 0) \rightarrow 2P_{1/2}(F' = 1) :$	$\left\{ \begin{array}{ccc} 1/2 & 0 & 1/2 \\ 1 & 1/2 & 1 \end{array} \right\} = 1/\sqrt{6}$
$1S_{1/2}(F = 1) \rightarrow 2P_{1/2}(F' = 0) :$	$\left\{ \begin{array}{ccc} 1/2 & 1 & 1/2 \\ 0 & 1/2 & 1 \end{array} \right\} = 1/\sqrt{6}$
$1S_{1/2}(F = 1) \rightarrow 2P_{1/2}(F' = 1) :$	$\left\{ \begin{array}{ccc} 1/2 & 1 & 1/2 \\ 1 & 1/2 & 1 \end{array} \right\} = -1/\sqrt{9}$
$1S_{1/2}(F = 0) \rightarrow 2P_{3/2}(F' = 1) :$	$\left\{ \begin{array}{ccc} 1/2 & 0 & 1/2 \\ 1 & 3/2 & 1 \end{array} \right\} = -1/\sqrt{6}$
$1S_{1/2}(F = 1) \rightarrow 2P_{3/2}(F' = 1) :$	$\left\{ \begin{array}{ccc} 1/2 & 1 & 1/2 \\ 1 & 3/2 & 1 \end{array} \right\} = -1/\sqrt{36}$
$1S_{1/2}(F = 1) \rightarrow 2P_{3/2}(F' = 2) :$	$\left\{ \begin{array}{ccc} 1/2 & 1 & 1/2 \\ 2 & 3/2 & 1 \end{array} \right\} = 1/\sqrt{12}$

Linienstärken:

$$(F = 0 \rightarrow F' = 1) : (F = 1 \rightarrow F' = 1) : (F = 1 \rightarrow F' = 2) = 2 : 1 : 5. \quad (3.5)$$

Für den Übergang $1S_{1/2} \rightarrow 2P_{1/2}$ ergeben sich folgende relative Übergangs-Linienstärken:

$$(F = 0 \rightarrow F' = 1) : (F = 1 \rightarrow F' = 0) : (F = 1 \rightarrow F' = 1) = 1 : 1 : 2. \quad (3.6)$$

Der Übergang $(F = 0 \rightarrow F' = 0)$ ist verboten.

Das Verhältnis der Übergangs-Linienstärken zwischen den Niveaus der Feinstruktur wird ebenso bestimmt wie für die Niveaus der Hyperfeinstruktur, lediglich $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ ist nun der zusammengesetzte Drehimpuls. Die relative Übergangslinienstärke lautet hier:

$$S_R(J, J') = \frac{S(\gamma SLJ; \gamma' SL' J')}{S(\gamma SL; \gamma' SL')} \quad (3.7)$$

$$= \frac{(2J+1)(2J'+1)}{(2S+1)} \left\{ \begin{array}{ccc} L & J & S \\ J' & L' & 1 \end{array} \right\}^2 \quad (3.8)$$

Tabelle 3.2: $6j$ -Symbole für die Berechnung von $S_R(J, J')$ (Gl.(3.8))

Übergang	$6j$ -Symbol
$1S_{1/2} \rightarrow 2P_{1/2}$	$\left\{ \begin{array}{ccc} 0 & 1/2 & 1/2 \\ 1/2 & 1 & 1 \end{array} \right\} = 1/\sqrt{6}$
$1S_{1/2} \rightarrow 2P_{3/2}$	$\left\{ \begin{array}{ccc} 0 & 1/2 & 1/2 \\ 3/2 & 1 & 1 \end{array} \right\} = -1/\sqrt{6}$

In Tabelle 3.2 sind die für die Berechnung von Gl.(3.8) relevanten $6j$ -Symbole angegeben. Für den Übergang $1S \rightarrow 2P$ ergeben sich damit folgende relative Übergangslinienstärken:

$$(J = 1/2 \rightarrow J' = 1/2) : (J = 1/2 \rightarrow J' = 3/2) = 1 : 2 \quad (3.9)$$

Aus den Gleichungen (3.5), (3.6) und (3.9) ergibt sich, dass, wie in Abbildung 3.2 dargestellt, $1S_{1/2}(F = 1) \rightarrow 2P_{3/2}(F' = 2)$ der stärkste Übergang ist.

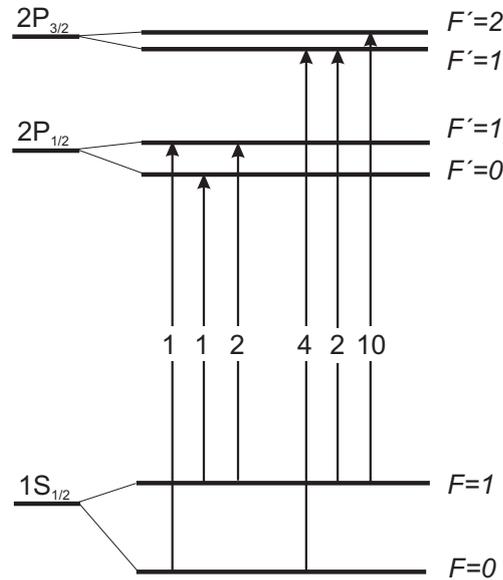


Abbildung 3.2: relative Übergangslinienstärken

Die Oszillatorstärken $f(\gamma L; \gamma' L')$ hängen mit den Übergangslinienstärken über

$$-f(\gamma L; \gamma' L') = \frac{2m_e}{3\hbar e^2} \frac{\omega_{\gamma\gamma'}}{(2L+1)} S(\gamma L; \gamma' L') \quad (3.10)$$

zusammen [Sob79], wobei m_e die Elektronenmasse und e die Elementarladung ist. Die Oszillatorstärken können in Tabellen (z. B. [Wie66]) nachgeschlagen werden.

Hier ist noch anzumerken, dass die Übergangslinienstärken mit dem Dipolmatrixelement $\langle \gamma L M_L | \vec{D} | \gamma' L' M'_L \rangle$ über

$$S(\gamma L; \gamma' L') = \sum_{M_L, M'_L} \left| \langle \gamma L M_L | \vec{D} | \gamma' L' M'_L \rangle \right|^2 \quad (3.11)$$

in Beziehung miteinander stehen [Sob79], wobei dies nur für nicht-zusammengesetzte Drehimpulse gilt. Somit kann man die Oszillatorstärken auch mit den Dipolmatrixelementen ausdrücken.

3.1.2 Theoretische Linienform

Die Linienform, welche die natürliche Linienbreite einer Spektrallinie beschreibt, wird durch eine (auf eins normierte) Lorentzkurve beschrieben [Cor77]:

$$L(\omega - \omega_0, \Gamma) = \frac{\Gamma}{2\pi} \frac{1}{(\omega_0 - \omega)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}, \quad (3.12)$$

deren volle Halbwertsbreite (FWHM) die natürliche Linienbreite Γ ist. Um den Dopplereffekt zu berücksichtigen, muss diese Linie mit der Verteilung der Geschwindigkeiten der spektroskopierten Teilchen gefaltet werden. Die Verteilung der Geschwindigkeitskomponente v_x eines Atomstrahls in z -Richtung ist durch

$$f(v_x) dv_x = \frac{1}{\sqrt{\pi} v_0} e^{-\left(\frac{v_x}{v_0}\right)^2} dv_x \quad (3.13)$$

gegeben. Dabei wurde über die anderen Geschwindigkeitskomponenten bereits integriert. Effekte, die durch die Kollimation des Atomstrahls auftreten können, werden vernachlässigt. Rechnet man v_x auf die verschobene Frequenz ω'_0 gemäß $kv_x = (\omega'_0 - \omega_0)$ um, so ergibt sich eine (auf eins normierte) Gaußkurve [Rei87]:

$$G(\omega'_0 - \omega_0, \delta) = \frac{2}{\sqrt{\pi} \delta} e^{-\frac{4(\omega_0 - \omega'_0)^2}{\delta^2}}, \quad (3.14)$$

wobei die volle Halbwertsbreite (FWHM) $\Delta\omega_D = \sqrt{\ln 2} \delta$ die Dopplerbreite und $\delta = 2\omega_0 \frac{v_0}{c}$ ist. Bei der Faltung wird die verschobene Lorentzkurve ($\omega_0 \rightarrow \omega'_0 = \omega_0 + kv_x$) mit der Geschwindigkeitsverteilung multipliziert und

über alle Geschwindigkeiten v_x , beziehungsweise hier über alle verschobenen Frequenzen ω'_0 , integriert:

$$V(\omega - \omega_0, \Gamma, \delta) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega'_0 G(\omega'_0 - \omega_0, \delta) L(\omega - \omega'_0, \Gamma) \quad (3.15)$$

$$= \frac{\Gamma}{\pi^{3/2}\delta} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega'_0 \frac{e^{-\frac{4(\omega_0 - \omega'_0)^2}{\delta^2}}}{(\omega - \omega'_0)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}. \quad (3.16)$$

Dieses Faltungsintegral wird als Voigt-Profil bezeichnet. Dieser Ausdruck lässt sich analytisch nicht berechnen, und einfache Rechenprogramme (z. B. mathematica) sind in angemessener Zeit nicht in der Lage, dieses Integral numerisch zu lösen. Man kann aber zeigen, dass der obige Ausdruck identisch ist mit

$$V(\omega - \omega_0, \Gamma, \delta) = \text{Im} \left[\frac{2}{\delta\pi} Z(\zeta) \right], \quad (3.17)$$

$$\text{mit } \zeta = \frac{2(\omega - \omega_0 + i\frac{\Gamma}{2})}{\delta}. \quad (3.18)$$

$Z(\zeta)$ ist wie in Abschnitt 2.1.4 die Plasmadispersionsfunktion [Fri61], die sich, mit der Fehlerfunktion $\text{erf}(\zeta)$ ausgedrückt, mit einfachen Rechenprogrammen berechnen lässt:

$$Z(\zeta) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} dx \frac{e^{-x^2}}{x - \zeta} = i\sqrt{\pi} e^{-\zeta^2} (1 + \text{erf}(i\zeta)). \quad (3.19)$$

Damit lässt sich nun die tatsächliche Linienbreite einer gemessenen Linie bestimmen. Für die bekannte natürliche Linienbreite $\Gamma = 2\pi \times 100$ MHz und die durch die nicht perfekte Kollimation des Atomstrahls gegebene Dopplerbreite $\Delta\omega_D \cong 2\pi \times 30$ MHz ergibt sich eine gesamte Linienbreite (FWHM) von $2\pi \times 110$ MHz. Die Lyman- α -Strahlung ist ebenfalls mit einer endlichen Linienbreite behaftet. Da die Laser der Fundamentalstrahlen nur auf ihre internen Resonatoren stabilisiert sind, ergeben sich Linienbreiten von einigen Megahertz. Die bei Lyman- α erzeugte Strahlung hat somit eine Linienbreite von ca. 10 MHz. Es ist üblich, Laserlinienbreiten lorentzförmig anzunehmen. Berücksichtigt man in der Faltung noch zusätzlich $2\pi \times 10$ MHz, ergeben sich als gesamte Linienbreiten $2\pi \times 125,5$ MHz für den $1S_{1/2}(F=1) \rightarrow 2P_{3/2}(F'=1,2)$ -Übergang und $2\pi \times 124,0$ MHz für den $1S_{1/2}(F=0) \rightarrow 2P_{3/2}(F'=1)$ -Übergang. Dieser berechnete Wert stimmt in etwa mit der gemessenen Linienbreite von 1145,4 MHz beziehungsweise 125,8 MHz überein, womit die Abschätzung der Linienbreite der Lyman- α -Strahlung mit 10 MHz gerechtfertigt ist.

Übergangslinienstärke [w.E.]

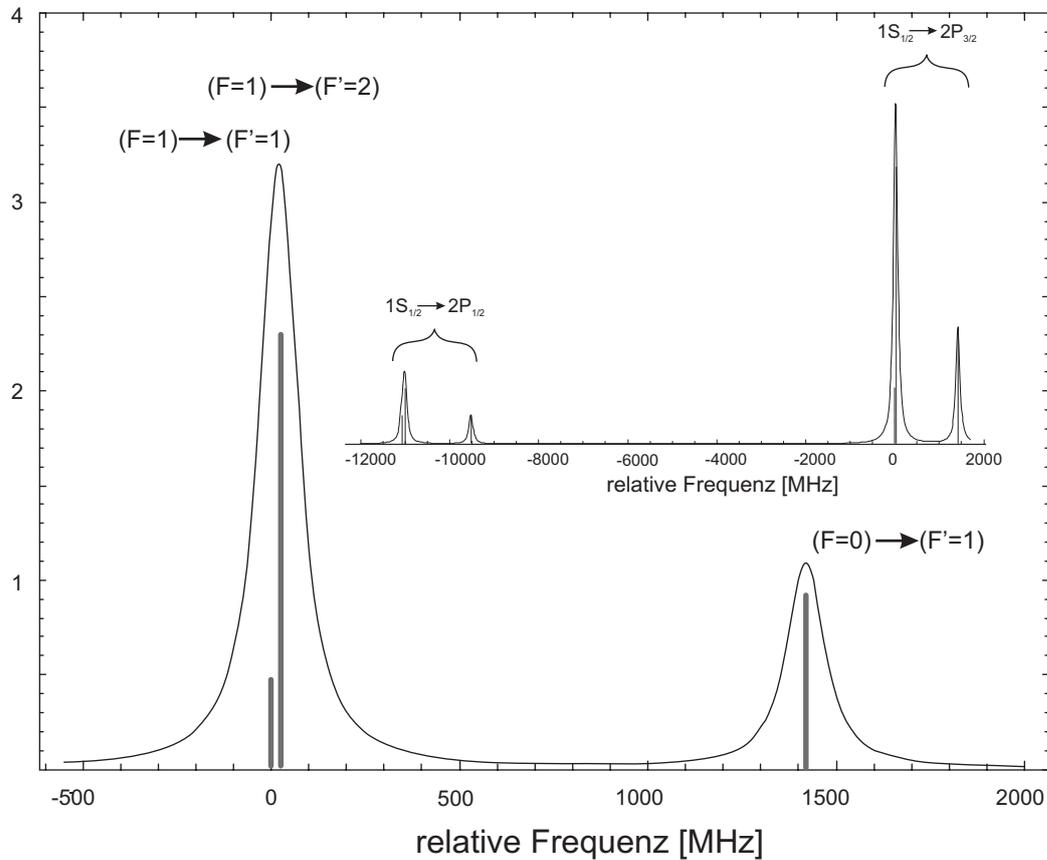


Abbildung 3.3: Theoretisches Spektrum des 1S-2P-Übergangs. Das kleine Bild zeigt alle 1S-2P-Übergänge. Das große Bild zeigt den stärksten Übergang $1S_{1/2} \rightarrow 2P_{3/2}$ mit den einzelnen Hyperfeinkomponenten. Die Balken deuten die Position und Höhe der Spektrallinien an. Die Spektrallinien ergeben sich aus der im Text beschriebenen Faltung.

Zusammen mit den Überlegungen von Abschnitt 3.1.1 ergibt sich ein theoretisches Spektrum, wie es in Abbildung 3.3 gezeigt ist. Das große Bild zeigt den Ausschnitt, der, wie in Abschnitt 3.3 beschrieben, gemessen wurde. Das kleine Bild zeigt das gesamte Spektrum. Eingezeichnet sind auch die Positionen und die relativen Höhen der zu erwartenden Linien. Das Verhältnis der relativen Linienstärken zwischen der Linie $(F = 0) \rightarrow (F' = 1)$ und der aus den Linien $(F = 1) \rightarrow (F' = 1)$ und $(F = 1) \rightarrow (F' = 2)$ resultierenden Linie kann aus dieser Abbildung zu $2 : 5,87$ bestimmt werden.

3.1.3 Abschätzung der zu erwartenden Rate

Die Wahrscheinlichkeit für einen Absorptionsprozess pro Zeiteinheit lässt sich in der Absorptionsrate R_a ausdrücken. Diese ergibt sich aus dem Absorptionsquerschnitt $\sigma_a(\omega)$ für die Frequenz ω des Photons und dem Photonenfluss n_{ph} :

$$R_a = \sigma_a(\omega)n_{\text{ph}}. \quad (3.20)$$

Der Absorptionsquerschnitt $\sigma_a(\omega_{ga})$ für den Übergang $g \rightarrow a$ ist durch [Hil81]

$$\sigma_a(\omega_{ag}) = \frac{\hbar\omega_{ag}}{c} B_{ga} g(\omega_{ag}) \quad (3.21)$$

gegeben. B_{ga} ist der Einsteinsche B -Koeffizient, der sich über [Hil81]

$$B_{ga} = \frac{g_a}{g_g} \frac{\pi^2 c^3}{\hbar\omega_{ag}^3} A_{ag} \quad (3.22)$$

bestimmen lässt, wobei A_{ag} der Einsteinsche A -Koeffizient ist, der für den 1S–2P-Übergang in Wasserstoff $6,265 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ [Wie66] beträgt. $g(\omega_{ag})$ ist die auf eins normierte Linienform des Übergangs. In unserem Fall, in dem die Dopplerbreite nicht vernachlässigt werden kann, ist $g(\omega_{ag})$ die in Abschnitt 3.1.2 beschriebene Voigtfunktion für den Wert $\omega = \omega_0 = \omega_{ag}$ (vgl. Gl.(3.16)):

$$g(\omega_{ag}) = V(0, \Gamma, \delta) \quad (3.23)$$

$$= 9,57 \times 10^{-10} \text{ s}, \quad (3.24)$$

wobei für die natürliche Linienbreite $\Gamma = 2\pi \times 100 \text{ MHz}$ und für $\delta = \Delta\omega_D / \sqrt{\ln 2}$ mit der Dopplerbreite $\Delta\omega_D = 2\pi \times 30 \text{ MHz}$ eingesetzt wurde. Mit den Entartungen ($g = 2L + 1$) des oberen und des unteren Zustands $g_a = 3$ beziehungsweise $g_g = 1$ ergibt sich der Absorptionsquerschnitt zu

$$\sigma_a(\omega_{ag}) = \frac{3}{4} g(\omega_{ag}) \lambda_{ag}^2 A_{ag} \quad (3.25)$$

$$= 6,642 \times 10^{-15} \text{ m}^2 \quad (3.26)$$

Wie in Abschnitt 2.2.3 beschrieben, beträgt die gesamte Detektionseffizienz 0,03 %. Rechnet man die beiden Lyman- α -Filter und die Quanteneffizienz des Photomultipliers heraus, so ergibt sich, dass ca. 8 % der erzeugten Photonen an der Wechselwirkung mit den Wasserstoffatomen teilnehmen können. Bei $1,1 \times 10^6$ gemessenen Photonen pro Sekunde sind $3,7 \times 10^9$ Photonen pro Sekunde, das entspricht etwa 6 nW, erzeugt worden. Damit können 3×10^8 Photonen

pro Sekunde an der Wechselwirkung mit den Wasserstoffatomen teilnehmen. Bei einem Durchmesser des Lyman- α -Strahls von 1 cm erhält man somit einen Photonenfluss von $2,4 \times 10^{11}$ Photonen/s/m². Damit berechnet sich die Absorptionsrate (Gl.(3.20)) zu $R_a = 1,6 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$.

Nimmt man einen Atomfluss von 10^{12} Atome/s an, ergibt sich bei der wahrscheinlichsten Geschwindigkeit von 1400 m/s (vgl. Gl.(3.29) im nächsten Abschnitt), dass sich immer 7×10^6 Atome im Wechselwirkungsvolumen befinden. Bei einer Absorptionsrate von $R_a = 1,6 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ sind damit $1,1 \times 10^4$ Fluoreszenzphotonen/s zu erwarten. Es wird angenommen, dass diese isotrop emittiert werden. Mit einem Photomultiplier mit einer Quanteneffizienz von 12 %, dessen Öffnungsdurchmesser 24 mm beträgt und dessen Abstand zum Wechselwirkungsvolumen 22 mm beträgt, ergibt sich eine Zählrate von etwa 100 Fluoreszenzphotonen/s. Dies ist innerhalb einer Größenordnung der Zählrate, die wir messen und bestätigt damit die Abschätzung des Atomflusses.

3.2 Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau der Wasserstoff-Spektroskopie ist in Abbildung 3.4 skizziert und wird im Folgenden beschrieben.

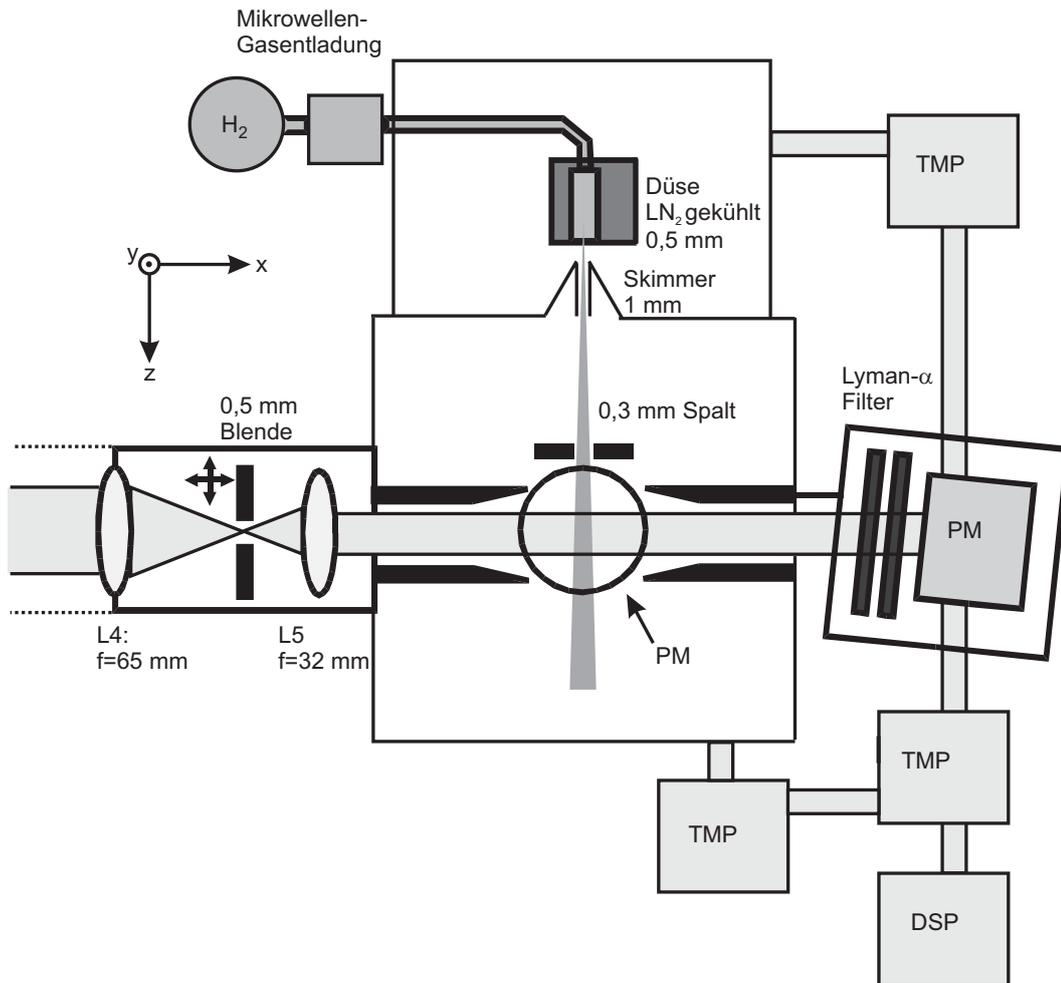


Abbildung 3.4: Schematischer Aufbau der Spektroskopiekammer. L4, L5: MgF_2 -Linsen, PM: Photomultiplier, LN_2 : flüssiger Stickstoff; TMP: Turbomolekularpumpen; DSP: Drehschieberpumpe

Molekularer Wasserstoff mit hohem Reinheitsgrad (99,996%) wird einer kommerziell erhältlichen Gasflasche (z. B. AGA) entnommen und in einer Mikrowellenentladung zu atomarem Wasserstoff dissoziiert. Die Mikrowellen bei 2,4 GHz werden von einem Magnetron (Microtron 200, EMS) mit ungefähr 30 W Leistung erzeugt. Ein $\lambda/4$ -Resonator, der das Glasröhrchen, in dem die Gasentladung brennt, umschließt, bewirkt eine Überhöhung der Spannung.

Entsteht bei der Gasentladung atomarer Wasserstoff, leuchtet die Entladung in dem typischen „Balmer-Magenta“, die Mischung der Wellenlängen der sichtbaren Balmer-Serie. Der Wasserstoff wird dann über einen Teflonschlauch zur Düse geführt. In dem Schlauch sollen möglichst wenig Wasserstoffatome durch Rekombination zu molekularem Wasserstoff verloren gehen. Die Rekombination ist material- und temperaturabhängig [Wal82]. Bei Zimmertemperatur kann die Rekombination in einem 15 cm langen Teflonschlauch mit einem Durchmesser von 2,5 mm zu $< 5\%$ abgeschätzt werden. Die Düse besteht aus einem Kupferblock, der mit einem Teflonschlauch ausgekleidet ist. Der Teflonschlauch hat einen Innendurchmesser von 0,5 mm. Der Kupferblock ist an den Boden eines Behälters angeschraubt, in dem sich flüssiger Stickstoff befindet. Durch Stöße mit den Wänden in der Düse werden die Atome, die aus der Düse austreten, auf die Temperatur des Kupferblocks abgekühlt.

Die Geschwindigkeitsverteilung der Atome in einem Strahl ergibt sich aus folgenden Überlegungen: die Geschwindigkeitsverteilung eines Gases mit einer Temperatur T ist durch die Maxwell-Boltzmann-Verteilung gegeben:

$$f(v) \propto v^2 e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2}, \text{ mit} \quad (3.27)$$

$$v_0 = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}}, \quad (3.28)$$

v_0 ist die wahrscheinlichste Geschwindigkeit. Dies entspricht einer Momentaufnahme des Strahls. Die Verteilung in einem Atomstrahl ist eine „Fluss-korrigierte“, d. h. eine mit der Geschwindigkeit v multiplizierte Maxwell-Boltzmann-Verteilung [Sco88], [Rei87]:

$$f(v) = \frac{1}{N} v^3 e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2}, \quad (3.29)$$

N dient zur Normierung. Für diese Verteilung ergibt sich als wahrscheinlichste Geschwindigkeit $v_w = \sqrt{\frac{3}{2}} v_0$. Für eine Temperatur von 77 K, welche der Temperatur von flüssigem Stickstoff entspricht, ergibt sich $v_w = 1400 \frac{\text{m}}{\text{s}}$. Dabei wurde $v = \sqrt{v_x^2 + v_y^2 + v_z^2} \cong v_z$ angenommen. Durch die Düse mit einem Durchmesser von 0,5 mm und dem Schlitz vor der Wechselwirkungszone mit einer Breite von 0,3 mm, die ca. 280 mm voneinander entfernt sind, ergibt sich eine Kollimation von ungefähr 1:700, d. h. $v_z \cong 700 v_x$. Die Kollimation in y -Richtung ist durch die Düse und den Skimmer mit einem Durchmesser von 1 mm, die einen Abstand von 20 mm haben festgelegt. Da die Geschwindigkeitskomponente v_y senkrecht zum Lyman- α -Strahl ist, trägt sie deshalb nicht zum Dopplereffekt, der später noch genauer betrachtet wird, bei.

Die Spektroskopiekammer ist nur über den Skimmer mit der Vakuumkammer, in der sich die Düse befindet und in der durch die hohe Wasserstofflast ein hoher Druck herrscht, verbunden, so dass sie differentiell gepumpt wird. Beide Kammern werden mit Turbomolekularpumpen gepumpt, die wiederum von der selben Turbomolekularpumpe vorgepumpt werden. Diese Turbomolekularpumpe wird wiederum durch eine Drehschieberpumpe vorgepumpt. In der Spektroskopiekammer wird ein Druck von etwa 10^{-7} mbar erreicht.

Wie in Abschnitt 2.2.1 beschrieben, wird die Wellenlänge des Titan-Saphir-Laser so eingestellt, dass die Zwei-Photonen-Resonanz des ^{202}Hg -Isotops erfüllt wird. Der Farbstofflaser wird bei einer Wellenlänge von 545 nm betrieben, um kohärentes Licht bei Lyman- α zu erhalten. Die 1S-2P-Linie wird aufgenommen, indem der Farbstofflaser mithilfe seines Galvoplättchens durchgestimmt wird. Der Laser lässt sich so einige Gigahertz Modensprung-frei durchstimmen. Ein Teil des Lichts des Farbstofflasers wird in ein konfokales Fabry-Perot-Interferometer, dessen Spiegelabstand 10 cm beträgt und damit einen freien Spektralbereich von 750 MHz hat, eingekoppelt. Das Fabry-Perot-Interferometer dient als Frequenzmarker.

Der erzeugte Lyman- α -Strahl wird durch zwei MgF_2 -Linsen ($f_{L4} = 65$ mm und $f_{L5} = 32$ mm für 120 nm) mit einem Abstand von 185 mm kollimiert, so dass sich damit ein Durchmesser von ca. 1 cm ergibt.

Der Photomultiplier, der sich in Richtung des Lyman- α -Strahls befindet, zählt, wie in Abschnitt 2.2.3 beschrieben, die erzeugten Lyman- α -Photonen. Die vor dem Photomultiplier befindlichen Lyman- α -Filter transmittieren nur etwa 12 % des Lyman- α -Lichts, der Rest wird zum großen Teil an deren Oberfläche reflektiert. Diese reflektierten Photonen werden ebenfalls von den Wasserstoffatomen absorbiert, die dann wiederum Fluoreszenzphotonen emittieren, und tragen somit zum Fluoreszenzsignal bei. Da die Lyman- α -Filter aber nicht optimal ausgerichtet sind, führt dieses zusätzliche Signal zu einer Verbreiterung der Linie oder sogar zu einer zweiten Linie, wenn die Filter etwas verkippt sind. Um dies zu vermeiden, wurde dieser Photomultiplier über einen Membranfaltenbalg an die Vakuumkammer angeschlossen, so dass er bei der Fluoreszenzmessung soweit weggeklappt werden kann, dass die reflektierten Photonen nicht mehr in das Wechselwirkungsvolumen gelangen können.

In der Spektroskopiekammer kreuzen sich der Atomstrahl und der Lyman- α -Strahl unter einem Winkel von 90° . Der Winkel wird durch Verkippen der zweiten Teleskoplinse (L5), was zu einem Strahlversatz führt, so optimiert,

dass die gemessene 1S-2P-Linie möglichst schmal ist.

Über der Wechselwirkungszone befindet sich ein weiterer Photomultiplier (Hamamatsu, R1459), der die Fluoreszenzphotonen detektiert, die dann von einem Zähler (SR 400, Stanford Research) gezählt werden. Für diese Abschätzung wird angenommen, dass die Fluoreszenzphotonen isotrop abgestrahlt werden. Der Photomultiplier befindet sich 22 mm über dem Wechselwirkungsvolumen und hat eine Öffnung von 24 mm Durchmesser. Mit der Quanteneffizienz von 12 % ergibt sich eine Detektionseffizienz von 0,9 %.

Durch die Kollimation des Atomstrahls ergibt sich die Breite der Verteilung der Geschwindigkeitskomponente parallel zum Lyman- α -Strahl zu $\Delta v_x \cong 1/700 v_z = 2 \text{ m/s}$. Das entspricht einer Temperatur von etwa 0,25 mK. Die Atome, die eine Geschwindigkeitskomponente in Richtung des Lyman- α -Strahls haben, „sehen“ eine verschobene Frequenz des Lichts (Dopplereffekt). Diese Atome absorbieren Licht bei einer Frequenz $\omega'_0 = \omega_0 + \vec{k}\vec{v}$, wobei ω_0 die Frequenz des atomaren Übergangs ist und \vec{k} der Wellenvektor des Lichts. Die Dopplerbite, die sich daraus ergibt, ist $\Delta\omega_D = 2\sqrt{\ln 2} \omega_0 \frac{\Delta v_x}{c}$, wobei c die Lichtgeschwindigkeit ist. Im Fall von Wasserstoff mit einer Geschwindigkeitsbreite $\Delta v_x \cong 2 \text{ m/s}$ und der Frequenz des Lyman- α -Übergangs $\omega_0 = 2\pi c/121,56 \text{ nm}$, ist eine Dopplerverbreiterung von $\Delta\omega_D \cong 2\pi \times 30 \text{ MHz}$ zu erwarten.

Die Breite (FWHM) Δv_z der Geschwindigkeitsverteilung (3.29) beträgt bei einer Temperatur von 77 K etwa 1300 m/s. Gibt es eine Abweichung α des 90°-Winkels zwischen Lyman- α -Strahl und Wasserstoffstrahl, äußert sich dies aufgrund des oben beschriebenen Dopplereffekts in einer Verbreiterung der Spektrallinie, die mit

$$\Delta\omega = k\Delta v_z \sin \alpha \quad (3.30)$$

abgeschätzt werden kann. Nimmt man an, dass die Verbreiterung der Wasserstofflinie von etwa 40 MHz (siehe Abbildung 3.5 im nächsten Abschnitt) allein durch die Winkelabweichung gegeben ist, ergibt sich, dass die Abweichung vom 90°-Winkel kleiner als 0,3° sein muss.

3.3 1S–2P–Spektroskopie

Um den 1S–2P–Übergang des Wasserstoffatoms zu vermessen wird ein Anregungsspektrum aufgenommen. Dafür wird die Wellenlänge des Lyman- α -Strahls durchgestimmt und die Intensität der Resonanzfluoreszenz aufgenommen. Die Wellenlänge der Fluoreszenz wird dabei nicht analysiert.

Photonen [0,5 s]

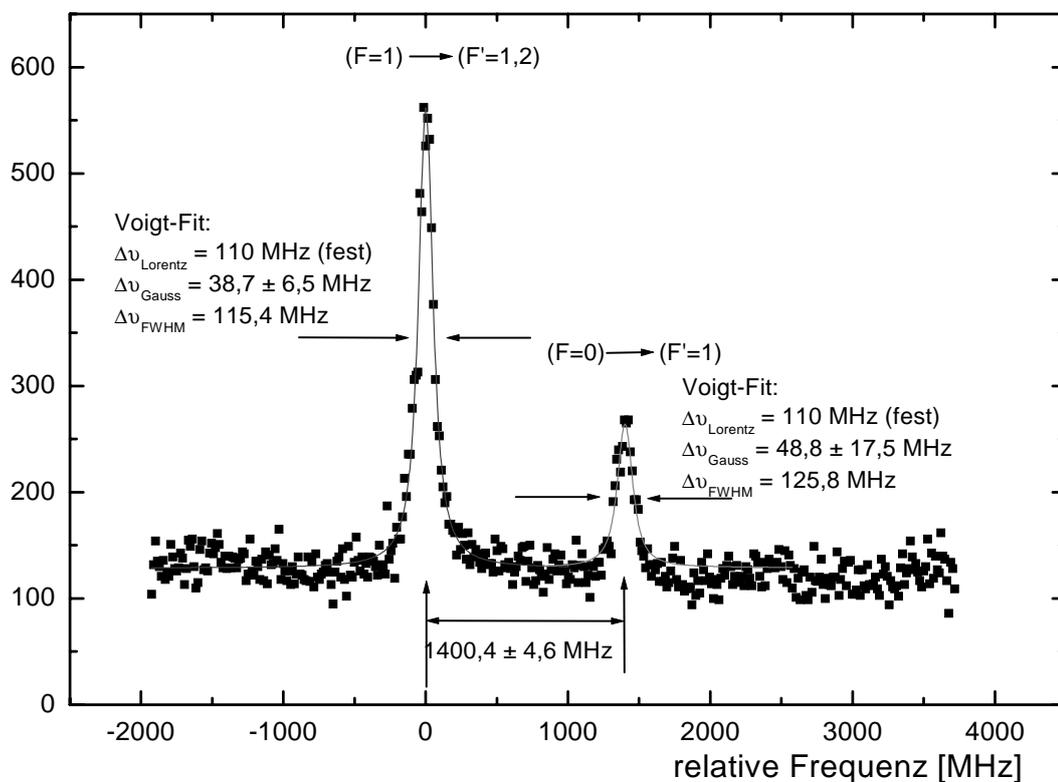


Abbildung 3.5: Typische Messung der Übergänge $1S_{1/2}(F = 0,1) \rightarrow 2P_{3/2}(F' = 1,2)$. Die durchgezogenen Linien sind die Fitfunktionen.

Die Spektroskopie wurde an dem stärksten, dem $1S_{1/2} \rightarrow 2P_{3/2}$ -Übergang durchgeführt. Wie in Abschnitt 3.1.1 beschrieben, sind die Linienstärken der Übergänge $1S_{1/2} \rightarrow 2P_{1/2}$ um ein fünf- beziehungsweise zehnfaches kleiner als die der $1S_{1/2} \rightarrow 2P_{3/2}$ -Übergänge. Diese Linien lassen sich im Rauschen nicht detektieren. Abbildung 3.5 zeigt ein typisches Anregungsspektrum der Übergänge zwischen den Hyperfein-Zuständen $(F = 1) \rightarrow (F' = 1,2)$ und

$(F = 0) \rightarrow (F' = 1)$. Die Hyperfeinaufspaltung von 1,42 GHz des $1S_{1/2}$ -Niveaus kann deutlich aufgelöst werden. Die Hyperfeinaufspaltung von 24 MHz des $2P_{3/2}$ -Niveaus ($F' = 1$ und $F' = 2$) kann bei einer natürlichen Linienbreite von 100 MHz nicht mehr aufgelöst werden. Wie in Abschnitt 3.1 beschrieben, gibt es vom $(F = 0)$ -Niveau nur den Übergang zu dem $(F' = 1)$ -Niveau. Von dem $(F = 1)$ -Niveau werden die Niveaus $(F' = 1)$ und $(F' = 2)$ mit einer Wahrscheinlichkeit 1:5 angeregt. Da diese Übergänge nur 24 MHz auseinander liegen, werden sie nicht aufgelöst. Das Verhältnis der Höhe der beiden gemessenen Linien stimmt mit $(140 \pm 60) : (420 \pm 60)$ mit dem theoretischen Wert von $2 : 5,87$ (vgl. Abbildung 3.3) innerhalb der Fehlergrenzen überein. Da die Hyperfeinstruktur des $2P_{3/2}$ -Zustands nicht aufgelöst ist und der $(F = 1) \rightarrow (F' = 2)$ -Übergang fünf mal stärker ist als der $(F = 1) \rightarrow (F' = 1)$ -Übergang, beträgt die Aufspaltung zwischen dem Übergang $(F = 0) \rightarrow (F' = 1)$ und dem Schwerpunkt der Übergänge $(F = 1) \rightarrow (F' = 1, 2)$ nur 1400 MHz, also 20 MHz weniger als die Hyperfeinaufspaltung des Grundzustands (vgl. auch Abbildung 3.3). Die gemessene Aufspaltung von $1400,4 \pm 4,1$ MHz stimmt mit dem zu erwartendem Wert von 1,40 GHz gut überein.

An die beiden gemessenen Linien wurden jeweils ein Voigt-Profil angepasst. Dazu wurde der lorentzförmige Anteil, der durch die natürliche Linienbreite des $2P$ -Niveaus und die Linienbreite der Lasers gegeben ist, mit 110 MHz fest gesetzt. Die Linie $(F = 1 \rightarrow F' = 1)$ wird, da sie nur zu einem fünftel zu der gesamten Linien beiträgt, vernachlässigt. Damit ergeben sich Linienbreiten der gaußförmigen Anteile von $\Delta\nu_{\text{Gauß}} = (38,7 \pm 6,5)$ MHz und $\Delta\nu_{\text{Gauß}} = (48,9 \pm 17,5)$ MHz für die Übergänge $(F = 1) \rightarrow (F' = 1, 2)$ beziehungsweise $(F = 0) \rightarrow (F' = 1)$, was etwas mehr ist, als die abgeschätzte Dopplerbreite von $\Delta\omega_D = 2\pi \times 30$ MHz. In der Abschätzung wurde von einer Temperatur des Wasserstoff-Strahls von 77 K und einer Kollimation von 1:700 ausgegangen. Sind diese Annahmen nicht perfekt erfüllt, ist z. B. die Temperatur 80 K und die Kollimation nur 1:600, dann erhöht sich die Dopplerbreite auf $\Delta\omega_D = 2\pi \times 35$ MHz, was schon innerhalb der Fehlergrenzen der Messung liegt. Die gesamten Linienbreiten (FWHM) der gemessenen Linien ergeben sich zu $\Delta\omega_{\text{FWHM}} = 2\pi \times 115,4$ MHz für den $(F = 1) \rightarrow (F' = 1, 2)$ -Übergang beziehungsweise zu $\Delta\omega_{\text{FWHM}} = 2\pi \times 125,8$ MHz für den $(F = 0) \rightarrow (F' = 1)$ -Übergang.

Kapitel 4

Mischen der Zustände 2S und 2P durch ein externes elektrisches Feld

Wie im vorangegangenen Kapitel beschrieben, ist die gemessene Linienbreite des 1S–2P–Übergangs hauptsächlich durch seine natürliche Linienbreite von 100 MHz gegeben. In die Fit-Funktion wurde ein zweiter lorentzförmiger Anteil hinzu addiert, um die Linienbreite des Lyman- α -Lasers zu berücksichtigen. Diese Linienbreite wurde mit 10 MHz angesetzt. Leider kann man aus dieser Messung keine genauere Aussage über die Laser-Linienbreite machen, da die natürliche Linienbreite um ein zehnfaches größer ist. Für eine präzise Messung sollte die natürliche Linienbreite des Übergangs kleiner als die Linienbreite des abfragenden Lasers sein.

Als alternatives Atom zur Spektroskopie steht uns in dem Wellenlängenbereich der erzeugten VUV-Strahlung Krypton zur Verfügung. Unglücklicherweise liegt der mögliche Übergang von Krypton bei 123,58 nm, genau in dem Bereich, wo der Quecksilberdampf positiv dispersiv ist ($\Delta k > 0$), deshalb ist Phasenanpassung nicht gegeben und daher ist die VUV-Leistung Null. Es gibt jedoch die Möglichkeit die Linienbreite des 1S–2P–Übergangs von Wasserstoff künstlich zu verringern. Die Lösung liegt in dem Mischen der Zustände 2P und 2S. Der 1S–2S–Übergang hat eine Linienbreite von nur 1,3 Hz und wäre ein idealer Kandidat zur Bestimmung der Laser-Linienbreite, wenn er nicht dipol-verboden wäre und damit eine verschwindende Übergangsrate bei Anregung mit Lyman- α -Strahlung hätte. Bei Mischung der Zustände 2S und 2P

mischen die Linienbreiten und Übergangsraten, so dass es möglich sein sollte, einen schmalen Übergang zu erhalten. Im Folgenden wird die Möglichkeit einer Realisierung diskutiert.

Der Hamiltonoperator für ein Wasserstoffatom im elektrischen Feld ist gegeben durch

$$H = H_0 + V \text{ mit} \quad (4.1)$$

$$V = -\vec{\mathcal{E}}_a \vec{d}, \quad (4.2)$$

wobei H_0 der Hamiltonoperator des ungestörten Atoms ist und als Eigenwerte die Energiewerte der Niveaus hat. Abbildung 3.1 aus Abschnitt 3.1 zeigt diese Energieniveaus. V ist der Hamiltonoperator der Wechselwirkung, wobei $\vec{\mathcal{E}}_a$ das angelegte elektrische Feld und \vec{d} der Dipoloperator ist. Angenommen, das elektrische Feld ist in z -Richtung angelegt, dann ist $d = \langle 2S | ez | 2P \rangle$ das Dipolmatrixelement. Dies ist bekannt: $d = -3ea_0$ (Quantenmechanik Lehrbücher, z. B. [Sch93]), wobei e die Elementarladung und a_0 der Bohrsche Radius ist.

Das elektrische Dipol-Feld führt zu einem Mischen der $(n = 2)$ -Zustände mit denselben magnetischen Unterzuständen m_F . Da es nur einen Zustand mit $m_F = \pm 2$ gibt, kann dieser mit keinem der anderen $(n = 2)$ -Zustände mischen. Aufgrund von Dipol-Auswahlregeln mischen weiterhin nur Zustände mit unterschiedlichem Bahndrehimpuls L , d. h. nur S- mit P-Zuständen aber nicht untereinander. Die verbleibenden Dipolmatrixelemente, die sich über das Wigner-Eckart-Theorem [Sob79] berechnen lassen, lauten:

$$\begin{aligned} \langle 2S_{1/2}(F = 0, m_F = 0) | ez | 2P_{1/2}(F = 0, m_F = 0) \rangle &= 0 \\ \langle 2S_{1/2}(F = 1, m_F = 0) | ez | 2P_{1/2}(F = 0, m_F = 0) \rangle &= \sqrt{3}ea_0 =: d1 \\ \langle 2S_{1/2}(F = 0, m_F = 0) | ez | 2P_{1/2}(F = 1, m_F = 0) \rangle &= \sqrt{3}ea_0 =: d1 \\ \langle 2S_{1/2}(F = 1, m_F = 0) | ez | 2P_{1/2}(F = 1, m_F = 0) \rangle &= 0 \\ \langle 2S_{1/2}(F = 1, m_F = 1) | ez | 2P_{1/2}(F = 1, m_F = 1) \rangle &= \sqrt{3}ea_0 =: d1 \\ \langle 2S_{1/2}(F = 0, m_F = 0) | ez | 2P_{3/2}(F = 1, m_F = 0) \rangle &= -\sqrt{6}ea_0 =: d2 \\ \langle 2S_{1/2}(F = 0, m_F = 0) | ez | 2P_{3/2}(F = 2, m_F = 0) \rangle &= 0 \\ \langle 2S_{1/2}(F = 1, m_F = 0) | ez | 2P_{3/2}(F = 1, m_F = 0) \rangle &= 0 \\ \langle 2S_{1/2}(F = 1, m_F = 0) | ez | 2P_{3/2}(F = 2, m_F = 0) \rangle &= -\sqrt{6}ea_0 =: d2 \\ \langle 2S_{1/2}(F = 1, m_F = 1) | ez | 2P_{3/2}(F = 1, m_F = 1) \rangle &= -\sqrt{6}/2ea_0 =: d3 \\ \langle 2S_{1/2}(F = 1, m_F = 1) | ez | 2P_{3/2}(F = 2, m_F = 1) \rangle &= -3/2\sqrt{6}ea_0 =: d4 \end{aligned}$$

Damit ergibt sich der Hamiltonoperator in Matrixschreibweise zu

$$H = \begin{pmatrix} E_1 & 0 & 0 & 0 & d_1\mathcal{E}_a & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & E_2 & 0 & d_1\mathcal{E}_a & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & E_2 & 0 & 0 & d_1\mathcal{E}_a & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & d_1\mathcal{E}_a & 0 & E_3 & 0 & 0 & d_2\mathcal{E}_a & 0 & 0 & 0 & 0 \\ d_1\mathcal{E}_a & 0 & 0 & 0 & E_4 & 0 & 0 & 0 & d_2\mathcal{E}_a & 0 & 0 \\ 0 & 0 & d_1\mathcal{E}_a & 0 & 0 & E_4 & 0 & d_3\mathcal{E}_a & 0 & d_4\mathcal{E}_a & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_2\mathcal{E}_a & 0 & 0 & E_5 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_3\mathcal{E}_a & 0 & E_5 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_2\mathcal{E}_a & 0 & 0 & 0 & E_6 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_4\mathcal{E}_a & 0 & 0 & 0 & E_6 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & E_6 \end{pmatrix}. \quad (4.3)$$

Die Basiszustände für diese Matrix sind nach der Energie sortiert von oben nach unten (beziehungsweise von links nach rechts) $|2P_{1/2}(F=0, m_F=0)\rangle$, $|2P_{1/2}(F=1, m_F=0)\rangle$, $|2P_{1/2}(F=1, m_F=1)\rangle$, $|2S_{1/2}(F=0, m_F=0)\rangle$, $|2S_{1/2}(F=1, m_F=0)\rangle$, $|2S_{1/2}(F=1, m_F=1)\rangle$, $|2P_{3/2}(F=1, m_F=0)\rangle$, $|2P_{3/2}(F=1, m_F=1)\rangle$, $|2P_{3/2}(F=2, m_F=0)\rangle$, $|2P_{3/2}(F=2, m_F=1)\rangle$ und $|2P_{3/2}(F=2, m_F=2)\rangle$.

In der Berechnung der Matrix wurden der Übersicht halber nur positive magnetische Quantenzahlen berücksichtigt. Die Rechnung erfolgt für negative magnetische Quantenzahlen äquivalent und führen zu derselben Matrix. Dies hat zur Folge, dass die Niveaus, die aus $m_F \neq 0$ bestehen, entartet sind.

Die Energieniveaus der gemischten Zustände ergeben sich durch Diagonalisierung dieser Matrix. Abbildung 4.1 zeigt die daraus resultierenden Energieniveaus als Funktion des angelegten elektrischen Feldes \mathcal{E}_a .

Man erkennt, dass es sowohl eine Aufspaltung, als auch eine Verschiebung der Energieniveaus gibt. Die Aufspaltung resultiert daraus, dass zwei ungestörte Niveaus mit $m_F=0$ des 2S-Zustands mit vier des 2P-Zustands mischen, wobei nur ein Niveau mit $m_F=1$ des 2S-Zustands mit drei des 2P-Zustands mischt.

Diese Aufspaltungen reichen von etwa 2 MHz bis zu etwa 100 MHz bei elektrischen Feldern, die größer als 0,2 kV/cm sind. Da dies in der Größenordnung der natürlichen Linienbreite liegt, kann man die Hyperfeinstruktur vernachlässigen. Die Rechnungen werden dadurch übersichtlicher. Die neuen Zuständen lassen sich dann unter Vernachlässigung der Hyperfeinstruktur, wo-

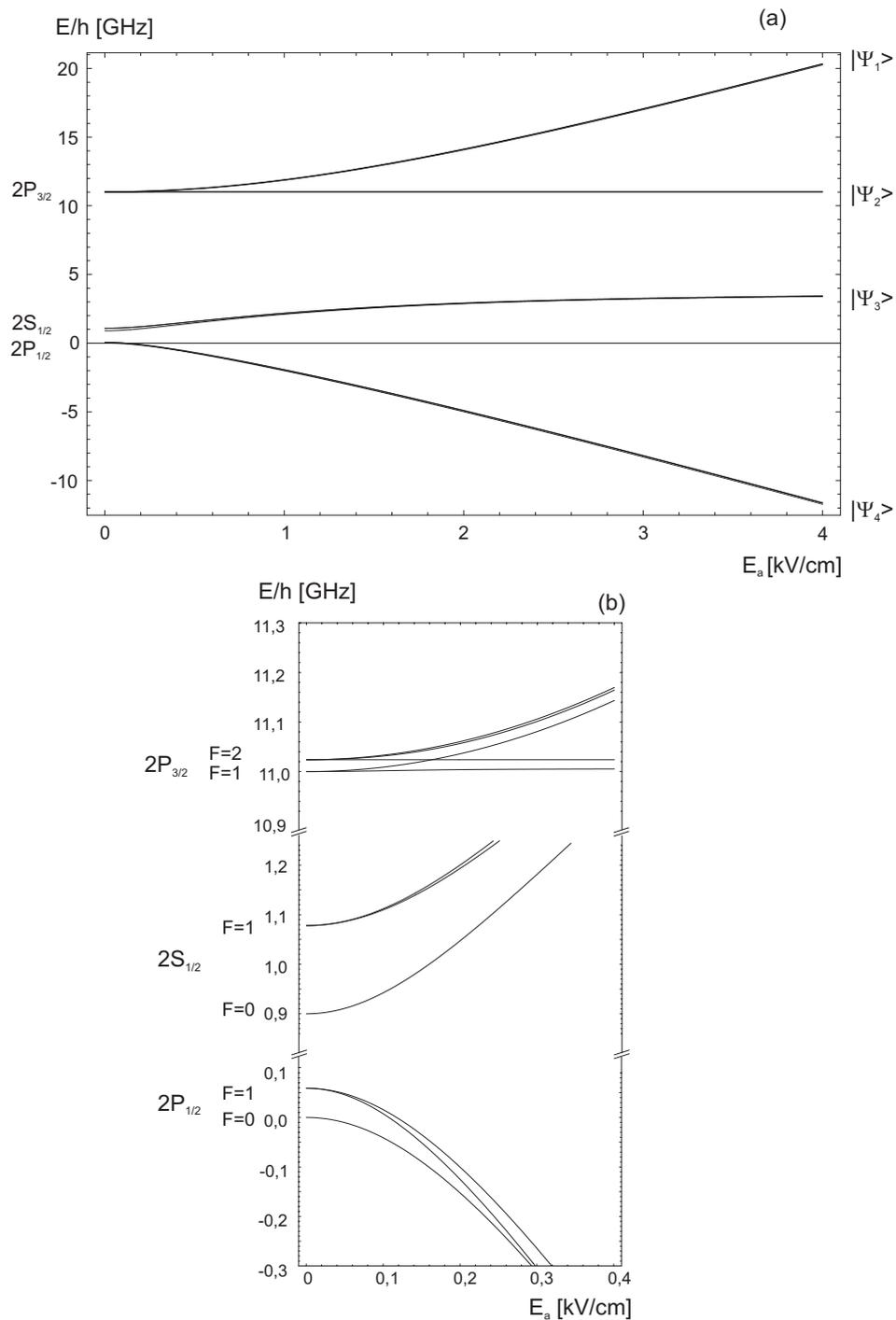


Abbildung 4.1: Aufspaltung und Verschiebung der Energieniveaus von Wasserstoff im externen elektrischen Feld \mathcal{E}_a . (b) zeigt jeweils die Aufspaltung und Verschiebung der Energieniveaus bei kleinen elektrischen Feldern.

bei der zweite Index am Drehimpuls die magnetische Quantenzahl m_J des Gesamtdrehimpulses angibt, schreiben als:

$$\left. \begin{aligned} |\Psi_1\rangle &= a_{11}|2P_{1/2,1/2}\rangle + a_{12}|2S_{1/2,1/2}\rangle + a_{13}|2P_{3/2,1/2}\rangle \\ |\Psi_2\rangle &= |2P_{3/2,3/2}\rangle \\ |\Psi_3\rangle &= a_{31}|2P_{1/2,1/2}\rangle + a_{32}|2S_{1/2,1/2}\rangle + a_{33}|2P_{3/2,1/2}\rangle \\ |\Psi_4\rangle &= a_{41}|2P_{1/2,1/2}\rangle + a_{42}|2S_{1/2,1/2}\rangle + a_{43}|2P_{3/2,1/2}\rangle. \end{aligned} \right\} \quad (4.4)$$

$|\Psi_i\rangle$ sind die neuen „gestörten“ Zustände, die mit den Entwicklungskoeffizienten a_{ij} nach den ungestörten Zuständen entwickelt werden. Auch hier wurde wieder die Beschränkung auf ein Vorzeichen der magnetischen Quantenzahl gemacht. Die Zuordnung zu den Energieniveaus ist in Abbildung 4.1 gezeigt. $|\Psi_2\rangle$ ist nun der Zustand, der, wie vorhin erläutert, unverändert bleibt, da es der einzige Zustand mit $m_J = 3/2$ ist. Die Dipolmatrixelemente, die zur Berechnung des neuen Hamiltonoperators benötigt werden, ergeben sich zu:

$$\begin{aligned} \langle 2S_{1/2,1/2} | ez | 2P_{1/2,1/2} \rangle &= \sqrt{3}ea_0 \\ \langle 2S_{1/2,1/2} | ez | 2P_{3/2,1/2} \rangle &= -\sqrt{6}ea_0 \\ \langle 2S_{1/2,1/2} | ez | 2P_{3/2,3/2} \rangle &= 0 \\ \langle 2P_{1/2,1/2} | ez | 2P_{3/2,3/2} \rangle &= 0. \end{aligned}$$

Der Hamiltonoperator reduziert sich damit auf eine 4×4 -Matrix und lautet:

$$H = \begin{pmatrix} E_1 & \sqrt{3}ea_0\mathcal{E}_a & 0 & 0 \\ \sqrt{3}ea_0\mathcal{E}_a & E_2 & -\sqrt{6}ea_0\mathcal{E}_a & 0 \\ 0 & -\sqrt{6}ea_0\mathcal{E}_a & E_3 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & E_3 \end{pmatrix}, \quad (4.5)$$

wobei E_1 , E_2 und E_3 die Energieniveaus der jeweils ungestörten Zustände $2P_{1/2}$, $2S_{1/2}$ und $2P_{3/2}$ sind. Die Basiszustände dieser Matrix sind äquivalent zu der Matrix (4.3) sortiert $|2P_{1/2,1/2}\rangle$, $|2S_{1/2,1/2}\rangle$, $|2P_{3/2,1/2}\rangle$ und $|2P_{3/2,3/2}\rangle$.

Die Lebensdauern und Linienbreiten der gestörten Zustände hängen mit denen der ungestörten Zustände wie folgt zusammen:

$$\frac{1}{\tau_i} = (a_{i1}^2 + a_{i2}^2) \frac{1}{\tau_{2P}} + a_{i2}^2 \frac{1}{\tau_{2S}} \quad (4.6)$$

$$\Gamma_i = \frac{1}{\tau_i} \quad (4.7)$$

Die Linienbreiten der neuen Zustände im angelegten elektrischen Feld sind in Abbildung 4.2 dargestellt. Die Linienstärken der vier Übergänge hängen mit

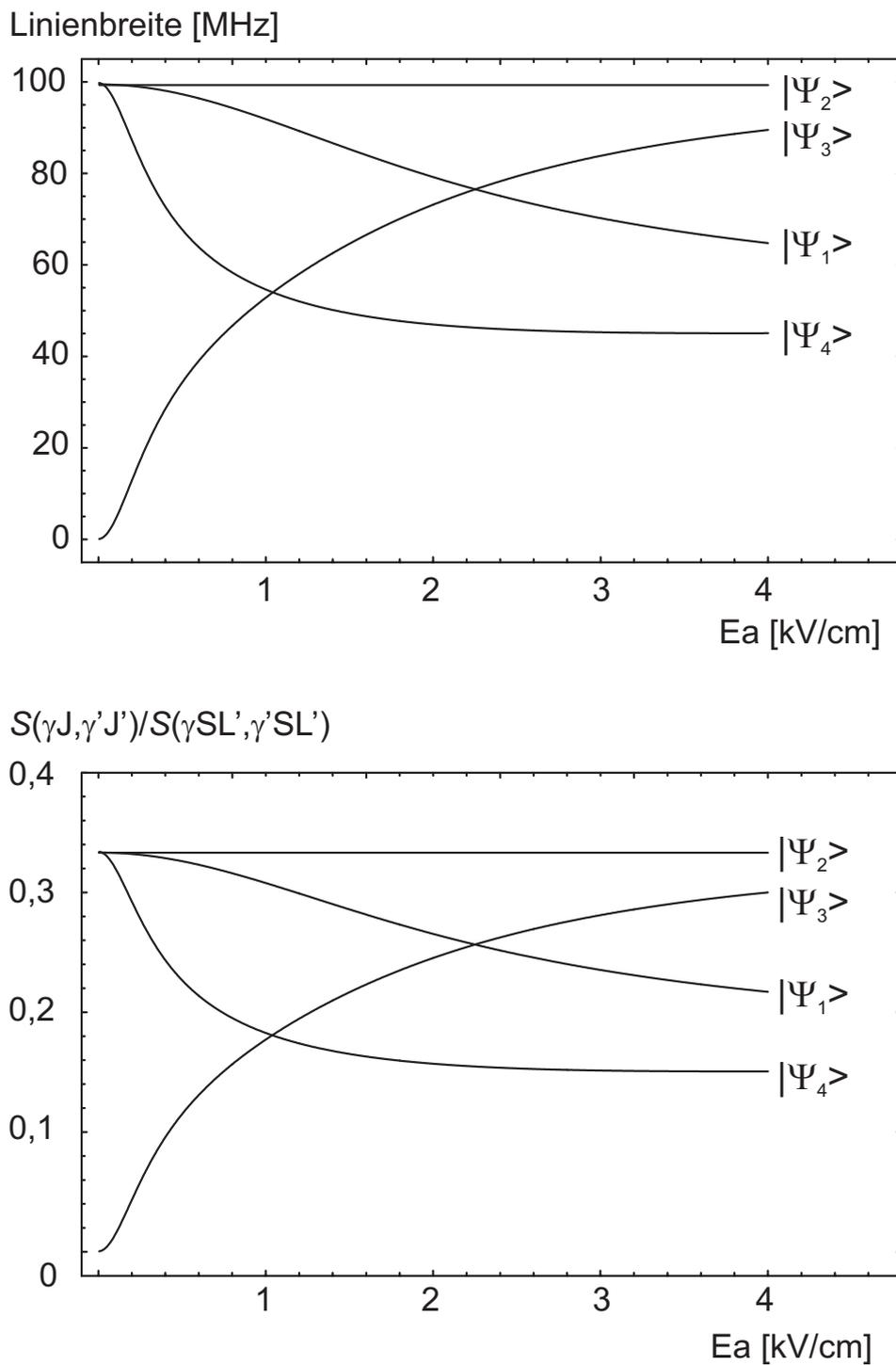


Abbildung 4.2: Linienbreiten und relative Linienstärken der gestörten Energieveaus von Wasserstoff im externen elektrischen Feld \mathcal{E}_a .

denen der ungestörten Übergänge über

$$S(|\Psi_1\rangle \rightarrow |1S_{1/2}\rangle) = \frac{1}{3} (a_{11}^2 + a_{13}^2) S(\gamma SL, \gamma' SL') \quad (4.8)$$

$$S(|\Psi_2\rangle \rightarrow |1S_{1/2}\rangle) = \frac{1}{3} S(\gamma SL, \gamma' SL') \quad (4.9)$$

$$S(|\Psi_3\rangle \rightarrow |1S_{1/2}\rangle) = \frac{1}{3} (a_{31}^2 + a_{33}^2) S(\gamma SL, \gamma' SL') \quad (4.10)$$

$$S(|\Psi_4\rangle \rightarrow |1S_{1/2}\rangle) = \frac{1}{3} (a_{41}^2 + a_{43}^2) S(\gamma SL, \gamma' SL') \quad (4.11)$$

zusammen und sind ebenfalls in Abbildung 4.2 gezeigt.

An diesen Graphen kann man folgendes ablesen: je kleiner die Linienbreite, desto kleiner auch die Linienstärke, das Verhältnis ist proportional. Mit den Zuständen $|\Psi_1\rangle$ und $|\Psi_4\rangle$ lässt sich die Linienbreite mit Labor-möglichen elektrischen Feldern nicht unter 50 MHz verringern, so dass eine Messung der Laser-Linienbreite mit diesen Zuständen nicht möglich ist. Mit dem Zustand $|\Psi_3\rangle$, der sich aus dem ursprünglichen $|2S_{1/2}\rangle$ -Zustand gebildet hat, wäre eine Linienbreitenbestimmung im Prinzip möglich. Für elektrische Felder, die kleiner als 200 V/cm sind, sollte die Linienbreite des Zustands kleiner als 15 MHz sein. Die Linienstärke liegt dann allerdings nur bei $0,04 \times S(\gamma SL, \gamma' SL')$. Betrachtet man allerdings die Absorptionsrate σ_a , die sowohl proportional zur Linienform, als auch proportional zum Quadrat des Dipolmatrixelements des Übergangs und damit zur Linienstärke ist [Hil81], ergibt sich, dass bei kleinerer Linienbreite zwar die Linienstärke kleiner, aber auch das Maximum der Linienform größer wird, so dass die Absorptionsrate konstant bleibt.

Bei Berücksichtigung der Hyperfeinstruktur, die im Bereich bis 200 V/m noch auflösbar ist (vgl. Abbildung 4.1), ergibt sich, dass $|\Psi_3\rangle$ aus mehreren Zuständen besteht. Die Zustände des $2S_{1/2}$ -Niveaus mischen zudem nicht mit den $(F = 2, m_F = \pm 2)$ -Zuständen des $2P_{3/2}$ -Niveaus. Damit ergibt sich, dass die Absorptionsrate für die einzelnen Übergänge $|1S_{1/2}\rangle \rightarrow |\Psi_3\rangle$ kleiner sein wird, als die des momentan gemessenen $1S_{1/2} \rightarrow 2P_{3/2}$ Übergangs, wie er in Abbildung 3.5 dargestellt ist.

Kapitel 5

Ausblick

Der Vergleich zwischen den theoretischen und den experimentellen Ergebnissen zeigt, dass die erzeugte Leistung bei Lyman- α innerhalb der Größenordnung mit der berechneten übereinstimmt, was bedeutet, dass die Grenzen der zu erwartenden experimentell erzeugten Leistung mit diesem Aufbau erreicht sind. Einige Ideen die Leistung zu erhöhen, werden in diesem Kapitel erörtert.

Isotopenreines Quecksilber

Die Verwendung von isotopenreinem Quecksilber ist die einfachste Methode, die erzeugte VUV-Leistung um eine Größenordnung zu erhöhen. Dies wurde in Abschnitt 2.1.4 dargestellt. Leider ist dies auch die wohl teuerste Methode, da der Preis für isotopenreines Quecksilber etwa 60 EUR für 1 mg beträgt und in der jetzigen Quecksilberdampfzelle 300 g benötigt werden. Ein neues Design für eine Quecksilberdampfzelle, in der nur wenig Quecksilber benötigt wird, müsste demnach entwickelt werden.

Schärferes Fokussieren

Wie schon in Abschnitt 2.1.3 erwähnt, soll ein Quecksilber-Düsenstrahl die Quecksilberdampfzelle ersetzen. Dies führt zu einer Verkleinerung des Teils der Vakuumapparatur, in dem das Vier-Wellen-Mischen stattfindet, da bei einer Düsenstrahl-Konfiguration eine Kontamination des Eintrittsfensters und der Linse, die zum Trennen von fundamentalen und erzeugtem Strahl verwendet wird, mit Quecksilber zu vermeiden sein sollte. Damit wird es möglich, schärfer in das nichtlineare Medium zu fokussieren und damit die Leistung der erzeugten Strahlung zu erhöhen. Um eine Vorstellung der Leistungserhöhung

zu bekommen, wird folgende Abschätzung gemacht: Wird der konfokale Parameter von $b = 0,16$ cm auf $b = 0,09$ cm durch Verwendung einer Linse mit einer Brennweite von $f_{L2} = 100$ mm verkleinert, verdoppelt sich die Leistung unter Beibehalten der Temperatur von 18,8 nW auf 37,9 nW. Ändert man nun noch die Temperatur auf $T = 235$ °C, um optimale Phasen Anpassung zu gewährleisten, erhöht sich trotz verbreiteter Zwei-Photonen-Resonanz die Leistung weiter auf 42,3 nW.

Photonische Hohlleiter

Ein anderes Design, das die Quecksilberdampfzelle ersetzen könnte, mit dem sich die erzeugte Leistung möglicherweise erhöhen lässt, ist die Verwendung einer photonischen Hohlleiter. Im Inneren dieser Faser soll sich das nichtlineare Medium befinden, in dem Vier-Wellen-Mischen betrieben wird [Fed01]. Hierbei wird Totalreflexion ausgenutzt, um die Strahlung im Inneren zu leiten. Ein Vorteil solch einer Faser ist, dass sich der Wechselwirkungsbereich der drei fundamentalen Strahlen mit dem Medium und damit die Erzeugung der VUV-Strahlung über die gesamte Länge der Faser erstreckt. Die Bedingungen für die Phasen Anpassung weichen allerdings stark von den in Abschnitt 2.1.2 und 2.1.5 betrachteten ab. Einerseits befindet man sich aufgrund des langen Wechselwirkungsbereichs nicht mehr im Grenzfall scharf fokussierter Strahlen, sondern eher im Grenzfall ebener Wellen und andererseits müssen die Wellenleitermoden der Faser mit in die Berechnung zur Phasen Anpassung einbezogen werden. Ob Phasen Anpassung für die uns vorliegenden experimentellen Vorgaben überhaupt möglich ist und ob die erzeugte VUV-Leistung sich dadurch erhöhen lässt, müsste genauer untersucht werden.

Überhöhungsresonator

Mit dem verkleinerten Aufbau könnte ein Überhöhungsresonator, wie es in [Nol90b] demonstriert wurde, für eine der fundamentalen Strahlen um die Wechselwirkungszone eingebaut werden. Damit kann die Leistung der fundamentalen Strahlung und damit auch die der erzeugten Strahlung erhöht werden. In [Nol90b] konnte eine Überhöhung der Leistung des fundamentalen Lichts um einen Faktor zehn realisiert werden. Dies würde in unserem Fall, da $\mathcal{P}_4 \propto \mathcal{P}_1 \mathcal{P}_2 \mathcal{P}_3$ ist, zu einer Erhöhung der Leistung des Lichts bei Lyman- α auf ein zehnfaches bedeuten. Im momentanen Aufbau ist ein Überhöhungsresonator nicht realisierbar, da die Vakuumapparatur zu groß ist. Der Abstand vom Fokus im nichtlinearen Medium zu der ersten Linse, in dem Fall die Linse zur Trennung von fundamentaler und erzeugter Strahlung ist zu groß, um der

Stabilitätsbedingung für Resonatoren (siehe z. B. [Yar89], [Kog66]) zu genügen.

EIT

Ein weiteres Projekt, das zur Erhöhung der Leistung führen soll, ist die Ausnutzung von elektromagnetisch induzierter Transparenz (EIT). Dabei wird ein resonanter Übergang so stark getrieben, dass die beteiligten Niveaus aufgrund des AC-Stark-Effekts aufspalten. Die Leistung des treibenden Laserlichts muss groß genug sein, um eine Aufspaltung in der Größenordnung der Linienbreite des Niveaus zu erhalten, damit die Absorption durch destruktive Interferenz verschwindet und die nichtlineare Suszeptibilität jedoch wegen konstruktiver Interferenz weiterhin erhöht bleibt [Har90]. Für den Fall des hier beschriebenen Experiments, wird die Wellenlänge des Laserlichts eines frequenzverdoppelten Farbstofflasers resonant auf den $6^1S \rightarrow 6^3P$ -Übergang gestimmt. Das Laserlicht des zweiten Schrittes ist damit resonant zum $6^3P \rightarrow 7^1S$ -Übergang. Eine Leistung des Laserlichts des zweiten Schrittes von 500 mW sollte genügen, um die aufgespaltenen Niveaus um den Betrag der effektiven Linienbreite von 3 GHz, die durch Druck- und Dopplerverbreiterung gegeben ist, zu trennen. Auch für dieses Experiment ist der Umbau auf einen Düsenstrahl sinnvoll. Die starke Laserlichtleistung wird zwar in der Lage sein, das Niveau eines Quecksilberisotops aufzuspalten, aber die anderen Isotope können einen starken Verlust durch Absorption des fundamentalen Lichts verursachen. In einem Düsenstrahl ist die Wechselwirkungslänge sehr klein, so dass Absorption von den übrigen Isotopen vernachlässigt werden kann. Zudem ist in einem Düsenstrahl die Dopplerverbreiterung zu vernachlässigen, so dass weniger Leistung zum Aufspalten des Niveaus benötigt wird.

Phasenanpassung mit durchstimmbarem Laserlicht

Mit dem im vorherigen Absatz beschriebenen Laserlicht ist es möglich, da die Wellenlängen der Laserstrahlung zum Erreichen der Zwei-Photonen-Resonanz durchstimmbare sind, die Phasenanpassung auch über die Wahl der Wellenlängen der ersten beiden Schritte zu optimieren [Rei84]. Damit lässt sich die Wellenlänge des ersten Laserlichts näher an die Ein-Photonen-Resonanz des 6^3P -Niveaus stimmen und die höhere nichtlineare Suszeptibilität ausnutzen. Ein weiterer Vorteil ist, dass dann die Temperatur des Quecksilberdampfes so gering gewählt werden kann, dass die Zwei-Photonen-Resonanz nicht durch die Druck- und Dopplerverbreiterung begrenzt ist. Wählt man z. B. eine Verstimmung von nur 70 GHz zum $6^1S \rightarrow 6^3P$ -Übergang, dann erhält man mit optimierter Phasenanpassung eine Leistung bei Lyman- α von 69 nW. Hier-

bei wurde allerdings davon ausgegangen, dass die verwendeten Laser dieselben Leistungen haben, wie die in der Arbeit verwendeten, mit deren Werten die Rechnungen gemacht wurden. Unglücklicherweise wird die Leistung des frequenzverdoppelten Lichts des Farbstofflasers nur etwa 20 mW statt 800 mW des frequenzverdoppelten Ar^+ -Lasers sein. Damit würde sich die Leistung bei Lyman- α auf 1,7 nW verringern. Damit ist der Ersatz des Ar^+ -Lasers durch einen durchstimmbaren frequenzverdoppelten Farbstofflaser keine Alternative.

Vier-Wellen-Mischen über das 6^1P -Niveau

Eine weitere Idee ist, im ersten Schritt statt des nah-resonanten „verbotenen“ Interkombinationsübergang $6^1\text{S} \rightarrow 6^3\text{P}$ den Übergang $6^1\text{S} \rightarrow 6^1\text{P}$ und im zweiten Schritt den $6^1\text{P} \rightarrow 7^1\text{S}$ -Übergang zu wählen. Die Oszillatorstärken für die Übergänge zwischen Niveaus mit gleicher Spinquantenzahl S sind um etwa zwei Größenordnungen größer als die für verbotene Übergänge (siehe auch Tabelle 2.1). Wählt man z. B. eine Verstimmung des Laserlichts zur Ein-Photonen-Resonanz des 6^1P -Niveaus von 4 nm, wie jetzt auch zum 6^3P -Niveau, dann erhöht sich die nichtlineare Suszeptibilität bei gleich bleibender Verbreiterung der Zwei-Photonen-Resonanz um eine Größenordnung. Ändert man die Temperatur, um optimale Phasen Anpassung zu gewährleisten, wobei die Verbreiterung der Zwei-Photonen-Resonanz dabei verringert wird, verdreifacht sich die Leistung der Strahlung bei Lyman- α unter der Annahme gleichbleibender fundamentaler Laserleistungen auf 67 nW.

Eine technische Herausforderung wird sein, Strahlung bei der Wellenlänge für diesen Übergang bei 185 nm zu erzeugen und zu handhaben, da diese Wellenlänge schon im VUV liegt. Die bisher kürzeste in Kristallen erzeugte Wellenlänge kontinuierlicher Strahlung liegt bei 194 nm und wurde mit einer Leistung von 2 mW erzeugt [Ber97]. Bei obiger Abschätzung wurde allerdings eine Leistung von 800 mW angenommen. Mit einer realistischeren Leistung von 1 mW, wird nur eine Leistung von 0,1 nW bei Lyman- α erreicht, so dass auch dies keine Alternative zum bisherigen Schema bietet.

Ersatz von frequenzverdoppelten Ar^+ -Laser durch frequenzverdoppelten VERDI

Mit der Hoffnung, dass die industrielle Forschung leistungsstarke Laser im UV – z. B. frequenzvervierfachte Nd:YVO₄-Laser – auf den Markt bringt, wäre der Ersatz des frequenzverdoppelten Ar^+ -Lasers denkbar. Dies wäre sicher auch eine gute Möglichkeit, die Stabilität und Kompaktheit des Experiments zu

erhöhen, was im Hinblick auf den Aufbau am CERN von großem Interesse ist. Auch hier lässt sich folgende Abschätzung machen: Bei angenommener gleicher Leistung von 800 mW ergibt sich für die Wellenlänge von 266 nm für den nah-resonanten $6^1S \rightarrow 6^3P$ -Übergang bei optimierter Phasenanpassung eine Leistung von 16,2 nW bei Lyman- α . Diese ist nur geringfügig weniger als die Leistung, die mit den jetzigen Wellenlängen zu erwarten ist. Sollten leistungsstarke Laser in diesem Wellenlängenbereich auf den Markt kommen, ist der Austausch des Ar^+ -Lasers sicher sinnvoll.

Es konnte gezeigt werden, dass kontinuierliche kohärente Strahlung bei Lyman- α mittels resonantem Vier-Wellen-Mischen in Quecksilber erzeugt werden kann. Dabei wurde eine Leistung von bis zu 20 nW erreicht. Theoretische Berechnungen sind in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen. Mit der Realisierung der im Ausblick dargestellten Veränderungen des experimentellen Aufbaus sollte die Ausgangsleistung bei Lyman- α um einige Größenordnungen erhöht werden können.

Mit der bei Lyman- α erzeugten Strahlung wurde eine 1S-2P Spektroskopie an Wasserstoff durchgeführt. Es konnten erstmals Spektren mit einer Linienbreite von 120 MHz aufgenommen werden, was nahezu der natürlichen Linienbreite entspricht. Es wurde eine Methode vorgestellt, die es ermöglichen kann, die spektrale Breite der VUV-Strahlung zu messen, indem die Niveaus des 2S- und des 2P-Niveaus von Wasserstoff gemischt werden. Dazu wird allerdings eine höhere Ausgangsleistung bei Lyman- α benötigt, als momentan zu Verfügung steht. Die oben beschriebenen Verbesserungsmöglichkeiten sollten aber diese Messung im Prinzip möglich machen.

Anhang A

Quelltexte

Die Berechnungen der Phasen Anpassungsintegrale für endliche Wechselwirkungslängen erfolgen mithilfe selbst geschriebener C-Programme. Die Quelltexte sind hier aufgelistet. Das VUV-Spektrum und die dazu benötigten Funktionen Phasenfehlanpassung, Phasen Anpassungsintegral und nichtlineare Suszeptibilität in der Nähe von Lyman- α sowie die Zwei-Photonen-Resonanz wurden mit selbst geschriebenen mathematica Programmen berechnet.

A.1 Berechnung der Phasen Anpassungsintegrale

Mit den hier aufgelisteten Programmen wird einerseits $|G(b\Delta k)|^2$ in Abhängigkeit von der Wechselwirkungslänge für einen festen Wert von $(b\Delta k)$ berechnet, dessen Ergebnis in Abbildung 2.4 dargestellt ist, und andererseits die Kurvenschar $|G(b\Delta k)|^2$ für verschiedene Werte von L/b , wie sie in Abbildung 2.5 gezeigt sind.

Mit dem Programm `phG1.c` wird $|G(b\Delta k)|^2$ in Abhängigkeit von der Wechselwirkungslänge L berechnet.

```
/* phG1.c berechnet das Phasen Anpassungsintegral G^2 */  
/* als Funktion der Wechselwirkungslaenge L. */  
/* b und Dk sind Konstanten. */
```

```

/* kompilieren mit gcc -Wall phG1.c nrutil.c -lm -o phG1*/

#include <stdio.h>
#include <math.h>
#include <string.h>
#include <strings.h>
#include "nrutil.h"
#include "nr.h"
#include "qromb.c"
#include "polint.c"
#include "trapzd.c"

#define b 0.16 /* konfokaler Parameter */
#define Dk -26.42 /* Phasenfehlanpassung */

FILE *GvonL;

float z;

float real_gint (float z)
{
    return b*Dk*(2*b*(b*b-4*z*z)*cos(Dk*z)-8*b*b*z*sin(Dk*z))/
        ((b*b+4*z*z)*(b*b+4*z*z));
}

float imag_gint (float z)
{
    return b*Dk*(-8*b*b*z*cos(Dk*z)-2*b*(b*b-4*z*z)*sin(Dk*z))/
        ((b*b+4*z*z)*(b*b+4*z*z));
}

float Gsqr (double L)
{
    double G_imag, G_real, G_imag_sqr, G_real_sqr;
    double f;

    f=L/2;
    G_imag=qromb(imag_gint,-f,L-f);
    G_real=qromb(real_gint,-f,L-f);

    G_real_sqr=G_real*G_real;
    G_imag_sqr=G_imag*G_imag;
    return G_real_sqr+G_imag_sqr;
}

```

```

void main()
{
    int i;
    double L;
    printf("...ich rechne....\n");

    GvonL=fopen("GvonLtest.dat","w");
    for (i=0;i<100;i++){
        L=i*0.02;
        fprintf(GvonL,"%f\t%f\n",L,Gsqr(L));
    }

    fclose(GvonL);
}

/* in mathematica folgendermassen einlesen: */
/* ReadList["GvonLtest.dat",Number,RecordLists->True]; */
/* ListPlot[%]; */

```

Mit dem Programm phG2.c werden die einzelnen Funktionen $|G(b\Delta k)|^2$ für verschiedene L/b berechnet.

```

/* phG2.c berechnet das Phasen Anpassungsintegral  $G^2$  als */
/* Funktion von bDk; b ist Konstante, L ist Konstante, */
/* Dk wird durchlaufen. */

/* kompilieren mit gcc -Wall phG2.c nrutil.c -lm -o phctest */

#include <stdio.h>
#include <math.h>
#include <string.h>
#include <strings.h>
#include "nrutil.h"
#include "nr.h"
#include "qromb.c"
#include "polint.c"
#include "trapzd.c"

#define b 0.16 /* konfokaler Parameter */

FILE *GvonDk;

float z;
double Dk;

```

```

double L;

float real_gint (float z)
{
    return b*Dk*(2*b*(b*b-4*z*z)*cos(Dk*z)-8*b*b*z*sin(Dk*z))/
        ((b*b+4*z*z)*(b*b+4*z*z));
}

float imag_gint (float z)
{
    return b*Dk*(-8*b*b*z*cos(Dk*z)-2*b*(b*b-4*z*z)*sin(Dk*z))/
        ((b*b+4*z*z)*(b*b+4*z*z));
}

float Gsqr (double Dk)
{
    double G_imag, G_real, G_imag_sqr, G_real_sqr;
    double f;

    f=L/2;
    G_imag=qromb(imag_gint,-f,L-f);
    G_real=qromb(real_gint,-f,L-f);

    G_real_sqr=G_real*G_real;
    G_imag_sqr=G_imag*G_imag;
    return G_real_sqr+G_imag_sqr;
}

void main()
{
    int i;
    L=0.125;

    printf(".....ich rechne.....\n");

    GvonDk=fopen("test1.dat","w");
    for (i=0;i<100;i++){
        Dk= (float)-i;
        fprintf(GvonDk,"%f\t%f\n",Dk*b,Gsqr(Dk));
    }

    fclose(GvonDk);
    printf("Fertig!\n");
}

/* in mathematica folgendermassen einlesen: */

```

```
/* ReadList["test1.dat",Number,RecordLists->True]; */
/* ListPlot[%]; */
```

A.2 Berechnung des VUV-Spektrums

Dieses Programm berechnet das VUV-Spektrum in der Umgebung von Lyman- α . Die freien Parameter sind in Tabelle 2.4 aufgelistet. Die Graphen, die dieses Programm liefert, sind in den Abbildungen 2.9, 2.10, 2.11 und 2.12 dargestellt.

```
(* VUV.nb : Berechnung der Leistung I4,
   Anette Pahl, 03.04.02*)
Clear[omega4, lambda4, w];
c = 2.99792458*10^8;
re = 2.8179380*10^(-13); (* Elektronenradius in cm *)
Ry = 1.097373177*10^5; (* Rydberkonstante in cm - 1 *)
chicont = 0.000045; (* Kontinuums - Suszeptibililität, wird als
konstant angesetzt und benötigt, um die (gemessenen) Werte
von [Smi87] wiedergeben zu können *)
omega7S = 63928.243; (* in cm - 1 *)
omega1 = 38872.69;
omega2 = omega7S - omega1;
b = 0.16; (* konfokaler Parameter in cm *)
L = 1.5;
K1 = omega1;
K2 = omega2;
K3 = omega4 - omega7S;
K4 = omega4;
I1 = 0.5; (* Intensität in W *)
I2 = 0.57;
I3 = 1.2;
Dichte = 45,6/33*6.4*10^(23) *10^(-6);
(* Dichte in Atome pro cm^3, 6.4* ... entspricht 33 Torr bei 155°C;
Wert aus [Smith87] *)
(* Achtung!!!! Wenn die Dichte geändert wird, ändert sich auch
die Dopplerbreite + Druckverbreiterung der
Zwei - Photonen - Resonanz; die muss aber "zu Fuss" neu
berechnet und eingetragen werden!!!! *)

(* *3 : bei der Berechnung von den Dipolmatrixelementen dipol7SnP
wird angenommen, dass 7S der untere Zustand ist, daher
```

die Vorfaktoren; deshalb wird bei den Zahlewerten von
osc7SnP *3 hinzugefügt, um dies wieder auszugleichen. *)

```
osc6SnP = {1.15, 0.024, 0.02, 0.00001, 0.01, 0.0014, 0.15, 0.07,
           0.0055, 0.0155, 0.0018, 0.005, 0.0011, 0.0023, 0.0008, 0.0011,
           0.0005, 0.0005, 0.0003, 0.53};
osc7SnP = {3*0.15, 3*0.0022, 1.24, 0.11, 0.029, 1.2*10^(-3), 0.018,
           0.029, 5*10^(-5), 0.0097, 2.6*10^(-7), 0.005, 1.6*10^(-6),
           0.0025, 7.5*10^(-6), 0.0015, 1.7*10^(-5), 0.0008, 2*10^(-5),
           0.061};
sign7SnP = {-1, -1, 1, 1, -1, 1, 1, 1, -1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1,
            1, 1, 1, 1};

levels = {54068.781, 39412.3, 71295.15, 69661.89, 76863.264,
          76467.067, 78813, 79964.1, 79412.745, 81153.614, 80916.686,
          81942.444, 81811.876, 82464.05, 82379, 82823.94, 82765.9,
          83084, 83039.3, 88760};
```

```
(* dipol berechnet nach Reintjes; in (ea0) ; levels so in cm - 1 *)
dipol6SnP = Sqrt[6/5*osc6SnP/levels*Ry];
dipol7SnP = Sqrt[osc7SnP/(Abs[omega7S - levels])*Ry]*sign7SnP;
```

```
(* nach [Smi87] wird chi(3) berechnet durch
   chi(3) = S*chi12*chi34, wobei S die Linienform
   der 7S Resonanz beschreibt *)
```

```
(* chi in (ea0)^2/cm - 1 , wenn omegas in cm - 1 *)
(* bei der Berechnung von chi12 und chi34 wird folgendes ausgenutzt :
   dipol6SnP*dipolnP7S = dipolnP6S*dipol7SnP;
   in der Berechnung von dipol wird durch den Vorfaktor schon
   berücksichtigt, dass eigentlich dipolnP7S berechnet wird,
   der Übersicht wegen aber diese Notation beibehalten *)
```

```
chi12 = Sum[(dipol6SnP[[i]]*dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega1)
            + dipol6SnP[[i]]*dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega2)),
            {i, 1, 20}];
chi34 = Sum[(dipol6SnP[[i]]*dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] - omega4)
            + dipol6SnP[[i]]*dipol7SnP[[i]]/(levels[[i]] -
            (omega4 - omega7S))), {i, 1, 20}];
```

```
(* Berechnung der Linienform der Zwei - Photonen - Resonanz wird aus
   Zeitgründen in dem Programm shape.nb ausgeführt; SsqR muss für
   geänderte Temperatur und damit geänderte Dopplerbreite hier
   geändert werden *)
```

```

Ssqr = 86.2027; (* übernommen aus shape.nb bei
                2Pi*2.15Ghz (0.072cm^-1) Dopplerbreite und
                2*Pi*1.25Ghz Druckverbreiterung*)
S = Sqrt[Ssqr];

chi = (chi12 + chicont)*(chi34 + chicont)*S;

(* Berechnung von dk = k4 - k3 - k2 - k1, wie in [Rei84]
   und [Smi87] *)
(* contpol ist die Polarisierbarkeit des Kontinuums;
   Werte aus Grafik aus [Smi87] *)

faktor = re/(Pi*2);
liste = {{0, 1.784}, {20000, 1.838}, {30000, 1.892},
         {40000, 2}, {50000, 2.135}, {60000, 2.486},
         {65000, 2.703}, {70000, 3.027}, {75000, 3.568},
         {77500, 4.027}, {80000, 4.730}, {81250, 5.297},
         {82500, 5.946}, {83404, 6.27}};
contpol = Interpolation[liste];
Brechlevel = Sum[osc6SnP[[i]]/(levels[[i]]*levels[[i]] - w*w),
                {i, 1, 19}];
Brechcont = 2*Pi*10^(-24)*contpol[w] ;
            (*contpol in Angström^3, Brechcont in cm^3*)
Brech = faktor*Brechlevel + Brechcont; (* Brech = n - 1*)
Kprime[w_] = 2*Pi*Brech*w;
Clear[Deltakp];
Deltakp[w_] = (Kprime[w] + Sign[omega7S - w]*
              Kprime[Abs[omega7S - w]]);
(* Plot[Deltakp[w]*10^(16), {w, 80500, 83050}]; *)
(* Plot von Deltakp stimmt mit dem in [Smi87] überein *)
dk = Dichte*(Deltakp[omega4] - Deltakp[omega1]);

(* Phasenanpassungsintegral Fsqr, das zur Berechnung von I4
   benutzt wird; Fsqr ist nur ungleich Null, wenn dk < 0!!*)
Fsqr = If[dk < 0, Pi^2*(b*dk)^2*Exp[b*dk], 0];

(* zu maximierendes Phasenanpassungsintegral Gsqr;
   taucht in der Berechnung von I4 nicht mehr auf *)
Gsqr = If[dk < 0, Pi^2*(b*dk)^4*Exp[b*dk], 0];

(* Leistung der erzeugten Welle; berechnet,
   wie bei [Smi87] in atomaren Einheiten *)
I4 = 7.8*10^(-49)*Dichte^2*K1*K2*K3*K4*Abs[chi]^2*I1*I2*I3*Fsqr;

omega4 = 1/lambda4*10^7;
Plot[Abs[chi]*10^4, {lambda4, 121, 123.5}, PlotRange -> {0, 0.05}];

```

```
Plot[dk, {lambda4, 121, 123.5}, GridLines -> {{121.56}, {-25}}];
Plot[Gsqr, {lambda4, 121, 123.5}(*, PlotRange -> {0, 10^(-61)}*);
Plot[I4*10^6, {lambda4, 121, 123.5}, PlotRange -> {0, 1},
  PlotPoints -> 200];
```

```
(* Werte für Lyman - alpha ausrechnen *)
lambda4 = 121.56;
Abs[S]^2
(chi12 + chicont)
(chi34 + chicont)
Abs[chi]
dk
Fsqr
I4
```

A.3 Berechnung der Zwei-Photonen-Resonanz

Dieses Programm berechnet die Form der Zwei-Photonen-Resonanz. Abbildung 2.8 zeigt den damit erzeugten Graphen. Der Wert, der für die Verstimmung $\Delta = -0,013$ ausgerechnet wird, entspricht dem Maximum der Zwei-Photonen-Resonanz, das im Experiment ausgenutzt wird. Dieser Wert wird in das zuvor beschriebene Programm zur Berechnung des VUV-Spektrums übernommen.

```
(* Shape.nb : Programm zur Berechnung der Form der
  Zwei - Photonen - Resonanz, Anette Pahl 10.03.02*)
(* S(omega1 + omega2) aus [Smi87]; Werte in cm^-1;
  Verstimmung von 202Hg aus gesehen *)
Clear[xeta, x, y, Delta];
Z0[xeta_] = I*Sqrt[Pi]*Exp[-(xeta)^2]*(1 + Erf[I*xeta]);
(* Plasmadispersionsfunktion *)
(* Achtung! Will man die Linienform bei einer anderen Temperatur
  berechnen, muss die Dopplerbreite und die Druckverbreiterung
  geändert werden!! *)

(* hier wird die Abhängigkeit von der Tempertur eingeführt;
  liste1 aus [Ard64] *)
```

```

liste1 = {{280, 3*10^(-4)}, {290, 1*10^(-3)},
          {300, 2*10^(-3)}, {310, 4*10^(-3)}, {320, 1*10^(-2)},
          {330, 2*10^(-2)}, {350, 7*10^(-2)}, {360, 0.15},
          {380, 0.5}, {400, 1}, {410, 1.5}, {420, 2.1}, {430, 3.5},
          {440, 4.5}, {450, 7}, {460, 10}, {470, 15}, {480, 20},
          {490, 30}, {500, 45}, {520, 70}, {540, 130}, {560, 190},
          {580, 300}, {600, 400}};

Temp = 273 + 220; (*Temp in K *)
DichtevonT = Interpolation[liste1] ;
(* DichtevonT in Torr, T in Kelvin *)
DeltaDruckcm1 = 0.036667*DichtevonT[Temp]/40*1013/760
(* Druckverbreiterung in cm - 1 *)
omega7S = 63928.243;
c = 2.99*10^8;
m = 202*1.66*10^(-27);
k = 1.38*10^(-23);
vw = Sqrt[2*k*Temp/m];
DeltaomegaD = 2*Sqrt[Log[2]]*omega7S*vw/c
w = 1/(2*Sqrt[Log[2]])*DeltaomegaD;
(* Dopplerbreite DeltaomegaD = 0.072cm^-1 *)
Gammai = 0.000171 + DeltaDruckcm1;
(*natuerliche Linienbreite + Druckverbreiterung *)

x = 1/w*Delta;
y = 1/w*Gammai/2;
xeta = x + I*y;
(* S1 - 6 : die verschiedenen Linienformen der Isotope *)
S1 = 1/w*0.23096*Z0[xeta - 0.148/w];
S2 = 0.29863*1/w*Z0[xeta];
S3 = 0.16873*1/w*Z0[xeta - 0.2659/w];
S4 = 0.13181/w*Z0[xeta - 0.1033/w];
S5 = 0.09968/w*Z0[xeta - 0.2806/w];
S6 = 0.06865/w*Z0[xeta + 0.1453/w];
Ssingle = 1/w*Z0[xeta];
Sges = S1 + S2 + S3 + S4 + S5 + S6;
Singlesqr = Abs[Ssingle]^2;
Ssqr = Abs[Sges]^2;
Plot[Ssqr, {Delta, -0.4, 0.6}(*, PlotRange -> {0, 125}*),
      GridLines -> {{-0.4, -0.2, -0.063, -0.013, 0.037, 0.2,
                    0.4}, Automatic}, PlotPoints -> 1000]
Plot[{Ssqr, Singlesqr}, {Delta, -0.4, 0.6}, PlotRange -> {0, 800},
      PlotPoints -> 1000 (*, PlotStyle -> {{RGBColor[1, 0, 0]},
      {RGBColor[0, 0, 0]}}*);
Delta = -0.013;
Ssqr

```


Literaturverzeichnis

- [Act02] *Acton Katalog* (2002)
- [Alf87] W. J. Alford, A. V. Smith, *Phys. Rev. A* **36**, 641 (1987)
- [All93] M. Allegrini, E. Arimondo, *Phys. Lett. A* **172**, 271 (1993)
- [Ard64] M. v.Ardenne, *Tabellen der angewandten Physik*, Band II, (Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin, 1964)
- [ATH96] Athena proposal to the CERN SPSLC, Cern SPSC/P302, 20 October 1996
- [ATR97] ATRAP proposal to the CERN SPSLC, Cern SPSC/P306, 25 March 1997
- [Bat77] S. A. Batishche, V. S. Burakov, V. G. Voronin, V. I. Gladushchak, V. A. Mostovnikov, P. A. Naumenkov, G. T. Razdobarin, A. N. Rubinov, V. V. Semenov, N. V. Tarasenko, E. Y. Shreider, *Sov. Tech. Phys. Lett.* **3**, 473 (1977)
- [Bat81] S. A. Batishche, V. S. Burakov, Y. V. Kostenich, V. A. Mostovnikov, P. A. Naumenkov, N. V. Tarasenko, V. I. Gladushchak, S. A. Moshkalev, G. T. Razdobarin, V. V. Semenov, E. Y. Shreider, *Opt. Commun.* **38**, 71 (1981)
- [Bau96] G. Baur, G. Boero, S. Brauksiepe, A. Buzzo, W. Eyrich, R. Geyer, D. Grzonka, J. Hauffe, K. Kilian, M. LoVetere, M. Macri, M. Moosburger, R. Nellen, W. Oelert, S. Passaggio, A. Pozzo, K. Röhrich, K. Sachs, G. Schepers, T. Sefzick, R. S. Simon, R. Stratmann, F. Stinzinger, M. Wolke, *Phys. Lett. B* **368**, 251 (1996)
- [Ben89] E. C. Benck, J. E. Lawler, J. T. Dankin, *Journ. of the Opt. Soc. Am B* **6**, 11 (1989)

- [Ber97] D. J. Berkeland, F. C. Cruz, J. C. Bergquist, *Appl. Opt.* **36**, 4159 (1997)
- [Bjo75] G. C. Bjoerklund, *IEEE Journ. Quant. Electr.* **QE-11**, 287 (1975)
- [Bla98] G. Blanford, D. C. Christian, K. Gollwitzer, M. Mandelkern, C. T. Munger, J. Schultz, G. Zioulas, *Phys. Rev. Lett* **80**, 3037 (1998)
- [Blu99] R. Bluhm, V. A. Kostelechý, N. Russell, *Phys. Rev. Lett* **82**, 2254 (1999)
- [Bol84] L. T. Bolotskikh, A. L. Vysotin, Im Tkhek-de, O. P. Podavalova, A. K. Popov, *Appl. Phys B* **35**, 249 (1984)
- [Bor80] M. Born, E. Wolf, *Principle of Optics*, (Pergamon Press, Oxford, 1980)
- [Boy68] G. D. Boyd, D. A. Kleinman, *J. Appl. Phys.* **39**, 3597 (1968)
- [Boy92] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, (Academic Press, San Diego, 1992)
- [But90] P. N. Butcher, D. Cotter, *The Elements of Nonlinear Optics*, (Cambridge University Press, Cambridge, 1990)
- [Car90] R. Carosi, P. Clarke, D. Coward, D. Cundy, N. Doble L. Gatignon, V. Gibdon, P. Grafström, H. Hagelberg, G. Kessler, J. van der Lans, H. N. Nelson, H. Wahl, R. Black, D. J. Candlin, J. Muir, K. J. Peach, H. Blümer, R. Heinz, M. Kasemann, K. Kleinknecht, P. Mayer, B. Panzer, B. Renk, S. Roehn, H. Rohrer, E. Augé, R. L. Chase, D. Fournier, P. Heusse, L. Iconomidou-Fayard, I. Harrus, A. M. Lutz, A. C. Schaffer, L. Bertanza, A. Bigi, P. Calafura, M. Calveti, R. Casali, C. Cerri, R. Fantechi, G. Gargani, I. Mannelli, A. Nappi, G. M. Pierazzini, C. Becker, H. Burkhardt, M. Holder, G. Quast, M. Rost, H. G. Sander, W. Weihs, G. Zech, *Phys. Lett. B* **237**, 303 (1990)
- [Cor77] A. Cornay, *Atomic and Laser Spectroscopy* (Clarendon Press, Oxford, 1977)
- [Cot79] D. Cotter, *Opt. Commun.* **31**, 397 (1979)
- [Dar92] T. W. Darling, F. Rossi, G. I. Opat, G. F. Moorhead, *Rev. Mod. Phys.* **64**, 237 (1992)

- [Dem00] W. Demtröder, *Laserspektroskopie* (Springer Verlag, Berlin, 2000)
- [Döh02] *mündliche Mitteilung* Döhner Elektrooptik (2002)
- [Doy89] J. M. Doyle, N. Masuhara, I. A. Yu, D. Kleppner, T. J. Greytak, *Journ. of the Opt. Soc. Am B* **6**, 2244 (1989)
- [Dyc87] R. S. Van Dyck, P. B. Schwingberg, H. G. Dehmelt, *Phys. Rev. Lett* **59**, 26 (1987)
- [Ebn93] D. Ebner, H. Dehnen, *Phys. Bl.* **49**, 1013 (1993)
- [Eid01] M. I. Eides, H. Grotch, V. A. Shelyuto, *Physics Reports* **342**, 63 (2001)
- [Eik99] K. S. E. Eikema, J. Walz, T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett* **83**, 3828 (1999)
- [Eik01] K. S. E. Eikema, J. Walz, T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett* **86**, 5679 (2001)
- [Ert88] W. Ertmer, H. Wallis, *Hyperfine Interactions* **44**, 319 (1988)
- [Fed01] A. B. Fedotov, F. Giammanco, A. N. Naumov, P. Marsili, A. Riffini, D. A. Sidorov–Biryukov, A. M. Zheltikov, *Appl. Phys B* **72**, 575 (2001)
- [Fre78] R. R. Freeman, G. C. Bjorklund, N. P. Economou, P. F. Liao, J. E. Bjorkholm, *Appl. Phys. Lett.* **33**, 739 (1978)
- [Fri61] B. D. Fried, S. D. Conte, *The Plasma Dispersion Function* (Academic Press, New York, 1961)
- [Gab90] G. Gabrielse, X. Fei, L. A. Orozco, R. L. Kjoelker, J. Haas, H. Kalinowsky, T. A. Trainor, W. Kells, *Phys. Rev. Lett* **65**, 1317 (1990)
- [Gab99a] G. Gabrielse, A. Khabbaz, D. S. Hall, C. Heimann, H. Kalinowsky, W. Jhe, *Phys. Rev. Lett* **82**, 3198 (1999)
- [Gab99] G. Gabrielse, D. S. Hall, T. Roach, P. Yesley, A. Khabbaz, J. Estrada, C. Heimann, H. Kalinowsky, *Phys. Lett. B* **455**, 311 (1999)

- [Gab01] G. Gabrielse, J. Estrada, J. N. Tan, P. Yesley, N. S. Bowden, P. Oxley, T. Roach, C. H. Storry, M. Wessels, J. Tan, D. Grzonka, W. Oehlert, G. Schepers, T. Sefzick, W. H. Breunlich, M. Cargelli, H. Fuhrmann, R. King, R. Ursin, J. Zmeskal, H. Kalinowsky, C. Wesdorp, J. Walz, K. S. E. Eikema, T. W. Hänsch, *Phys. Lett. B* **507**, 1 (2001)
- [Ger77] S. Gerstenkorn, J. J. Labarthe, J. Vergès, *Phys. Scripta*, **15**, 167 (1977)
- [Gol88] T. Goldman, R. J. Hughes, M. M. Nieto, *Sci. Am.* **258**, no.3 32 (1988)
- [Hae80] T. W. Hänsch, B. Coulliaud, *Opt. Commun.* **35**, 441 (1980)
- [Hae93] T. W. Hänsch, C. Zimmermann, *Hyperfine Interactions* **76**, 47 (1993)
- [Har90] S. E. Harris, J. E. Field, A. Imamoglu, *Phys. Rev. Lett* **64**, 1107 (1990)
- [Hes87] H. F. Hess, G. P. Kochanski, J. M. Doyle, N. Masuhara, D. Kleppner, T. J. Greytak, *Phys. Rev. Lett* **59**, 672 (1987)
- [Hil81] R. C. Hilborn, *Am. J. Phys.* **50**, 982 (1981) und *Am. J. Phys.* **51**, 471 (1983)
- [Hil81a] R. Hilbig, R. Wallenstein, *IEEE Journ. Quant. Electr.* **QE-17**, 1566 (1981)
- [Hil82] R. Hilbig, R. Wallenstein, *Appl. Opt.* **21**, 913 (1982)
- [Hil83] R. Hilbig, R. Wallenstein, *IEEE Journ. Quant. Electr.* **QE-19**, 1759 (1983)
- [Hil84] R. Hilbig, G. Hilber, R. Wallenstein, *AIP Conf. Proc.* **119** “Laser Techniques in the Extreme Ultraviolet”, S. E. Harris, T. B. Lucatoro eds., American Institute of Physics, p.1 (1984)
- [Hub97] W. A. Huber, Dissertation, Ludwig–Maximilians–Universität München 1997
- [Jam82] W. Jamroz, P. E. LaRocque, B. P. Stoicheff, *Opt. Lett.* **7**,617 (1982)
- [Kog66] H. Kogelnik, T. Li, *Appl. Opt.* **5**, 1550 (1966)

- [Lag87] A. Lago, G. Hilber, R. Wallenstein, *Phys. Rev. A* **36**, 3827 (1987)
- [Lan80] H. Langer, H. Puell, H. Röhr, *Opt. Commun.* **34**, 137 (1980)
- [Let88] P. D. Lett, P. L. Gould, W. D. Phillips, *Hyperfine Interactions* **44**, 335 (1988)
- [Lui93] O. J. Luiten, H. G. C. Werij, I. D. Setija, M. W. Reynolds, T. W. Hijmans, J. T. M. Walraven, *Phys. Rev. Lett* **70**, 544 (1993)
- [Mah78] R. Mahon, T. J. McIlrath, D. W. Koopman, *Appl. Phys. Lett.* **33**, 305 (1978)
- [Mah79] R. Mahon, T. J. McIlrath, F. S. Tomkins, D. E. Kelleher, *Opt. Lett.* **4**, 360 (1979)
- [Mah80] R. Mahon, Y. M. Yiu, *Opt. Lett.* **5**, 279 (1980)
- [McK78] T. J. McKee, B. P. Stoicheff, S. C. Wallace, *Opt. Lett.* **3**, 207 (1978)
- [Mes85] A. Messiah, *Quantenmechanik* Band 2, (de Gruyter, Berlin, 1985)
- [Mil73] R. B. Miles, S. E. Harris, *IEEE Journ. Quant. Electr.* **QE-9**, 470 (1973)
- [Nie91] M. M. Nieto, T. Goldman, *Phys. Reports* **205**, 221 (1991); **216**, 343 (E) (1992)
- [Nie00] M. Niering, Dissertation, Ludwig–Maximilians–Universität München 2000
- [Nie00b] M. Niering, R. Holzwarth, J. Reichert, P. Pokasov, Th. Udem, M. Weitz, T. W. Hänsch, P. Lemonde, G. Santarelli, M. Abgrall, P. Laurent, C. Salomon, A. Clairon, *Phys. Rev. Lett*, **84**, 5496 (2000)
- [Nol90] J. Nolting, H. Kunze, I. Schütz, R. Wallenstein, *Appl. Phys B* **50**, 331 (1990)
- [Nol90b] J. Nolting, R. Wallenstein, *Opt. Commun.* **79**, 437 (1990)
- [Pac96] K. Pachucki, D. Leibfried, M. Weitz, A. Huber, W. König, T. W. Hänsch, *Journ. Phys. B* **29**, 177 (1996)
- [PDG00] Particle Data Group, D.E. Groom et al., *The European Physical Journal* **C15**, 1 (2000)

- [Phi93] W. D. Phillips, S. L. Rolston, P. D. Lett, T. McIlrath, N. Vansteenkiste, C. I. Westbrook, *Hyperfine Interactions* **76**, 265 (1993)
- [Rei84] J. F. Reintjes, *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases*, (Academic Press, London, 1984)
- [Rei87] F. Reif, *Statistische Physik und Theorie der Wärme* (de Gruyter, Berlin 1987)
- [Sch93] F. Schwabl, *Quantenmechanik* (Springer, Berlin, 1993)
- [Sco88] G. Scoles, *Atomic and Molecular Beam Methods* (Oxford Univ. Press, New York, 1988)
- [Set93] I. D. Setija, H. C. Werij, O. J. Luiten, M. W. Reynolds, T. W. Hijmans, J. T. M. Walraven, *Phys. Rev. Lett* **70**, 2257 (1993)
- [She84] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics* (John Wiley & Sons, New York, 1984)
- [Smi87] A. V. Smith, W. J. Alford, *Journ. of the Opt. Soc. Am* **B 4**, 1765 (1987)
- [Sob79] I. I. Sobelman, *Atomic Spectra and Radiative Transitions* (Springer, Berlin, 1979)
- [Tim83] A. Timmermann, R. Wallenstein, *Opt. Lett.* **8**, 517 (1983)
- [Tom82a] F. S. Tomkins, R. Mahon, *Opt. Lett.* **7**, 304 (1982)
- [Tom82b] F. S. Tomkins, R. Mahon, *AIP Conf. Proc.* **90** "Laser Techniques for Extreme Ultraviolet Spectroscopy", T. J. McIlrath, R. R. Freeman eds., American Institute of Physics, pp.352 (1982)
- [Vid92] C. R. Vidal, *Tunable Lasers*, Topics in Appl. Phys, **59** (1992), 57
- [Wal80] R. Wallenstein, *Opt. Commun.* **33**, 119 (1980)
- [Wal82] J. T. M. Walraven, I. F. Silvera, *Rev. Sci. Instrum.* **53**, 1167 (1982)
- [Wal93] J. T. M. Walraven, *Hyperfine Interactions* **76**, 205 (1993)
- [Wie66] Wiese, Smith, Glennon, *Atomic Transition Probabilities Vol. 1* (National Standard Reference Data Series, National Bureau of Standards 4, 1966)

- [Yar89] A. Yariv, *Quantum Electronics* (John Wiley & Sons, New York, 1989)
- [Zad89] M. G. Zadnik, S. Specht, F. Begemann, *Intern. Journ. of Mass Spectr. and Ion Processes* **89**, 103 (1989)

Dankeschön

Zu guter Letzt möchte ich die Gelegenheit nutzen, allen zu danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben, die mich mit Rat und Tat unterstützt haben und mit denen ich eine angenehme Zeit am MPQ verbringen konnte.

Mein größter Dank gebührt Prof. Dr. Theodor W. Hänsch, der es mir ermöglichte, an einem hochinteressanten Experiment arbeiten und von den hervorragenden Bedingungen am MPQ profitieren zu können.

Prof. Dr. Dietrich Habs danke ich für die Übernahme des Korreferats.

Dr. Jochen Walz und Dr. Kjeld Eikema danke ich herzlich für die große Hilfe, die sie mir bei Problemen waren und für die maßgebliche Unterstützung, die sie mir bei der Durchführung dieser Arbeit gegeben haben. Bei vielen Fragen, in denen ich nicht mehr weiter wusste, konnten sie mir mit ihrem Wissen und ihrer Sichtweise der Dinge weiterhelfen.

Besonders herzlicher Dank geht an meine Mit-Doktoranden Birgit Schatz und Peter Fendel für die schöne Zeit zusammen im Labor und die gute gemeinsame Arbeit. Für die vielen Anregungen und Diskussionen nicht nur auf physikalischem Gebiet möchte ich mich bedanken.

Dem Wasserstofflabor möchte ich ganz besonders danken. Marc Fischer und Dr. Nicolai Kolachevsky wussten zu Fragen zu Farbstofflasern immer eine Antwort. In zahlreichen Diskussionen über das Wasserstoffatom habe ich viel von ihnen lernen können.

Ich danke Dr. Thomas Udem, Dr. Ronald Holzwarth, Dr. Michael Mei, Sebastian Fray, Marcus Zimmermann und dem Rest der Arbeitsgruppe, sowie einigen ehemaligen Kollegen wie Jörg Reichert und Rainer Scheunemann, die mir mit Rat und Tat in ihrem Spezialgebiet zur Seite standen und für ein produktives Arbeitsklima sorgten.

Charly Linner und Wolfgang Simon danke ich für die tatkräftige Unterstützung in Sachen Fein- und „Grob“-Mechanik. Helmut Brückner danke ich für die Hilfsbereitschaft, elektrische und elektronische Probleme zu lösen. Frau Lechner und Gabi Gschwendner danke ich für ihre Hilfsbereitschaft und ihre Organisationstalente.

Allen Mitgliedern der Gruppe möchte ich herzlich für die freundliche und hilfsbereite Atmosphäre, die in der Arbeitsgruppe herrscht, danken. Ihr alle hattet einen großen Anteil daran, dass die Doktorarbeit eine Vielzahl von heiteren Stunden bereithielt.

Ganz besonders möchte ich mich bei meinen Eltern, die mich in vielerlei Hinsicht unterstützt haben, bedanken.

Zu guter Letzt möchte ich meinem lieben Marc für seine stete Unterstützung, sein Interesse, seine Geduld und vieles, das sich nicht in Worte fassen lässt, danken.

Vielen Dank!

Lebenslauf

Anette Pahl

geb. 27.01.1973 in Hannover

1979–1983	Grundschule Hannover
1983–1985	Orientierungsstufe Hannover
1985–1992	Gymnasium Hannover
1992	Abitur
1992–1998	Studium der Physik an der Universität Hannover
August 1995–August 1996	Studium der Physik an der Universität Kopenhagen, Dänemark
Februar 1996–Juni 1996	Mitarbeit am Nils Bohr Institute, Ørsted Laboratory, Kopenhagen, Dänemark
August 1997–August 1998	Diplomarbeit am Institut für Quantenoptik in Hannover: „Untersuchung kohärenter Bewegungsmoden kalter Rubidiumatome in Optischen Gittern“
Oktober 1998	Diplom
November 1998–Januar 1999	wissenschaftliche Mitarbeiterin am Institut für Quantenoptik, Hannover
seit Februar 1999	Doktorarbeit am Max-Planck-Institut für Quantenoptik in Garching

