
Drei-Photonen Kohärenzeffekte in Quecksilberdampf

Three-photon coherence effects in mercury vapour

Zur Erlangung des Grades eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)
genehmigte Dissertation von M.Sc. Benjamin Rein aus Miltenberg

Dezember 2016 – Darmstadt – D 17



TECHNISCHE
UNIVERSITÄT
DARMSTADT

Fachbereich Physik
Institut für Angewandte Physik
Laser und Quantenoptik



Drei-Photonen Kohärenzeffekte in Quecksilberdampf
Three-photon coherence effects in mercury vapour

Genehmigte Dissertation von M.Sc. Benjamin Rein aus Miltenberg

Referent: Prof. Dr. Thomas Walther

Korreferent: Prof. Dr. Gerhard Birkel

Tag der Einreichung: 18.10.2016

Tag der Prüfung: 07.11.2016

Darmstadt – D 17

Bitte zitieren Sie dieses Dokument als:

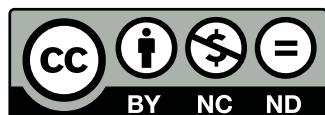
URN: [urn:nbn:de:tuda-tuprints-58628](https://nbn-resolving.org/urn:nbn:de:tuda-tuprints-58628)

URL: tuprints.ulb.tu-darmstadt.de/id/eprint/5862

Dieses Dokument wird bereitgestellt von tuprints,
E-Publishing-Service der TU Darmstadt

tuprints.ulb.tu-darmstadt.de

tuprints@ulb.tu-darmstadt.de



Die Veröffentlichung steht unter folgender Creative Commons Lizenz:

Namensnennung – Keine kommerzielle Nutzung – Keine Bearbeitung 4.0 International

creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/legalcode

Institut für Angewandte Physik
Technische Universität Darmstadt



Drei-Photonen Kohärenzeffekte in Quecksilberdampf

Vom Fachbereich Physik
der Technischen Universität Darmstadt

zur Erlangung des Grades
eines Doktors der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

genehmigte
Dissertation

von
M.Sc. Benjamin Rein
aus Miltenberg

Darmstadt 2016
D 17

"You know nothing, Jon Snow!"
- Ygritte by George R. R. Martin

Kurzzusammenfassung

Die Entwicklung kontinuierlich strahlender UV- und VUV-Laser ist ein aktives Forschungsfeld, da viele Anwendungen sowohl im industriellen Bereich wie auch im Grundlagenforschungsbereich von einer solchen Laserquelle profitieren können. Konventionelle Lasersysteme, basierend auf einer Besetzungsinversion in einem aktiven Medium kommen hier jedoch schnell an ihre Grenzen, da die für eine Besetzungsinversion notwendige Pumpleistung mit der Laserfrequenz ω_l^4 ansteigt. Auch Methoden wie die Frequenzverdopplung oder das vier-Wellen Mischen weisen Limitierungen bei der Erzeugung kurzer Wellenlängen auf.

Ein als *lasing without inversion* (LWI) bekanntes Phänomen stellt einen gänzlich anderen Ansatz zur Erzeugung von cw-Laserstrahlung im UV-Bereich dar. Hierbei werden Quanteninterferenzeffekte ausgenutzt, um die Absorption kohärenter Strahlung auf dem Laserübergang zu unterdrücken. Dies hat zur Folge, dass schon wenige angeregte Atome genügen, um eine Verstärkung kohärenter Laserstrahlung hervorzurufen und somit keine Besetzungsinversion auf dem Laserübergang mehr notwendig ist. Obwohl LWI bereits erfolgreich in Experimenten umgesetzt wurde, gelang es bis jetzt nicht mit dieser Technik in den UV-Bereich vorzudringen. Den begrenzenden Faktor stellt die Dopplerverbreiterung im LWI-Medium dar, deren Einfluss zu kürzeren Wellenlängen hin stärker wird und den LWI-Effekt „auswischt“.

In dieser Arbeit wird ein atomares vier-Niveau LWI-System in Quecksilberdampf untersucht, in dem es möglich ist, die Dopplerverbreiterung durch eine geschickte geometrische Anordnung der Laserstrahlen zu kompensieren und somit das Potential bietet, erstmalig LWI im UV-Bereich bei einer Wellenlänge von 253,7 nm zu realisieren. Basierend auf den, durch ein detailliertes theoretisches Modell ermittelten Anforderungen, wurden hierfür drei Lasersysteme bei den Wellenlängen von 404,5 nm, 435,8 nm und 546,1 nm entwickelt. Da die Lasersysteme bei 435,8 nm und 546,1 nm für eine kohärente Anregung verwendet werden, müssen diese eine besonders schmale Linienbreite aufweisen. Im Zuge der Linienbreitemessungen zeigte sich, dass sich die Linienbreite bei einer Frequenzverdopplung in einem Resonator mehr als verdoppeln kann.

Überlagert werden die Strahlen in einer UHV-Zelle mit angeschlossenem Vakuumsystem. Ein temperaturgeregeltes Quecksilberreservoir ermöglicht es die atomare Dichte und damit auch die Absorption zu steuern. Mit den entwickelten Lasersystemen und einem auf Frequenzverdopplung basierenden 253,7 nm Laser war es möglich, erstmalig eine dopplerfreie, auf kohärenter Anregung basierende drei-Photonen Resonanz in einem vier-Niveau System in Quecksilber zu messen und detailliert zu untersuchen. Erste Messungen in einer Konfiguration für *amplification without inversion* zeigen, wie entscheidend die spektralen Eigenschaften der inkohärenten Pumpe im LWI-System sind und ermöglichen es, die für LWI in Quecksilber notwendigen Parameter abzuschätzen. Dabei zeigt sich, dass das in dieser Arbeit entwickelte Gesamtsystem das Potential besitzt, erste Messungen von LWI im UV-Bereich zu ermöglichen.

Abstract

The development of CW lasers in the UV and VUV regime is a highly active field of research since many laser applications in both industry and fundamental research can benefit from such a laser source. Conventional laser systems based on population inversion in their active media are limited by the fact that the pump power required for a population inversion scales with the laser frequency ω_l^4 . Even techniques like second harmonic generation or four wave mixing are limited in generating short wavelengths.

The phenomenon of lasing without inversion (LWI) constitutes a completely different approach to producing CW laser radiation in the UV regime and even beyond. This technique is based on quantum interference effects which cancel the absorption of coherent radiation at the lasing transition. As a consequence, a few excited atoms are sufficient to achieve gain of coherent radiation. Therefore, a population inversion is no longer necessary. Even though there are successful experimental demonstrations of LWI, so far it has not been possible to realize LWI in the UV regime. Here the Doppler effect represents the limiting factor as it wipes out the coherent excitation and what is worse, its negative influence intensifies for shorter wavelengths.

In this thesis a four-level LWI system in mercury vapour is investigated which facilitates the compensation of the Doppler broadening by employing a special geometric orientation of the laser beams, hence creating the potential for LWI in the UV regime at a wavelength of 253.7 nm for the first time. Based on the requirements calculated by a detailed theoretical model of the LWI system, three laser systems at wavelengths of 404.7 nm, 435.8 nm and 546.1 nm were developed. As the laser systems at 435.8 nm and 546.1 nm are used for coherent excitation, they must feature a small spectral linewidth. In the course of the linewidth measurements it emerged that the linewidth more than doubles during intracavity frequency-doubling.

The laser beams are superimposed within the UHV cell attached to a vacuum system. A temperature controlled mercury reservoir makes it possible to control the atomic density and therefore absorption. Based on the developed laser systems and a 253.7 nm probe laser based on second harmonic generation, it was possible for the first time to measure and analyse a Doppler-free three-photon resonance based on coherent excitation within a four-level system in mercury. Preliminary measurements of an amplification without inversion scheme point out how crucial the spectral characteristics of the incoherent pump are. In addition, these measurements made it possible to estimate parameters necessary to allow for LWI in mercury. It was revealed that the complete system developed in this thesis offers the potential for first measurements of LWI in the UV regime.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Die Grundlagen zu <i>lasing without inversion</i>	5
2.1	<i>Coherent population trapping</i>	5
2.2	Elektromagnetisch induzierte Transparenz	8
2.3	<i>Lasing without inversion</i> - Ein Überblick	11
2.3.1	Das Konzept hinter LWI	11
2.3.2	Drei-Niveau LWI-Systeme	15
2.3.3	Vier-Niveau LWI-Systeme	17
2.4	<i>Lasing without inversion</i> in Quecksilber	21
3	Die Lasersysteme	27
3.1	Überblick über das Gesamtsystem	27
3.2	Frequenzstabilisierung der Lasersysteme	31
3.2.1	Polarisationsspektroskopie	31
3.2.2	Dichroitische Spektroskopie	34
3.3	Das 435,8 nm Lasersystem	37
3.3.1	ECDL und Trapezverstärker	37
3.3.2	Frequenzverdopplung	39
3.3.3	Frequenzstabilisierung	46
3.4	Das 546,1 nm Lasersystem	52
3.4.1	ECDL	52
3.4.2	Frequenzverdopplung	52
3.4.3	Frequenzstabilisierung	58
3.5	Das 404,7 nm Lasersystem	63
3.5.1	ECDL	63
3.5.2	Frequenzstabilisierung	66
3.6	Das 253,7 nm Lasersystem	72
3.7	Der 253,7 nm Strahlengang und die Überlagerungszone	75
4	UHV-Zelle mit Vakuumsystem und Quecksilberreservoir	79
4.1	Die UHV-Zelle und das Vakuumsystem	79
4.2	Spektroskopische Eigenschaften der UHV-Zelle	81

5	Linienbreiten der Lasersysteme	85
5.1	Grundlagen zur Linienbreitenmessung	86
5.1.1	Das Spektrum von Laserdioden	86
5.1.2	Selbst-heterodynes Messverfahren	91
5.1.3	Bestimmung der Linienbreite	96
5.2	Linienbreiten der verwendeten Lasersysteme	100
5.2.1	435,8 nm Lasersystem	101
5.2.2	546,1 nm Lasersystem	104
6	Messung der kohärenten Anregung	109
6.1	Drei-Photonen Resonanz	109
6.1.1	Einfluss der Linienbreite der Kopplungslaser	118
6.1.2	Verstimmung der Kopplungslaser	120
6.1.3	Zeemanaufspaltung	124
6.2	AWI-Konfiguration	127
6.2.1	Einfluss der Pumpleistung	130
6.2.2	Verschiebung der Pumpfrequenz	132
6.2.3	Vergleich von theoretischem Modell und Experiment	134
7	Zusammenfassung und Ausblick	139
7.1	Zusammenfassung	139
7.2	Ausblick	141
A	Wichtige Kenngrößen der atomaren Übergänge in Quecksilber	145
B	Erweiterte Darstellung der berechneten Spektren	149
C	Schaltplan der Differenzelektronik der UV-Photodioden	151
D	Kristall- und Resonatorparameter	153
E	Quelltext zur Berechnung des Laserspektrums	155
F	Aufbereitung der Rohdaten	157
	Literaturverzeichnis	163
	Veröffentlichungen und Tagungsbeiträge	177
	Betreute Master- und Bachelorarbeiten	181
	Danksagung	183

1 Einleitung

Schlägt man in einem Lehrbuch nach wie ein Laser aufgebaut ist, so werden fast immer die folgenden drei grundlegenden Komponenten genannt [1–6]:

- Ein aktives Medium, in dem durch Energiezufuhr eine Besetzungsinversion hervorgerufen wird.
- Eine Pumpe, die dem aktiven Medium Energie zuführt.
- Ein Resonator, der die aus dem aktiven Medium austretenden Photonen in seinen Resonatormoden speichert.

Diese drei Komponenten sind auch in Abbildung 1.1 dargestellt. Die angedeutete Besetzungsinversion zwischen dem oberen Laserniveau $|2\rangle$ und dem unteren Laserniveau $|1\rangle$ wird im Allgemeinen als essentielle Voraussetzung für die Verstärkung von Laserstrahlung angenommen [7, 8] bzw. gilt gar als Axiom für Lasertätigkeit [9]. Erst durch eine Besetzungsinversion auf dem Laserübergang, wenn mehr Besetzung im oberen Laserniveau vorhanden ist als im unteren, kann die stimulierte Emission von Photonen dominieren und Lasertätigkeit erreicht werden. Um eine Besetzungsinversion zu erlangen, muss die Leistung der Pumpe einen gewissen Grenzwert $P_{p,\text{th}}$ überschreiten. Dieser Grenzwert ist zum einen vom aktiven Medium selbst abhängig, wobei hier vor allem die genutzte atomare Niveaustuktur mit ihren Zerfallsraten eine Rolle spielt und wie effizient sich das Medium pumpen lässt. Zum anderen hat aber auch die Qualität und der Aufbau des Resonators Einfluss auf die notwendige Pumpleistung. Der entscheidende Faktor ergibt sich jedoch direkt aus dem Einsteinkoeffizienten für spontane Emission und dessen Abhängigkeit von der Frequenz des atomaren Übergangs und besagt [10]:

$$P_{p,\text{th}} \propto \omega_l^4.$$

Die für eine Besetzungsinversion notwendige Pumpleistung skaliert mindestens mit der Laserfrequenz ω_l zur vierten Potenz. Je kürzer die Laserwellenlänge, desto mehr Pumpleistung ist für den Laserbetrieb notwendig. Dies stellt die maßgebliche Hürde für die Entwicklung von konventionellen, kontinuierlich strahlenden Lasersystemen (cw-Laser) mit Wellenlängen im ultravioletten- oder gar Röntgenbereich dar [10, 11].

Jedoch könnten viele Anwendungen von einer schmalbandigen cw-Laserquelle mit Wellenlängen < 200 nm profitieren. Dazu gehört z. B. die Inspektion von Wafern in der Halbleiterindustrie oder die winkel-aufgelöste Photoemissionsspektroskopie [12–14], aber auch neuere Entwicklungen wie die Spektroskopie eines nuklearen Uhren-Übergangs in Thorium

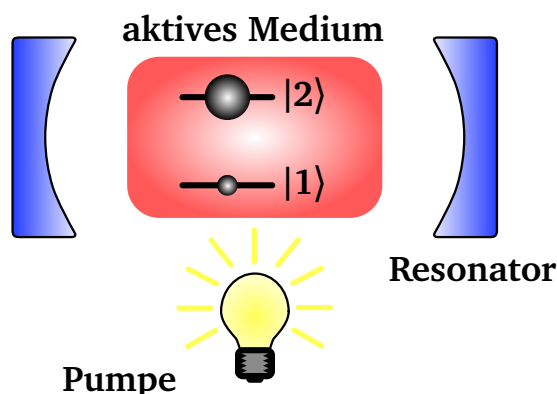


Abbildung 1.1: Die drei grundlegenden Komponenten eines Lasers. Die Besetzungsinversion im aktiven Medium findet zwischen dem oberen $|2\rangle$ und unteren $|1\rangle$ Laserniveau statt.

bei einer Wellenlänge im Bereich von 160 nm [15].

Um dennoch cw-Laserstrahlung im ultravioletten-Wellenlängenbereich (UV-Bereich) zu erzeugen, stellen die Frequenzverdopplung bzw. -vervierfachung (*second-harmonic generation*, kurz SHG; *fourth-harmonic generation*, kurz FHG) gängige Methoden dar [16, 17]. Diese beiden Methoden sind jedoch auf die Verfügbarkeit von Materialien mit großen nicht-linearen Koeffizienten und einer Transparenz bei der zu erreichenden Wellenlänge angewiesen. Hier liegt die Grenze aktuell im vakuum UV-Bereich (VUV-Bereich) bei ca. 153 nm für Kristalle aus Kalium Fluoroboratoberyllate (KBBF) [12].

Eine weitere Technik stellt das vier-Wellen Mischen (*four-wave mixing*, kurz FWM) in gasförmigen Medien dar. Bei diesem Prozess erzeugen drei Laserstrahlen eine nicht-lineare Polarisation aus der sich ein viertes kohärentes Feld bei der Summenfrequenz der drei Kopplungslaser ergibt. Mit dieser Technik war es bereits möglich mehrere μW cw-Laserstrahlung bei einer Wellenlänge von 121 nm zu realisieren [18].

Diese Verfahren verwenden nicht-lineare Effekte, um die gewünschte Wellenlänge zu erzeugen und setzen somit hohe Leistungen bei den Fundamental- bzw. Kopplungswellenlängen voraus. Weiterhin benötigen diese Verfahren für die Erzeugung immer kürzerer Wellenlängen auch kürzere Wellenlängen bei den Fundamental- bzw. Kopplungslasern und weisen somit auch eine Limitierung auf.

Einen gänzlich anderen Ansatz verfolgt das als *lasing without inversion* (LWI) bekannte Konzept, dessen theoretische Grundlagen gegen Ende der 80er Jahre fast zeitgleich von Kocharovskaya *et al.* [19], Scully *et al.* [20], Harris [7] und Imamoğlu [21] entwickelt wurden. Die grundlegende Idee von LWI ist es die Absorption kohärenter Strahlung auf dem Laserübergang zu unterdrücken, so dass nur wenig Besetzung im oberen Laserniveau vorhanden sein muss, um Verstärkung zu erreichen. Dabei werden Quanteninterferenzef-

fekte wie die elektromagnetisch induzierte Transparenz (EIT) oder das kohärente Fangen von Besetzung (CPT) ausgenutzt [8, 10]. Die Wellenlängen der Kopplungslaser die den kohärenten Effekt stimulieren, können dabei wesentlich größer sein als der eigentliche LWI-Laserübergang. Da die Absorption nur für kohärente Strahlung unterdrückt wird, ist es weiterhin möglich das obere Laserniveau mit einer inkohärenten Pumpe zu bevölkern.

Im Unterschied zu den zuvor erwähnten Methoden wie SHG, FHG und FWM, bei denen das Medium, in dem der jeweilige Prozess stattfindet, nur als „Vermittler“ dient, wird bei LWI die Energie für die Laserstrahlung direkt aus dem Medium gewonnen [10, 11]. Wie bei einem konventionellen Laser wird also Energie einer inkohärenten Quelle in kohärente Strahlung umgewandelt.

In atomaren drei-Niveau Systemen wurde in Experimenten in Rubidium [22] und Natrium [23] bereits erfolgreich cw-Laserstrahlung durch LWI bei Wellenlängen von 794 nm und 590 nm erzeugt, wobei die Wellenlängen der Kopplungslaser und des LWI-Laserübergangs in beiden Experimenten sehr nahe beieinander liegen und somit kein Gewinn bezüglich der Wellenlänge erreicht wurde. Theoretisch ist es möglich das Konzept von LWI zur Erzeugung kohärenter Röntgen- oder sogar Gammastrahlung zu nutzen [24–26]. Allerdings ist LWI in drei-Niveau Systemen durch die Dopplerverbreiterung des Mediums limitiert, auf Grund derer die kohärente Anregung „verwischt“, wenn der Wellenlängenunterschied zwischen Kopplungslaser und LWI-Laserübergang größer wird [8].

Ziel dieser Arbeit ist es ein vier-Niveau LWI-Schema in Quecksilber zu untersuchen wie es von Fry *et al.* [27] vorgeschlagen wurde, in dem es möglich ist durch eine geschickte Anordnung der Kopplungslaser die Dopplerverbreiterung zu kompensieren und so erstmalig LWI im UV-Bereich bei einer Wellenlänge von 253,7 nm zu erreichen.

Für die kohärente Anregung werden Laser bei Wellenlängen von 435,8 nm und 546,1 nm benötigt, womit dieses LWI-System auch einen Gewinn bezüglich der Wellenlänge bietet. Ein detailliertes theoretisches Modell zeigt, dass LWI in Quecksilber auch unter realistischen experimentellen Bedingungen möglich sein sollte [28]. Es werden aber auch hohe Anforderungen an die Kopplungslaser bezüglich ihrer Linienbreiten, Frequenzstabilität und im Falle des 435,8 nm Lasers auch an dessen Leistung gestellt.

Da die Laserstrahlung bei 253,7 nm auch durch Frequenzverdopplung erzeugt werden kann, eignet sich dieses LWI-System ideal, um den Einfluss der Kopplungslaser und ihrer Parameter auf den LWI-Laserübergang zu untersuchen. Darüber hinaus kann mit dem vorhandenen UV-Laser *amplification without inversion* als Vorstufe zu LWI untersucht werden.

Neben dieser Einleitung unterteilt sich diese Arbeit in sechs weitere Kapitel. Im anschließenden zweiten Kapitel wird die Funktionsweise von *lasing without inversion* vorgestellt. Zuerst werden hierfür die dem LWI zugrundeliegenden kohärenten Effekte wie CPT und EIT beschrieben, bevor das Konzept von LWI vorgestellt wird. Anhand bereits erfolgreicher Experimente werden die Grenzen der Umsetzbarkeit erläutert und Lösungsvorschläge durch die Verwendung sogenannter *double-dark states* in vier-Niveau Systemen diskutiert. Danach wird das LWI-System in Quecksilber detailliert analysiert und dessen Eigenschaften mittels Berechnungen mit dem theoretischen Modell untersucht.

Im dritten Kapitel wird der experimentelle Aufbau zur Umsetzung des LWI-Schemas in Quecksilber vorgestellt. Hierbei werden die drei entwickelten Lasersysteme bei 435,8 nm, 546,1 nm und 404,7 nm charakterisiert und die für die Frequenzstabilisierung verwendeten Techniken erläutert. Anschließend wird der Strahlengang des UV-Strahls und die Überlagerung aller Laserstrahlen in einer Ultrahochvakuum-Zelle dargestellt und das Vorgehen bei der Datenaufnahme beschrieben.

Im vierten Kapitel wird die Ultrahochvakuum-Zelle mit angeschlossenem Vakuumsystem inklusive temperaturstabilisiertem Quecksilberreservoir charakterisiert.

Das fünfte Kapitel widmet sich der Linienbreitenmessung der Kopplungslaser. Eingangs werden die Grundlagen der Linienbreitenmessung vorgestellt und ein vorhandenes Modell zur Bestimmung der Linienbreite mit kurzen Verzögerungsstrecken auf die Gültigkeit bei langen Verzögerungszeiten erweitert. Die Linienbreiten der beiden Kopplungslaser werden sowohl für die Fundamentalstrahlung, als auch für die frequenzverdoppelte Strahlung bestimmt und miteinander verglichen. Hierbei zeigt sich, dass sich die Linienbreite bei der Frequenzverdopplung mehr als verdoppeln kann.

Im sechsten Kapitel werden alle Laser in der Zelle überlagert, wodurch erstmalig eine doppelerefreie drei-Photonen Resonanz in Quecksilber gemessen werden konnte. Die Messungen der drei-Photonen Resonanz werden in einem ersten Schritt mit dem theoretischen Modell verglichen. Anschließend werden Parameter der Kopplungslaser wie deren Linienbreite und Verstimmung variiert und der Einfluss auf die Resonanz untersucht. Zuletzt wird ein *amplification without inversion* Schema mit einer inkohärenten Pumpe auf dem 253,7 nm Übergang implementiert. Mit den Ergebnissen dieser Messung ist es schließlich möglich die für Verstärkung notwendigen Parameter abschätzen zu können.

Die Arbeit schließt mit einer Zusammenfassung der vorgestellten Ergebnisse und den daraus gewonnenen Erkenntnissen. In einem Ausblick wird das weitere Potential für die Ausweitung von LWI in den VUV-Bereich diskutiert.

2 Die Grundlagen zu *lasing without inversion*

Die Lasertätigkeit ohne Besetzungsinversion (*lasing without inversion*, kurz LWI) gehört wie auch die elektromagnetisch induzierte Transparenz (*electromagnetically induced transparency*, kurz EIT) und das kohärente Fangen der Besetzung (*coherent population trapping*, kurz CPT) zu den optischen Effekten, die auf einer kohärenten atomaren Anregung beruhen und somit entscheidend von den spektralen Eigenschaften der eingesetzten Lasersysteme abhängen. Da die beiden quantenoptischen Phänomene CPT und EIT sehr nahe mit LWI verwandt sind und als grundlegende Effekte für LWI verstanden werden können, werden diese im folgenden Kapitel zuerst separat vorgestellt. Die Beschreibung erfolgt über die Energieniveaus bzw. Zustandsvektoren, da diese ein anschauliches Bild der zugrundeliegenden Mechanismen bieten. Für eine vollständige Beschreibung, welche z.B. auch noch die Zerfallsraten der Zustände berücksichtigt, ist eine Darstellung mit Dichtematrizen erforderlich [11, 29]. Der anschließende Abschnitt beschreibt das Konzept von LWI und gibt einen Überblick über bereits erfolgreiche Experimente, deren Eigenschaften und Beschränkungen sowie Lösungsansätze durch die Verwendung sogenannter *double-dark states* in vier-Niveau Systemen. Im letzten Teil wird das dieser Arbeit zugrundeliegende LWI-System in Quecksilber und dessen Eigenschaften anhand eines umfangreichen theoretischen Modells vorgestellt.

Da in dieser Arbeit ausschließlich kontinuierlich emittierende Laser (cw-Laser) verwendet wurden, beschränkt sich das folgende Kapitel auf diesen Lasertypus. Weiterhin werden fast ausschließlich gasförmige Medien betrachtet, da hier die Dephasierungsraten und somit die Langlebigkeit der Kohärenzen größer ist als in Festkörpern [30].

2.1 *Coherent population trapping*

Das Fangen von Besetzung in einem sogenannten Dunkelszustand wurde erstmals 1976 von Arimondo *et al.* experimentell beobachtet [31]. Dabei wurden zwei Hyperfeingrundzustände von Natrium auf den $3^2P_{1/2}$ Zustand angeregt und die Fluoreszenz des angeregten Zustandes in Natriumdampf beobachtet. Werden die beiden Übergänge von einem Laser resonant angeregt verschwindet die Fluoreszenz.

Ein ähnliches Experiment wurde 1979 von Alzetta *et al.* ebenfalls in Natriumdampf durchgeführt [32]. Dabei wurde ein Multimoden-Laser eingestrahlt und durch einen Magnetfeldgradienten entlang der Ausbreitungsrichtung des Lasers die Hyperfeinunterzustände so verschoben, dass an einer Stelle zwei der Lasermoden zwei Unterzustände auf den nächsten angeregten Zustand koppeln. An dieser Stelle wird die Fluoreszenz unterdrückt und es

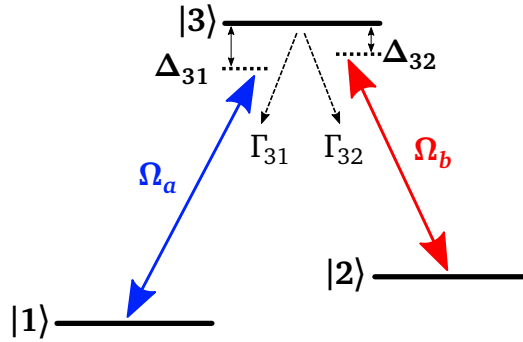


Abbildung 2.1: Niveauschema für CPT mit den Rabi-Frequenzen Ω_a und Ω_b der Anregungslaser sowie deren Verstimmungen Δ_{31} und Δ_{32} . Die Zerfallsraten aus dem angeregten Zustand $|3\rangle$ in die Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ sind durch Γ_{31} und Γ_{32} dargestellt. Abbildung in Anlehnung an [30].

erscheint ein dunkler Streifen entlang der Ausbreitungsrichtung des Lasers.

Das einfachste System, in dem CPT beobachtet werden kann, besteht aus zwei langlebigen Zuständen und einem angeregten Zustand wie in Abb. 2.1 dargestellt [33]. Dies ist ein sogenanntes Λ -System, mit den zwei langlebigen Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$ und einem angeregten Zustand $|3\rangle$ und den jeweiligen Energien $E_{1,2,3} = \hbar\omega_{1,2,3}$. Die energetischen Abstände der Niveaus sind $E_{31} = \hbar\omega_{31}$ und $E_{32} = \hbar\omega_{32}$ mit den Kreisfrequenzen ω_{31} und ω_{32} der Übergänge $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ bzw. $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$. Die Kopplungslaser werden durch ihre Rabi-Frequenzen Ω_a und Ω_b , sowie den Verstimmungen $\Delta_{31} = \omega_a - \omega_{31}$ und $\Delta_{32} = \omega_b - \omega_{32}$ mit den Kreisfrequenzen der Laser ω_a und ω_b beschrieben. Die Rabi-Frequenzen sind definiert als $\Omega_a = \mu_{31}E_a/\hbar$ und $\Omega_b = \mu_{32}E_b/\hbar$ mit den Übergangsdipolmomenten μ_{31} und μ_{32} und den Laserfeldern E_a und E_b . Der Übergang von $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$ ist hierbei dipol-verboten.

Um zu verstehen wie die beiden Laserfelder in diesem Λ -System einen Dunkelzustand präparieren können, ist eine mathematische Betrachtungsweise notwendig. Dabei wird im Folgenden das atomare System voll quantenmechanisch behandelt und die beiden Laserfelder klassisch [10, 26, 29, 34]. Der Hamiltonian des Gesamtsystems H setzt sich aus zwei Teilen zusammen:

$$H = H_0 + H_1 \quad (2.1)$$

mit H_0 dem Hamiltonian des ungestörten atomaren Systems und H_1 dem Hamiltonian der Kopplungsfelder

$$H_0 = -\hbar\omega_{31} |1\rangle \langle 1| - \hbar\omega_{32} |2\rangle \langle 2| \quad (2.2)$$

$$H_1 = \frac{\hbar}{2} \left[\Omega_a e^{-i(\omega_a t + \phi_a)} |3\rangle \langle 1| + \Omega_b e^{-i(\omega_b t + \phi_b)} |3\rangle \langle 2| \right] + c.c. \quad (2.3)$$

wobei ϕ_a und ϕ_b die Phasen der beiden Laserfelder darstellen. Während für das ungestörte atomare System H_0 die drei Zustände $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$ eine vollständige Basis darstellen, muss für das System H unter dem Einfluss der Laserfelder eine neue Basis gefunden werden, die es vollständig beschreibt [26]. Eine mögliche Basis ergibt sich aus der Kombination der beiden langlebigen Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ zu

$$|NK\rangle = \frac{1}{\Omega'} (\Omega_a e^{i\omega_{31}t} |1\rangle - \Omega_b e^{i(\omega_{32}t - \phi_a + \phi_b)} |2\rangle) \quad (2.4)$$

$$|K\rangle = \frac{1}{\Omega'} (\Omega_b e^{i(\omega_{31}t - \phi_a + \phi_b)} |1\rangle + \Omega_a e^{i\omega_{32}t} |2\rangle) \quad (2.5)$$

mit $\Omega' = \sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}$. Diese Basis besteht somit aus den drei orthogonalen Zuständen $\{|NK\rangle, |K\rangle, |3\rangle\}$ und wird als CPT-Basis bezeichnet [10]. Werden beide Laser resonant für den zwei-Photonen Übergang eingestrahlt (dies wird auch Raman-Übergang genannt [10]) und erfüllen somit die Bedingung $\Delta_{31} = \Delta_{32}$ und haben zusätzlich eine stabile Phasenbeziehung so dass $\phi_a = \phi_b$ erfüllt ist, dann gilt für die Kopplung mit dem angeregten Zustand

$$|\langle 3|H_1|NK\rangle| = 0 \quad (2.6)$$

$$|\langle 3|H_1|K\rangle| = \frac{\hbar}{2}\Omega'. \quad (2.7)$$

Wie sich zeigt, koppelt im Falle der zwei-Photonen Resonanz der Zustand $|NK\rangle$ nicht an den angeregten Zustand $|3\rangle$ und wird deshalb auch als Dunkelzustand (*dark-state*) bezeichnet. Während der Zustand $|K\rangle$ weiterhin nach $|3\rangle$ koppelt und als heller Zustand (*bright-state*) bezeichnet wird. Anschaulich bedeutet dies, dass Besetzung im Zustand $|NK\rangle$ „gefangen“ wird und auch nicht mehr angeregt werden kann. Ist die Phasenbeziehung zwischen ϕ_a und ϕ_b nicht stabil, kann sich der Dunkelzustand nicht gänzlich ausbilden. Daran ist zu erkennen, dass eine kohärente Anregung nötig ist [35].

Bisher wurden die Zerfallsraten Γ_{31} und Γ_{32} vom angeregten Zustand nicht berücksichtigt. Da diese Zerfallsraten die spontane Emission und somit die Fluoreszenz darstellen, spielen diese gerade im Hinblick auf die experimentellen Beobachtungen im Zusammenhang mit CPT eine entscheidende Rolle. Bei dem eingangs erwähnten Experiment von Alzetta et al. [32] wird CPT durch ein Ausbleiben der Fluoreszenz im Fall der zwei-Photonen Resonanz sichtbar. Unabhängig von der anfänglichen Verteilung der Besetzung in den Zuständen $|NK\rangle$ und $|K\rangle$, sammelt sich die gesamte Besetzung durch den spontanen Zerfall vom angeregten Zustand in $|NK\rangle$, die Fluoreszenz wird unterdrückt.

Hier wird ein entscheidender Unterschied zur elektromagnetisch induzierten Transparenz deutlich, da bei CPT die Besetzung erst in den Dunkelzustand gepumpt werden muss und dieser Vorgang in der Zeitskala der Zerfallsraten stattfindet, während EIT ein instantaner Prozess ist [9, 29].

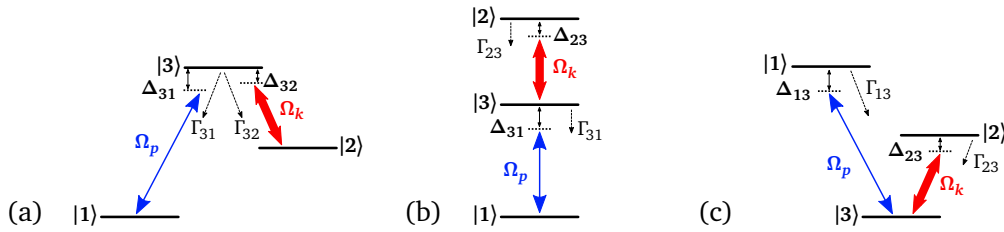


Abbildung 2.2: Drei mögliche drei-Niveau Systeme in denen elektromagnetisch induzierte Transparenz beobachtet werden kann: (a) Λ -System, (b) Leiter-System und (c) V-System. Mit den Rabi-Frequenzen der Laser Ω , der Verstimnungen der Laser Δ und den Zerfallsraten der angeregten Zustände Γ . Die Übergänge von $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$ sind jeweils dipolverboten.

2.2 Elektromagnetisch induzierte Transparenz

Der Begriff „elektromagnetisch induzierte Transparenz“ wurde 1990 von Harris *et al.* [36] geprägt und beschreibt, wie ein zuvor absorbierendes Medium durch Einstrahlen eines Kopplungslasers für einen Probenlaser transparent wird. EIT wurde erstmals 1991 von Boller *et al.* [37] in Strontiumdampf anhand eines Λ -Systems gezeigt.

Die elektromagnetisch induzierte Transparenz ist sehr nahe mit dem kohärenten Fangen von Besetzung wie es im Abschnitt 2.1 beschrieben wird verwandt. Die beiden Begriffe werden in der Literatur teilweise als austauschbar verwendet, sollten aber strikt unterschieden werden [38]. Während bei CPT die Rabi-Frequenzen der beiden Laserfelder möglichst identisch sind, wird bei EIT ein schwacher Probenlaser mit der Rabi-Frequenz Ω_p und ein starker Kopplungslaser mit der Rabi-Frequenz Ω_k verwendet so das $\Omega_k \gg \Omega_p$ gilt. Weiterhin ist bei CPT die anfängliche Verteilung der Besetzung in den Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$ (entsprechend Abb. 2.1) meist nicht relevant. Bei EIT ist die Besetzung anfänglich komplett in Zustand $|1\rangle$ und verbleibt, aufgrund des schwachen Probenlasers, auch dort. Zudem ist EIT auch in sogenannten Leiter- und V-Systemen mit nur einem langlebigen Grundzustand möglich. In Abb. 2.2 sind die verschiedenen drei-Niveau Systeme zu sehen, in denen EIT möglich ist.

Erklären lässt sich EIT durch die Interferenz zweier möglicher Anregungswege mit dem gleichen Endzustand [9, 30]. Im Falle der quantenmechanischen Natur der atomaren Zustände wird hierbei auch gerne von Quanteninterferenz gesprochen. Anschaulich gibt es im Λ -System aus Abb. 2.2 (a) zwei Möglichkeiten durch Absorption vom Grundzustand $|1\rangle$ zum angeregten Zustand $|3\rangle$ zu kommen. Der erste Weg führt direkt durch den Probenlaser von Zustand $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$, der zweite Weg ergibt sich durch den Probenlaser und den Kopplungslaser zu $|1\rangle \rightarrow |3\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow |3\rangle$. Aufgrund des starken Kopplungslasers und des schwachen Probenlasers mit den Rabi-Frequenzen $\Omega_k \gg \Omega_p$ besitzen beide Anregungswege bei resonanten Laserfeldern die gleiche Wahrscheinlichkeitsamplitude, jedoch mit umgekehrten Vorzeichen, die Gesamtwahrscheinlichkeit ist somit Null [30].

Eine allgemeinere Betrachtungsweise führt über die Einführung der sogenannten *dressed-states*. Durch den starken Kopplungslaser, beschrieben durch den Hamiltonian H_1 , kann das atomare System, welches durch den Hamiltonian H_0 beschrieben wird, nicht mehr als ungestört angenommen werden. Vielmehr findet eine Modifikation der atomaren Zustände statt. Analog zu Abschnitt 2.1 wird der Hamiltonian des Gesamtsystems

$$H = H_0 + H_1 \quad (2.8)$$

betrachtet, der zusätzlich die Laserfelder berücksichtigt, die durch ihre Rabi-Frequenzen Ω_p und Ω_k und deren Verstimmungen beschrieben werden. Um den Hamiltonian H möglichst übersichtlich darstellen zu können, wird an dieser Stelle die *rotating wave approximation* (RWA) angewendet. Bei der RWA wird ein Bezugssystem eingeführt, das sich mit den schnellen Trägerfrequenzen der Laser bewegt, so dass diese Anteile eliminiert werden können und nur die im Vergleich langsamen Anteile wie die Rabi-Frequenzen übrig bleiben [39, 40]. Eine weitere Vereinfachung ergibt sich durch das Verschieben der Nullpunktenergie im betrachteten System, so dass das Niveau $|1\rangle$ dem energetischen Nullpunkt entspricht.

Entsprechend des Λ -Systems aus Abb. 2.2 (a) nimmt der Hamiltonian des Gesamtsystems mit diesen Vereinfachungen die folgende Form an [30]

$$H = -\frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & \Omega_p \\ 0 & -2(\Delta_{31} - \Delta_{32}) & \Omega_k \\ \Omega_p & \Omega_k & -2\Delta_{31} \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

wobei Δ_{31} und Δ_{32} die Verstimmungen des Probenlasers, respektive des Kopplungslasers darstellen.

Damit die Anschaulichkeit gewahrt bleibt, wird im Folgenden angenommen, dass die Verstimmungen der beiden Laser gleich sind ($\Delta_{31} = \Delta_{32} \equiv \Delta$). Dies entspricht der zwei-Photonen Resonanz.

Durch die Einführung sogenannter Mischungswinkel [41] ist es möglich eine neue und orthogonale Basis für den Hamiltonian H zu finden, die aus den Basisvektoren des ungestörten atomaren Systems besteht. Diese Mischungswinkel sind wie folgt definiert [30, 42]

$$\tan \Phi = \frac{\Omega_p}{\Omega_k} \quad (2.10)$$

$$\tan 2\phi = \frac{\sqrt{\Omega_p^2 + \Omega_k^2}}{\Delta}. \quad (2.11)$$

Damit ergeben sich die drei neuen Basisvektoren

$$|0\rangle = \cos \Phi |1\rangle - \sin \Phi |2\rangle \quad (2.12)$$

$$|+\rangle = \sin \Phi \sin \phi |1\rangle + \cos \phi |3\rangle + \cos \Phi \sin \phi |2\rangle \quad (2.13)$$

$$|-\rangle = \sin \Phi \cos \phi |1\rangle - \sin \phi |3\rangle + \cos \Phi \cos \phi |2\rangle \quad (2.14)$$

und entsprechend die Eigenwerte von H

$$\hbar\omega_0 = 0 \quad (2.15)$$

$$\hbar\omega_{\pm} = \frac{\hbar}{2}(\Delta \pm \sqrt{\Delta^2 + \Omega_p^2 + \Omega_k^2}). \quad (2.16)$$

An dieser Stelle ist schon zu sehen, dass der Zustand $|0\rangle$ nicht mehr an den ungestörten Zustand $|3\rangle$ koppelt ($\langle 3|0\rangle = 0$). Die beiden Zustände $|\pm\rangle$ sind die sogenannten *dressed-states* [40].

Wie anfänglich beschrieben, wird bei EIT ein schwacher Probenlaser und starker Kopplungslaser verwendet, so dass $\Omega_k \gg \Omega_p$ und daraus folgend

$$\sin \Phi \rightarrow 0 \text{ und } \cos \Phi \rightarrow 1 \quad (2.17)$$

gilt.

Außerdem kann die Verstimmung Δ auf Null gesetzt werden, so dass beide Laser resonant auf die jeweiligen Übergänge sind ($\hbar\omega_{31} = \hbar\omega_p$ und $\hbar\omega_{32} = \hbar\omega_k$). Dies entspricht einem Mischungswinkel $\phi = \pi/4$ [41]. Somit ergeben sich für die neuen Zustände

$$|0\rangle = |1\rangle \quad (2.18)$$

$$|+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|2\rangle + |3\rangle) \quad (2.19)$$

$$|-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|2\rangle - |3\rangle) \quad (2.20)$$

und für die Eigenwerte

$$\hbar\omega_0 = 0 \quad (2.21)$$

$$\hbar\omega_{\pm} = \pm \frac{\hbar}{2}\Omega_k. \quad (2.22)$$

Unter diesen Bedingungen entspricht der Zustand $|0\rangle$ in der *dressed-state* Basis dem ungestörten Zustand $|1\rangle$ mit dem zugehörigen Eigenwert $\hbar\omega_0 = 0$, was der zuvor definierten Nullpunktsenergie entspricht. Die beiden *dressed-states* $|\pm\rangle$ sind eine Mischung der beiden angeregten Zustände $|2\rangle$ und $|3\rangle$ und energetisch um die Rabi-Frequenz des Kopplungslasers $\hbar\Omega_k$ verschoben. Dies entspricht der klassischen Autler-Townes Aufspaltung [36].

Ein Vergleich des Λ -Systems in der ungestörten Basis aus Abb. 2.2 (a) und in der *dressed-state*

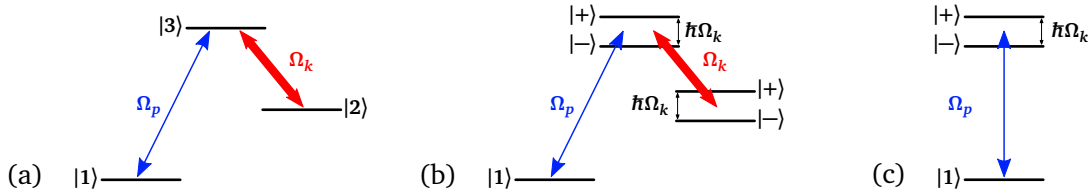


Abbildung 2.3: (a) Λ -System in der Basis der ungestörten Zustände mit schwachem Probenlaser und starkem Kopplungslaser. (b) Λ -System mit separater Betrachtung des durch den Kopplungslaser stark gekoppelten Teilsystems aus $|2\rangle$ und $|3\rangle$ im *dressed-state* Bild. (c) Λ -System im *dressed-state* Bild.

Basis ist in Abb. 2.3 zu sehen. Dabei kann noch unterschieden werden, ob das Teilsystem aus den Zuständen $|2\rangle$ und $|3\rangle$ separat betrachtet wird, wie in Abb. 2.3 (b), oder üblicher als Gesamtsystem, Abb. 2.3 (c).

Die elektromagnetisch induzierte Transparenz kann in diesem Bild als die destruktive Interferenz der beiden *dressed-states* angesehen werden, dies wird auch als Fano-Interferenz bezeichnet [29, 36, 37, 43].

Die vorangegangene vereinfachte mathematische Betrachtung für das Λ -System ist auch auf das Leitersystem und das V -System anwendbar und führt in allen drei Fällen zu elektromagnetisch induzierter Transparenz [44]. In dieser Betrachtung wurden die Zerfallsraten der angeregten Zustände und mögliche Zeemanaufspaltungen der beteiligten Niveaus nicht berücksichtigt. In realen Atomen sind zudem meist keine isolierten drei-Niveau Systeme vorzufinden, so dass zusätzlich noch Wechselwirkungen mit benachbarten Zuständen eine Rolle spielen.

Zieht man diese Erweiterungen in Betracht, gibt es doch bedeutende Unterschiede zwischen den drei EIT-Systemen [44]. Da im Λ -System mit dem metastabilen Zustand $|2\rangle$ die Dephasierungsrate zurück in den Zustand $|1\rangle$ am geringsten ist sollte hier der EIT-Effekt am ausgeprägtesten sein. Allerdings kann für das Λ - und V -System optisches Pumpen von Besetzung EIT überdecken, wenn der Kopplungslaser auf einen Grundzustand koppelt. Das Leitersystem erweist sich demnach für die experimentelle Beobachtung am robustesten [44].

2.3 Lasing without inversion - Ein Überblick

2.3.1 Das Konzept hinter LWI

Nach Einstein gibt es für die Interaktion zwischen Atomen und Photonen drei mögliche Prozesse: Absorption, stimulierte Emission und spontane Emission [45]. Diese Prozesse werden, unter der Annahme eines Grundzustands 1 und angeregten Zustands 2, durch die Einsteinkoeffizienten B_{12} , B_{21} und A_{21} beschrieben. Diese Koeffizienten stellen die Wahr-

scheinlichkeit W für die drei Prozesse dar, die sich mit der spektralen Energiedichte ρ_ν zu

$$W_{\text{abs.}} = B_{12} \cdot \rho_\nu \quad (2.23)$$

$$W_{\text{stim. Em.}} = B_{21} \cdot \rho_\nu \quad (2.24)$$

$$W_{\text{spon. Em.}} = A_{21} \cdot \quad (2.25)$$

berechnen lassen, wobei der Index ν für die Strahlungsfrequenz steht [4]. Weiterhin lassen sich mit den Besetzungszahlen N_1 und N_2 der betrachteten Zustände die Übergangsraten bestimmen [2]:

$$\left(\frac{dN_1}{dt} \right)_{\text{abs.}} = -B_{12} \cdot N_1 \cdot \rho_\nu \quad (2.26)$$

$$\left(\frac{dN_2}{dt} \right)_{\text{stim. Em.}} = -B_{21} \cdot N_2 \cdot \rho_\nu \quad (2.27)$$

$$\left(\frac{dN_2}{dt} \right)_{\text{spon. Em.}} = -A_{21} \cdot N_2 \quad (2.28)$$

Es lässt sich zeigen, dass unter der Berücksichtigung der Boltzmann-Verteilung für die thermische Besetzung der beiden betrachteten Zustände und gleichzeitig der Planckschen Strahlungsformel für die spektrale Energiedichte ρ_ν und deren Gültigkeit für alle Temperaturen und Frequenzen

$$B_{12} = B_{21} = B \quad (2.29)$$

gelten muss [2, 4]. Das führt dazu, dass die Wahrscheinlichkeiten für die Absorption eines Photons im Grundzustand gleich der Wahrscheinlichkeit der stimulierten Emission eines Photons im angeregten Zustand ist. Entsprechend sind die Übergangsraten bei gleicher Besetzungsverteilung $N_1 = N_2$ auch identisch.

Im Hinblick auf den Bau eines Lasers sagt dies nichts anderes aus, als dass für die Verstärkung von Licht eine Besetzungsinversion $N_2 > N_1$ notwendig ist, diese aber gleichzeitig in einem zwei-Niveau System nicht erzeugt werden kann. Aus diesem Grund werden bei herkömmlichen Lasern mindestens drei-Niveau Systeme, wie z.B. in Rubin anzutreffen, oder auch vier-Niveau Systeme, wie z.B. bei Titan:Saphir-Lasern, verwendet.

In Abb. 2.4 ist ein drei-Niveau Lasersystem zu sehen. Das Niveau $|3\rangle$ sollte möglichst kurzlebig sein und das obere Laserniveau $|2\rangle$ metastabil, damit sich dort Besetzung sammeln kann. Die Photonen der Pumpe müssen entsprechend eine kürzere Wellenlänge besitzen als der Laserübergang.

Die wichtigste Größe ist jedoch die Pumpleistung die benötigt wird um überhaupt eine

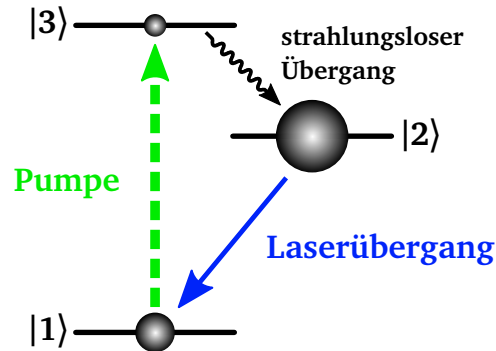


Abbildung 2.4: Ein drei-Niveau Lasersystem, ähnlich dem ersten Rubin-Laser [2]. Die inkohärente Pumpe regt Atome aus dem Grundniveau $|1\rangle$ an. Vom kurzlebigen Niveau $|3\rangle$ erfolgt ein strahlungsloser Übergang auf das metastabile Niveau $|2\rangle$, das dem oberen Laserniveau entspricht. Die Größe der schwarzen Kugeln stellt die Besetzung im jeweiligen Niveau dar. Es liegt eine Besetzungsinversion zwischen den Niveaus $|2\rangle$ und $|1\rangle$ vor.

Besetzungsinversion erzeugen zu können. Eine untere Grenze für die Schwelle der für eine Besetzungsinversion nötigen Pumpleistungsdichte $P_{p,\text{th}}/V$, kann nach [1] zu

$$\frac{P_{p,\text{th}}}{V} = \frac{1}{\eta_p} \cdot \frac{N_{2,\text{th}}}{\Delta N_{\text{th}}} \cdot \frac{\omega_p}{\omega_a} \cdot \frac{\gamma_2}{\gamma_{\text{rad}}} \cdot \frac{4\pi^2}{3} \cdot \frac{\hbar\Delta\omega_a}{\lambda_l^3} \cdot \frac{c\delta_c}{p_m} \quad (2.30)$$

abgeschätzt werden. Dabei haben die einzelnen Faktoren folgende Bedeutung:

- $\frac{1}{\eta_p}$: Pumpeffizienz
- $\frac{N_{2,\text{th}}}{\Delta N_{\text{th}}}$: Verhältnis der für Lasertätigkeit notwendigen Besetzungen. $N_{2,\text{th}}$ ist dabei die notwendige Besetzung im oberen Laserniveau und ΔN_{th} der Besetzungsunterschied vom oberen zum unteren Laserniveau (falls das untere Niveau ungleich dem Grundzustand ist, z. B. bei einem vier-Niveau System)
- $\frac{\omega_p}{\omega_a}$: Verhältnis der Kreisfrequenzen des atomaren Pumpübergangs ω_p und atomaren Laserübergangs ω_a
- $\frac{\gamma_2}{\gamma_{\text{rad}}}$: Verhältnis der gesamten Zerfallsrate γ_2 des oberen Laserniveaus in alle Niveaus mit möglichen Übergängen zum Anteil der Zerfallsrate γ_{rad} des oberen Laserniveaus in das untere Laserniveau
- $\frac{\hbar\Delta\omega_a}{\lambda_l^3}$: Verhältnis der Linienbreite des atomaren Laserübergangs $\Delta\omega_a$ zu der Laserwellenlänge λ_l
- $\frac{c\delta_c}{p_m}$: Verhältnis von der Resonatorgüte δ_c zur Länge des aktiven Lasermediums p_m

Am interessantesten ist dabei der Faktor $\hbar\Delta\omega_a/\lambda_l^3$, denn dieser besagt, dass

$$\frac{P_{p,\text{th}}}{V} \propto \omega_l^3 \quad (2.31)$$

ist, bzw. für dopplerverbreiterte Lasermedien sogar $\propto \omega_l^4$ [1]. Die für eine Besetzungsinversion notwendige Pumpleistung steigt also mit der Laserfrequenz zur vierten Potenz an [10]. Je kürzer die erzeugte Laserwellenlänge ist, desto mehr Leistung muss im Lasermedium deponiert werden, um die für einen Laserbetrieb notwendige Besetzungsinversion zu erzeugen. Genau diese Voraussetzung ist die größte Hürde in der Entwicklung direkter, kurzwelliger und kontinuierlich strahlender Lasersysteme [8, 10, 11]. Der Begriff „direkt“ heißt in diesem Zusammenhang, dass keine Laserstrahlung bei längeren Wellenlängen erzeugt und anschließend konvertiert wird, wie es z.B. durch die Frequenzverdopplung möglich ist.

In ein Lasermedium kann alleine schon aufgrund der geometrischen Einschränkungen nicht beliebig viel Leistung deponiert werden. Weiterhin besitzt auch das Lasermedium selbst eine Zerstörschwelle bezüglich der Pumpleistungsdichte, was z.B. sehr deutlich bei Halbleiterlasern zu beobachten ist, die mit kürzerer Wellenlänge eine deutlich größere Stromdichte benötigen [46]. Diese und weitere Limitierungen, wie z.B. das Fehlen geeigneter Resonatorspiegel, machen die Entwicklung von kontinuierlichen Lasern im tiefen UV Bereich und vor allem im Röntgenbereich extrem schwierig [1, 10, 27].

Was aber wäre wenn die Symmetrie zwischen der Absorption und der stimulierten Emission $B_{12} = B_{21}$ für kohärente Laserstrahlung gebrochen werden könnte? Am besten so stark, dass ähnlich wie bei der elektromagnetisch induzierten Transparenz aus Abschnitt 2.2 deren Absorption fast gänzlich verhindert werden kann [10]. Die durch stimulierte Emission erzeugten Photonen könnten ungehindert durch das Lasermedium propagieren und sämtliche Besetzung im oberen Laserniveau wiederum durch stimulierte Emission abregen, ohne dass notwendigerweise eine Besetzungsinversion besteht.

Genau dies ist der Grundgedanke hinter *lasing without inversion*, dessen Konzept bereits 1989 fast zeitgleich von Kocharovskaya *et al.* [19], Scully *et al.* [20], Harris [7] und Imamoğlu [21] entwickelt wurde. Dabei basiert die Idee von Kocharovskaya und Scully auf CPT, während Harris und Imamoğlu die Idee auf Basis von EIT entwickelten.

Kurz darauf erfolgten auch die ersten experimentellen Umsetzungen [11, 47], wenn auch zuerst nur mit gepulsten Lasern wie von Nottelmann *et al.* in Samarium [48] und van der Veer *et al.* in Kadmium [49]. Bei diesen Experimenten wird eher von Verstärkung ohne Besetzungsinversion (*amplification without inversion*, kurz AWI) gesprochen, da ein Laserpuls, der durch ein Medium propagiert, das keine Besetzungsinversion aufweist, verstärkt wird. Ein weiteres Experiment im gleichen Zeitraum stammt von Fry *et al.* [50] bei der die Kohärenzen in Natrium zwar durch kontinuierlich strahlende Laser aufgebaut werden, die Verstärkung aber zeitlich beschränkt ist und deshalb als vorübergehende Verstärkung ohne Besetzungsinversion bezeichnet wird.

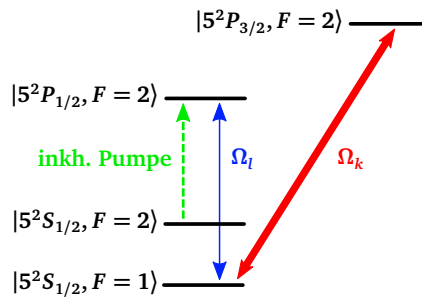


Abbildung 2.5: Niveau Schema des LWI-Experiments in Rubidium, nach [22]. Ω_k entspricht der Rabi-Frequenz des Kopplungslasers und Ω_l der Rabi-Frequenz des LWI-Laserübergangs.

Wie bereits erwähnt liegt in dieser Arbeit das Hauptaugenmerk auf kontinuierlich strahlenden Lasern, weshalb in der folgenden Beschreibung konkreter LWI-Systeme auch nur auf diese eingegangen wird.

2.3.2 Drei-Niveau LWI-Systeme

In atomaren drei-Niveau Systemen wurden bereits erfolgreich zwei LWI-Experimente mit cw-Lasern durchgeführt. Das erste Experiment von Zibrov *et al.* [22] fand in einem V-System in Rubidium statt, das in Abbildung 2.5 dargestellt ist. Die Wellenlänge des Kopplungslasers Ω_k beträgt dabei 780 nm die des LWI-Laserübergangs Ω_l 794 nm. Als inkohärente Pumpe wurde ein auf 50 MHz spektral verbreiteter Laser verwendet. Da die beteiligten Wellenlängen dicht beieinander liegen, ist der zwei-Photonen Übergang in diesem System quasi dopplerfrei, wenn die Laserstrahlen alle in die gleiche Richtung propagieren [22, 44]. Aus diesem Grund kann für dieses Experiment auch eine einfache Rubidiumdampfzelle als Medium benutzt werden.

Der $|5^2S_{1/2}\rangle$ Grundzustand besitzt zwei Hyperfeinstrukturzustände. Damit sich nicht alle Besetzung durch den starken Kopplungslaser und spontaner Emission aus dem $|5^2P_{3/2}, F=2\rangle$ Zustand im $F=2$ Grundzustand sammelt, wird die inkohärente Pumpe resonant auf den $|5^2S_{1/2}, F=2\rangle \rightarrow |5^2P_{1/2}, F=2\rangle$ Übergang eingestrahlt.

Ein Probenlaser bei 794 nm wurde zunächst eingesetzt, um durch den Kopplungslaser induziertes EIT und zusammen mit der inkohärenten Pumpe auch AWI zu messen. Durch die Installation eines Ring-Resonators um die Dampfzelle konnte auch LWI auf dem $|5^2S_{1/2}, F=1\rangle \leftrightarrow |5^2P_{1/2}, F=2\rangle$ Übergang nachgewiesen werden.

In diesem V-System basiert LWI auf der Grundlage von elektromagnetisch induzierter Transparenz. Die Absorption für kohärente Strahlung auf dem $|5^2S_{1/2}, F=1\rangle \leftrightarrow |5^2P_{1/2}, F=2\rangle$ LWI-Laserübergang wird durch die destruktive Interferenz zweier Anregungswege hervorgerufen [22]. Dabei findet durch den starken Kopplungslaser eine Symmetriebrechung zwischen den Einstein B Koeffizienten für ein- und zwei-Photonen Übergänge statt [10].

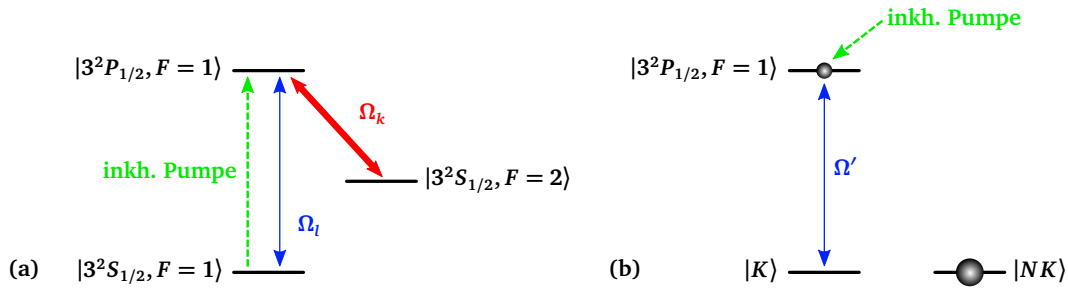


Abbildung 2.6: (a) Niveauschema des LWI-Experiments in Natrium, nach [23]. Ω_k entspricht der Rabi-Frequenz des Kopplungslasers und Ω_l der Rabi-Frequenz des LWI-Laserübergangs. (b) Das gleich Niveauschema in der CPT-Basis, nach [10]. $|NK\rangle$ entspricht dem Dunkelzustand und $|K\rangle$ dem hellen Zustand. In dieser Basis besitzt der LWI-Übergang die Rabi-Frequenz $\Omega' = \sqrt{\Omega_k^2 + \Omega_l^2}$. Die Besetzung der Zustände ist durch die Kugeln angedeutet. Eine größere Kugel entspricht mehr Besetzung im jeweiligen Niveau.

Das zweite LWI-Experiment mit cw-Lasern wurde von Padmabandu *et al.* [23] in Natrium durchgeführt. Die verwendete Niveaustuktur ist in Abbildung 2.6 (a) dargestellt und entspricht einem Λ -System.

Die Wellenlängen des Kopplungslasers Ω_k und des LWI-Laserübergangs Ω_l liegen bei 589,8 nm und sind nur durch die Hyperfeinaufspaltung des $|3^2S_{1/2}\rangle$ Grundzustandes von 1,77 GHz voneinander getrennt. Als inkohärente Pumpe dient ein auf 40 MHz spektral verbreiteter Laser. Durch die geringe Frequenzverstimmung zwischen Kopplungslaser und LWI-Laserübergang ist diese Konfiguration als dopplerfrei anzusehen. Dennoch wurde als Medium ein Natrium Atomstrahl verwendet, der die Dopplerbreite der Natriumatome auf 60 MHz reduziert.

Auch in diesem Experiment konnte zunächst durch einen Probenlaser, eine durch den Kopplungslaser Ω_k induzierte Transparenz auf dem $|3^2S_{1/2}, F=1\rangle \leftrightarrow |3^2P_{1/2}, F=1\rangle$ Übergang nachgewiesen werden. Durch die inkohärente Pumpe konnte die Transparenz in Verstärkung gewandelt werden (AWI). Ein Ring-Resonator, installiert um den Atomstrahl, machte schließlich den Nachweis von LWI auf dem $|3^2S_{1/2}, F=1\rangle \leftrightarrow |3^2P_{1/2}, F=1\rangle$ Übergang möglich.

Anders als im V-System in Rubidium lässt sich das Auftreten von LWI in diesem Λ -System auf *coherent population trapping* zurückführen [8, 10]. Das Natrium-Schema ist in Abbildung 2.6 (b) in der CPT-Basis mit dem Dunkelzustand $|NK\rangle$ und dem hellen Zustand $|K\rangle$ dargestellt. Hier zeigt sich ein Unterscheidungsmerkmal von LWI-Systemen. In der CPT-Basis kann tatsächlich eine Besetzungsinversion auf dem neuen LWI-Übergang Ω' auftreten. Dies wird als LWI mit versteckter Besetzungsinversion (*LWI with hidden inversion*) bezeichnet. Für den eigentlichen LWI-Effekt ist dies nebensächlich, da diese Inversion nur bei einer Basistransformation sichtbar wird und in der Basis des atomaren Systems auf dem LWI-Übergang nicht vorhanden ist. Da aber auch das in dieser Arbeit untersuchte LWI-System in Quecksilber eine solche versteckte Besetzungsinversion aufweist, wurde der Begriff an dieser Stelle kurz eingeführt.

Es sei noch angemerkt, dass in der CPT-Basis nicht zwingend eine versteckte Besetzungsinversion auftritt. Durch die inkohärente Pumpe kann sich Besetzung auch im $|K\rangle$ Zustand sammeln, so dass in diesem mehr Besetzung als im angeregten LWI-Übergang vorhanden ist [8, 23].

Drei-Niveau LWI-Systeme weisen allerdings eine entscheidende Limitierung auf. Die effektiv verbleibende Dopplerverbreiterung $\Delta_{D,eff}$ steigt mit der Differenz der beiden Wellenlängen von Kopplungslaser und LWI-Übergang an [44, 51]. Dies hat zur Folge, dass der kohärente Effekt im dopplerverbreiterten Medium auswischt und somit auch kein LWI mehr möglich ist sobald $\Delta_{D,eff} > \Omega_k$ ist [8, 27, 30].

Die beiden vorgestellten LWI-Experimente haben gemeinsam, dass die Wellenlängen von Kopplungslaser und LWI-Übergang sehr nahe beieinander liegen. Jedoch ist es eines der Ziele von LWI weiter in den Bereich extrem kurzer Wellenlängen < 200 nm vorzudringen, wobei für den Kopplungslaser konventionelle Techniken eingesetzt werden sollen. Dies bedingt an sich eine große Differenz zwischen den beiden Wellenlängen. Es muss also ein Weg gefunden werden, die Dopplerverbreiterung zu kompensieren.

Ein Ansatz ist die Verwendung eines Atomstrahls wie er in dem Natrium-Experiment [23] eingesetzt wurde. Der Atomstrahl ist für das Natrium-Experiment nicht zwingend nötig, da der Wellenlängenunterschied mit 1,77 GHz sehr klein ausfällt, es wurde aber gezeigt, dass LWI auch in einem Atomstrahl möglich ist. Nachteilig hierbei ist die Komplexität des experimentellen Aufbaus und die geringe atomare Dichte im Atomstrahl.

Eine weitere Möglichkeit besteht darin die Leistung des Kopplungslasers so weit zu vergrößern, dass dessen Rabi-Frequenz Ω_k in der Größenordnung der effektiven Dopplerbreite $\Delta_{D,eff}$ liegt. Allerdings sinkt mit steigendem Ω_k auch die Verstärkung im LWI-Übergang [8]. In dieser Arbeit wird ein anderer Ansatz verfolgt das Problem der Dopplerverbreiterung zu umgehen. Dieser wird im folgenden Abschnitt vorgestellt.

2.3.3 Vier-Niveau LWI-Systeme

Grundsätzlich führt eine Störung eines kohärent angeregten EIT-Systems oder Dunkelzustands, wie in Abschnitt 2.1 und 2.2 vorgestellt, durch das Auftreten von Dekohärenzen zu einem Abschwächen der kohärenten Effekte [52, 53]. Dennoch ist es möglich ein kohärent gekoppeltes drei-Niveau System durch einen zusätzlichen, schwachen Laser kohärent an ein viertes Niveau zu koppeln. Durch diese gezielte Störung kann es zu einer Aufspaltung des Dunkelzustands kommen, den sogenannten *interacting dark resonances* bzw. *double-dark states* (kurz, DDKS) [53–55]. Diese DDKS führen zu sehr schmalen spektralen Merkmalen unterhalb der Dopplerbreite, die sich durch den zweiten Kopplungslaser beeinflussen lassen.

Ein solches vier-Niveau System ist in Abbildung 2.7 (a) dargestellt. Die Niveaus $|1\rangle$, $|2\rangle$ und $|3\rangle$ entsprechen einem EIT-Leitersystem, bei dem der Übergang $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ kohärent durch einen starken Laser mit der Rabi-Frequenz Ω_s gekoppelt wird. Das Niveau $|3\rangle$ wird zusätzlich durch einen schwachen Kopplungslaser mit Ω_w auf das metastabile vierte Niveau

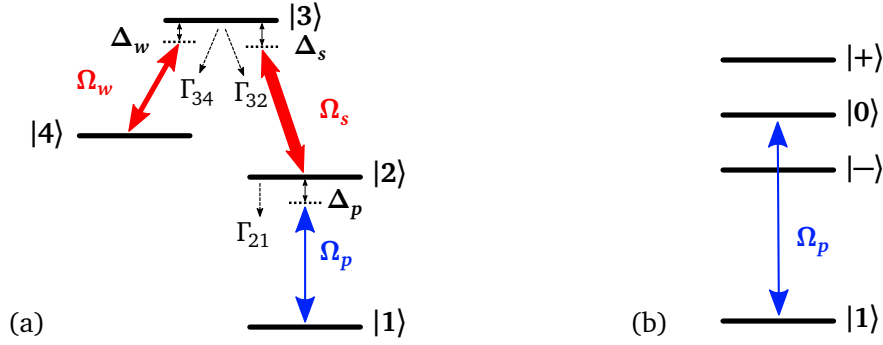


Abbildung 2.7: (a) Vier-Niveau System mit dem LWI-Laserübergang Ω_p , dem starken Kopplungslaser Ω_s und dem schwachen Kopplungslaser Ω_w sowie den Zerfallsraten Γ und Verstimmungen Δ . (b) Das vier-Niveau System in der *dressed-state* Basis.

$|4\rangle$ gekoppelt. Für den Hamiltonian dieses Systems ergibt sich in der Basis des atomaren Systems $\{|2\rangle, |1\rangle, |3\rangle, |4\rangle\}$ mit Dipolnäherung und RWA [28]

$$H = -\hbar \begin{pmatrix} 0 & \Omega_p^* & \Omega_s & 0 \\ \Omega_p & -\Delta_p & 0 & 0 \\ \Omega_s^* & 0 & \Delta_s & \Omega_w^* \\ 0 & 0 & \Omega_w & \Delta_s - \Delta_w \end{pmatrix} \quad (2.32)$$

wobei $\Delta_{p,s,w}$ den Verstimmungen der Laser zum jeweiligen atomaren Übergang entsprechen. Die Besonderheit dieses Systems ist am besten in der *dressed-state* Basis zu erkennen. Dafür wird die Matrix aus Gleichung (2.32) diagonalisiert und die neuen Eigenzustände und Eigenwerte ermittelt. Hierbei ergibt sich für die Eigenzustände [28]

$$|0\rangle = |4\rangle - \frac{\Omega_w^*}{\Omega_s} |2\rangle \quad (2.33)$$

$$|\pm\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|2\rangle \mp \frac{|\Omega_s|}{\Omega_s} |3\rangle + \frac{\Omega_w}{\Omega_s} |4\rangle \right), \quad (2.34)$$

mit den zugehörigen Eigenwerten

$$\hbar\omega_0 = 0 \quad (2.35)$$

$$\hbar\omega_{\pm} = \pm\hbar|\Omega_s|, \quad (2.36)$$

unter der Annahme eines sehr schwachen Probenstrahls $\Omega_p \rightarrow 0$ und unter Berücksichtigung von Ω_w bis zur ersten Ordnung. Abbildung 2.7 (b) zeigt das vier-Niveau System in der *dressed-state* Basis.

Ohne den zweiten Kopplungslaser, also für $\Omega_w \rightarrow 0$, entsprechen die beiden Eigenzustände

$|\pm\rangle$ der Autler-Townes Aufspaltung in einem gewöhnlichen EIT-Leitersystem [53]. Der Eigenzustand $|0\rangle$ ist in diesem Fall entkoppelt und entspricht dem ungestörten atomaren Zustand $|4\rangle$.

Wird der zweite Kopplungslaser Ω_w eingestrahlt, erhält der Eigenzustand $|0\rangle$ eine Beimischung des atomaren Zustandes $|2\rangle$. Hierdurch kommt es zu einer Kopplung zwischen dem Grundzustand $|1\rangle$ und dem Zustand $|0\rangle$. Dieser Übergang entspricht einer drei-Photonen Resonanz und führt zu sehr schmalen spektralen Merkmalen [28, 53].

Abbildung 2.8 veranschaulicht den Einfluss der Kopplungslaser auf den Imaginärteil der berechneten Suszeptibilität (dieser ist proportional zur Absorption) des atomaren Übergangs $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ des vier-Niveau Systems aus Abb. 2.7 [27]. Hierbei wird keine Dopplerverbreiterung berücksichtigt.

Abb. 2.8 (a) zeigt die ungestörte Absorption mit einer natürlichen Linienbreite von 1,27 MHz, wenn beide Kopplungslaser deaktiviert sind. Wird der starke Kopplungslaser eingestrahlt, sind die beiden Autler-Townes Komponenten aus der *dressed-state* Basis $|\pm\rangle$ zu sehen, Abb. 2.8 (b). Der Abstand der beiden Absorptionspeaks beträgt dabei $2 \cdot \Omega_s$. Zwischen den Autler-Townes Komponenten bildet sich EIT aus. Dieses führt jedoch aufgrund der Zerfallsraten im Leitersystem nicht zu vollständiger Transparenz. In Abb. 2.8 (c) sind beide Kopplungslaser aktiv, so dass sich im Zentrum des Übergangs zusätzlich die drei-Photonen Resonanz als schmaler Absorptionspeak ausbildet. Bemerkenswert ist, dass die spektrale Breite der drei-Photonen Resonanz unterhalb der natürlichen Linienbreite des atomaren Übergangs liegt. Die durch EIT verringerte Absorption wird durch die drei-Photonen Resonanz in zwei EIT-Bereiche geteilt. Dies ist auch der Ursprung des Begriffs *double-dark states* bzw. *interacting dark resonances* [27, 53].

Die Besonderheit der drei-Photonen Resonanz in diesem vier-Niveau System tritt jedoch erst zutage, wenn der $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ Übergang zusätzlich inkohärent gepumpt wird. Wie in Abb. 2.8 (d) zu sehen dreht sich der schmale Absorptionspeak um und weist Verstärkung auf, die für LWI verwendet werden kann [27, 52, 53].

In einem dopplerverbreiterten Medium würde jedoch auch dieser Verstärkungspeak, wie bereits für das drei-Niveau System gezeigt wurde, auswischen. Im Gegensatz zum drei-Niveau System kann die Dopplerverbreiterung durch eine geschickte geometrische Anordnung der Laserstrahlen, wie von Fry *et al.* in [27] vorgeschlagen, kompensiert werden.

Die Dopplerverschiebung der drei-Photonen Resonanz Δ_{3PR} die ein Atom mit der Geschwindigkeit \vec{v} erfährt berechnet sich zu [28]

$$\Delta_{3PR} = \Delta_p + \Delta_s - \Delta_w - (\vec{k}_p + \vec{k}_s - \vec{k}_w) \cdot \vec{v}, \quad (2.37)$$

mit den Verstimmungen $\Delta_{p,s,w}$ und den k-Vektoren der Laserstrahlen $\vec{k}_{p,s,w}$. Erfüllen die k-Vektoren der Laser die Bedingung $\vec{k}_p + \vec{k}_s - \vec{k}_w = 0$, dann ist die Dopplerverschiebung $\Delta_{3PR} = 0$ unabhängig von der Geschwindigkeit und Richtung des Atoms, sobald zusätzlich die drei-Photonen Resonanz $\Delta_p + \Delta_s - \Delta_w = 0$ erfüllt ist. Die Bedingung $\vec{k}_p + \vec{k}_s - \vec{k}_w = 0$ ist erfüllt, sobald die drei k-Vektoren der Dreiecksungleichung genügen. Ein Beispiel hierfür ist in Abbildung 2.10 anhand des in dieser Arbeit verwendeten vier-Niveau Systems gezeigt.

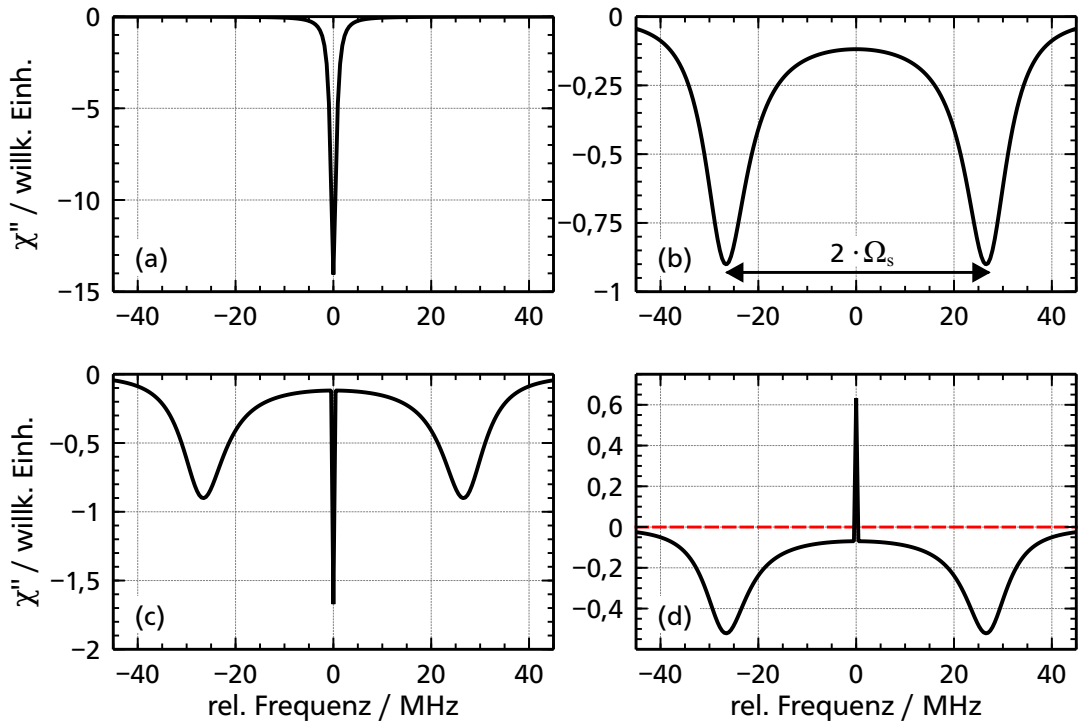


Abbildung 2.8: Imaginärteil der berechneten Suszeptibilität des atomaren Übergangs $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ des vier-Niveau Systems, aufgetragen über die Verstimmung Δ_p . Für die Berechnung wird angenommen, dass der $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ Übergang eine natürliche Linienbreite von 1,27 MHz ($\Gamma_{21} = 8 \cdot 10^6$ 1/s) aufweist. (a) $\Omega_s = 0$ MHz und $\Omega_w = 0$ MHz: Ungestörte Absorption mit einer natürlichen Linienbreite von 1,27 MHz. (b) $\Omega_s = 27,4$ MHz und $\Omega_w = 0$ MHz: Die beiden Absorptionspeaks entsprechen den Autler-Townes Komponenten $|\pm\rangle$ in der *dressed-state* Basis und haben einen Abstand von $2 \cdot \Omega_s$. Die geringe Absorption zwischen den zwei Autler-Townes Komponenten entspricht EIT, wobei dieses im Leitersystem nicht vollständig ausgebildet ist. (c) $\Omega_s = 27,4$ MHz und $\Omega_w = 0,4$ MHz: Durch den zweiten Koppelungslaser bildet sich die drei-Photonen Resonanz als schmaler Absorptionspeak im Zentrum des Übergangs. (d) $\Omega_s = 27,4$ MHz, $\Omega_w = 0,4$ MHz und inkh. Pumpe: Durch eine zusätzliche inkohärente Pumpe auf dem $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ Übergang, geht der Absorptionspeak der drei-Photonen Resonanz in einen Verstärkungsspeak über und führt zu AWI bzw. LWI. Daten übernommen aus [27].

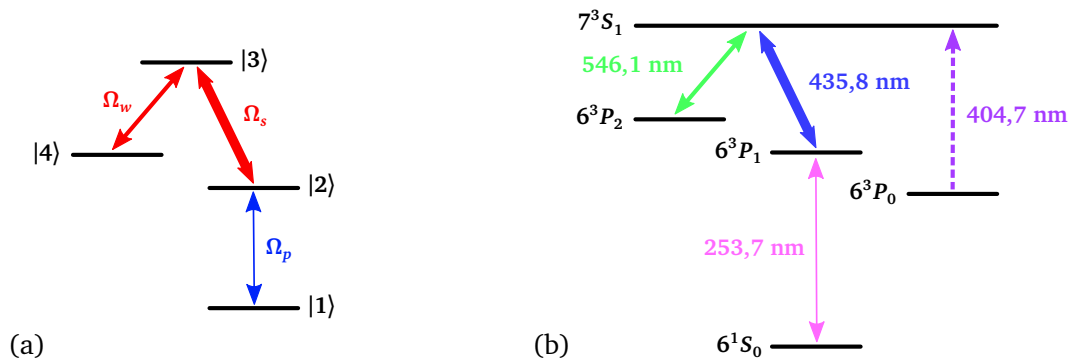


Abbildung 2.9: Vergleich des vier-Niveau Systems wie es in Abschnitt 2.3.3 vorgestellt wurde (a), mit dem Niveauschema in Quecksilber (b) wie es in dieser Arbeit verwendet wird. Das metastabile 6^3P_0 Niveau gehört nicht zum kohärent gekoppelten vier-Niveau System, muss aber durch einen inkohärenten Rückpumpplaser entleert werden, damit sich keine Besetzung darin sammeln kann.

2.4 Lasing without inversion in Quecksilber

Quecksilber besitzt eine Niveaustuktur die genau den Anforderungen eines vier-Niveau LWI-Systems entspricht, wie es in Abschnitt 2.3.3 vorgestellt wird. Abbildung 2.9 zeigt eine Gegenüberstellung des vier-Niveau Schemas aus Abb. 2.7 mit dem Niveauschema von Quecksilber.

Der LWI-Laserübergang dieses Systems besitzt eine Wellenlänge im UV-Bereich von $253,7 \text{ nm}$. Der starke Kopplungslaser weist eine Wellenlänge von $435,8 \text{ nm}$ auf, während der schwache Kopplungslaser mit einer Wellenlänge von $546,1 \text{ nm}$ auf das metastabile 6^3P_2 Niveau koppelt. Das zweite metastabile Niveau 6^3P_0 mit einer Lebensdauer im Sekundenbereich [56], koppelt nicht an das vier-Niveau LWI-System, muss aber dennoch berücksichtigt werden, da sich Besetzung durch spontane Emission aus dem 7^3S_1 Niveau sammeln kann, die für das LWI-System dann nicht mehr zur Verfügung steht. Damit das kohärent angeregte LWI-System nicht durch eine Kopplung auf ein weiteres Niveau gestört wird, ist eine inkohärente Pumpe nötig, um das 6^3P_0 Niveau zu entleeren.

Das vier-Niveau LWI-System in Quecksilber bietet somit einen Gewinn bezüglich der Wellenlänge des LWI-Laserübergangs gegenüber der Wellenlängen der Kopplungslaser, genauso wie es dem Grundgedanken von LWI entspricht. Da die UV-Wellenlänge von $253,7 \text{ nm}$ durch zweifache Frequenzverdopplung eines konventionellen Lasersystems erzeugt werden kann, bietet sich die Möglichkeit die spektroskopischen Eigenschaften dieses LWI-Systems mit einem Probenlaser zu analysieren [27]. Insbesondere sind hierbei der Einfluss von Parametern der Kopplungslaser wie deren Linienbreiten, Verstimmungen oder Leistungen interessant. Da bisher noch kein LWI in einem vier-Niveau System experimentell umgesetzt wurde ist es besonders relevant, die experimentell gewonnenen Ergebnisse mit den theoretischen

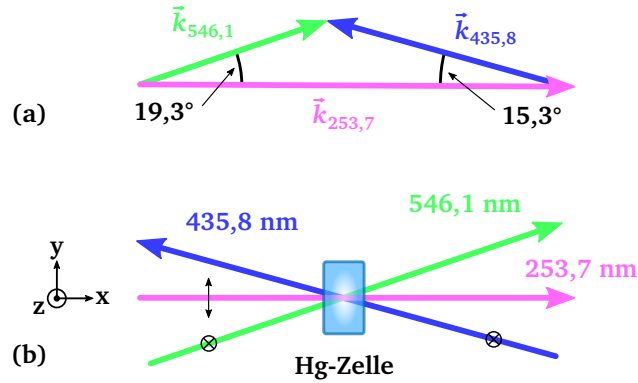


Abbildung 2.10: (a) Die Winkelordnung der k -Vektoren der beiden Kopplungslaser und des UV-Strahls so dass sich diese gemäß $\vec{k}_{253,7} + \vec{k}_{435,8} - \vec{k}_{546,1} = 0$ zu Null addieren. (b) Überlagerung der Strahlen in einer Quecksilberdampfzelle unter Berücksichtigung der Winkelgeometrie aus (a) und mit den Polarisationsrichtungen aus [27].

Modellen vergleichen zu können.

Abbildung 2.10 (a) zeigt das geometrische Schema in dem die drei Strahlen überlagert werden müssen, damit die Bedingung $\vec{k}_{253,7} + \vec{k}_{435,8} - \vec{k}_{546,1} = 0$ für eine dopplerfreie drei-Photonen Resonanz mit $\Delta_{3PR} = 0$ erfüllt ist (siehe Gleichung (2.37)). Der 435,8 nm Kopplungslaser muss in einem Winkel von $15,3^\circ$, gegenläufig zum 253,7 nm Probenlaser eingestrahlt werden, während der 546,1 nm Kopplungslaser mit einem Winkel von $19,3^\circ$ in die Richtung des Probenlasers propagiert.

Durch die Winkelkonfiguration kann sich die durch LWI erzeugte Laserstrahlung nur in eine Richtung ausbreiten. Entsprechend muss der für LWI benötigte Resonator als Ring-Resonator mit einer festen Umlaufrichtung konzipiert werden.

Die Überlagerung der Strahlen findet in einer Zelle mit Quecksilberatmosphäre statt, wie in Abbildung 2.10 (b) gezeigt. Die Polarisierungen der Laserstrahlen folgen dem in [27] vorgeschlagenen Schema. Alle Laser besitzen eine lineare Polarisation, wobei die Polarisation der Kopplungslaser in z-Richtung zeigt und die Polarisation des 253,7 nm UV-Strahls in y-Richtung.

Werden die Zeeman-Unterniveaus berücksichtigt, ergeben sich für die vorgestellten Polarisierungen die in Abbildung 2.11 dargestellten Anregungswege für die drei-Photonen Resonanz. Hierbei wurde die Polarisationsrichtung des 253,7 nm Strahls als Quantisierungsachse gewählt. Neben dem UV-Laserübergang mit $\Omega_{253,7}$ und den beiden Kopplungslasern mit $\Omega_{435,8}$ und $\Omega_{546,1}$ ist noch der inkohärente Rückpump laser bei 404,7 nm und die für AWI bzw. LWI essenzielle inkohärente Pumpe bei 253,7 nm eingezeichnet. Wie in diesem Schema zu sehen

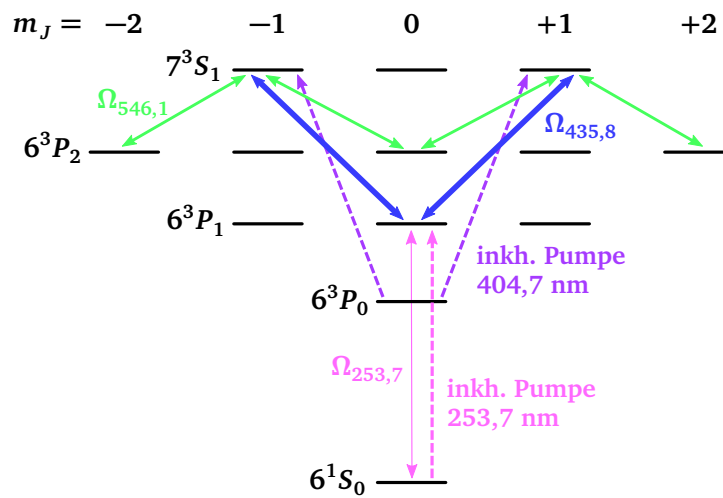


Abbildung 2.11: Vier-Niveau System in Quecksilber unter Berücksichtigung aller Zeeman-Unterniveaus m_j . Mit den in Abb. 2.10 (b) vorgestellten Polarisationen der Laser ergeben sich die eingezeichneten Anregungswege für die drei-Photonen Resonanz, wenn die Quantisierungsachse durch den 253,7 nm Strahl vorgegeben wird. Zusätzlich ist die inkohärente Rückpumpe bei 404,7 nm, sowie die für AWI bzw. LWI essenzielle inkohärente Pumpe des LWI-Laserübergangs eingezeichnet.

ist, besitzen die bosonischen Quecksilberisotope keine Hyperfeinaufspaltung.

Ein von Fry *et al.* [27] entwickeltes theoretisches Modell hat bereits gezeigt, dass die drei-Photonen Resonanz auch im dopplerverbreiterten Fall erhalten bleibt und so LWI in diesem System möglich ist. Dieses Modell berücksichtigt jedoch nicht die Linienbreiten der Laser und die Aufenthaltsdauer der Quecksilberatome in der Überlagerungszone der Laserstrahlen. In einer Kooperation wurde von Herrn Martin Sturm ein erweitertes theoretisches Modell entwickelt, das auch die Linienbreiten der Laser berücksichtigt [28]. Hierbei wurde gezeigt, dass die Linienbreite für die dopplergefreie Resonanz ein entscheidender Faktor ist. Bereits Linienbreiten im Bereich von wenigen kHz führen zu einer starken Reduzierung des kohärenten Effekts. Durch die Winkelgeometrie und dem Einsatz zweier Kopplungslaser scheint der Einfluss des Phasenrauschens stärker ausgeprägt zu sein als es in drei-Niveau Systemen beobachtet wurde [57]. Im Zuge der experimentellen Ergebnisse wurde das theoretische Modell noch um eine Wechselwirkungszeit t_{WW} der Atome mit den Lasern und einer gerichteten inkohärenten Pumpe bei 253,7 nm mit variabler spektraler Breite $\text{FWHM}_{\text{pumpe}}$ erweitert. Die Berücksichtigung der Wechselwirkungszeit ist notwendig, da sich durch die hohe Geschwindigkeit der Atome von 155 m/s und einem im Experiment verwendeten Strahldurchmesser von 0,84 mm eine Zeit $t_{\text{WW}} = 5,4 \mu\text{s}$ ergibt, für die eine stationäre Lösung nicht mehr gültig ist. Vor allem verliert das Fangen von Besetzung in den nicht kohärent gekoppel-

ten metastabilen Niveaus an Relevanz. Die Wechselwirkungszeit entspricht außerdem der maximalen Kohärenzzeit im vier-Niveau System [58]. Die Bedeutung der spektralen Breite der inkohärenten Pumpe wird in Abschnitt 6.2.3 ausführlich diskutiert.

Abbildung 2.12 zeigt den mit dem erweiterten theoretischen Modell berechneten Verlauf des Absorptionsspektrums für realistische Parameter, wie sie auch im Experiment verwendet wurden (siehe Abschnitt 6.1 und Tab. 6.1). Die größte Abweichung liegt in der Rabifrequenz des Probenlasers $\Omega_{253,7} = 2\pi \cdot 0,01$ MHz, die bei einem Strahldurchmesser von 0,84 mm einer optischen Leistung von 114 nW entsprechen würde und im Experiment nicht mehr sinnvoll detektiert werden könnte. Der vom theoretischen Modell berechnete Imaginärteil der Suszeptibilität wurde für die Abbildung in eine Absorption umgerechnet, die für eine Absorptionsstrecke von 2 mm und einem Strahldurchmesser des UV-Strahls von 0,84 mm theoretisch zu erwarten wäre.

Die ungestörte, dopplerverbreiterte Absorption, die als schwarze Linie eingezeichnet ist, ergibt sich wenn der 435,8 nm Kopplungslaser deaktiviert wird ($\Omega_{435,8} = 0$). Die Spektren in Abb. 2.12 (a) und (b) ergeben sich wenn keine inkohärente Pumpe vorhanden ist, wobei (b) einen vergrößerten Ausschnitt um die drei-Photonen Resonanz darstellt. Diese weist eine Breite von 475 kHz auf und liegt damit deutlich unterhalb der natürlichen Linienbreite des $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergangs von 1,27 MHz. Die Veränderung in der Absorption liegt jedoch im Bereich weniger Promille und ist deshalb experimentell schwer zu detektieren.

Mit einer genügend starken inkohärenten Pumpe auf dem $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Übergang „klappt“ der Peak der drei-Photonen Resonanz um und geht von der Absorption in die Verstärkung über (Transmission > 100 %), Abb. 2.12 (c) und (d). Für diese Berechnung wurde auch der im Experiment vorhandene Winkel von 5° zwischen Probenstrahl und Pumpstrahl berücksichtigt (vgl. Abb. 3.33). Der Verstärkungsspeak, zu sehen in der vergrößerten Darstellung in (d), besitzt eine Breite von 2,7 MHz. Die dargestellten Spektren in (c) und (d) entsprechen *amplification without inversion*, da hier von einem Probenlaser bei 253,7 nm ausgegangen wird. Mit dem Bau eines Resonators würde sich jedoch aufgrund des positiven Imaginärteils der Suszeptibilität auch *lasing without inversion* ergeben.

Im Experiment sind für den 253,7 nm Probenstrahl größere Leistungen notwendig um ein ausreichend großes Signal-zu-Rausch Verhältnis bei dessen Detektion zu gewährleisten. Aus diesem Grund sind in Abbildung 2.13 die Spektren aus Abbildung 2.12 mit einer Rabifrequenz von $\Omega_{253,7} = 2\pi \cdot 0,212$ MHz dargestellt. Diese entspricht der in Abschnitt 6.1 im Experiment verwendeten Rabifrequenz. Mit der größeren Rabifrequenz $\Omega_{253,7}$ sind in Abb. 2.13 (a) ausgeprägtere Strukturen aufgrund von Pumpeffekten zu sehen, die in Abschnitt 6.1 ausführlich diskutiert werden. Der entscheidende Unterschied ist im Verlauf der drei-Photonen Resonanz auszumachen, da diese auch schon ohne inkohärente Pumpe in Richtung verringerter Absorption weist. Das markante „Umklappen“, wie es in [27] beschrieben, wird fehlt hier und ist entsprechend auch im Experiment nicht zu beobachten. Die für einen DDKS markante Verstärkung der Absorption, scheint durch den größeren Besetzungstransfer aus dem 6^1S_0 Grundzustand bei höherer Probenstrahlleistung direkt zu einem EIT ähnlichen Verhalten zu führen. Die Breite der drei-Photonen Resonanz ist mit 704 kHz auch deutlich

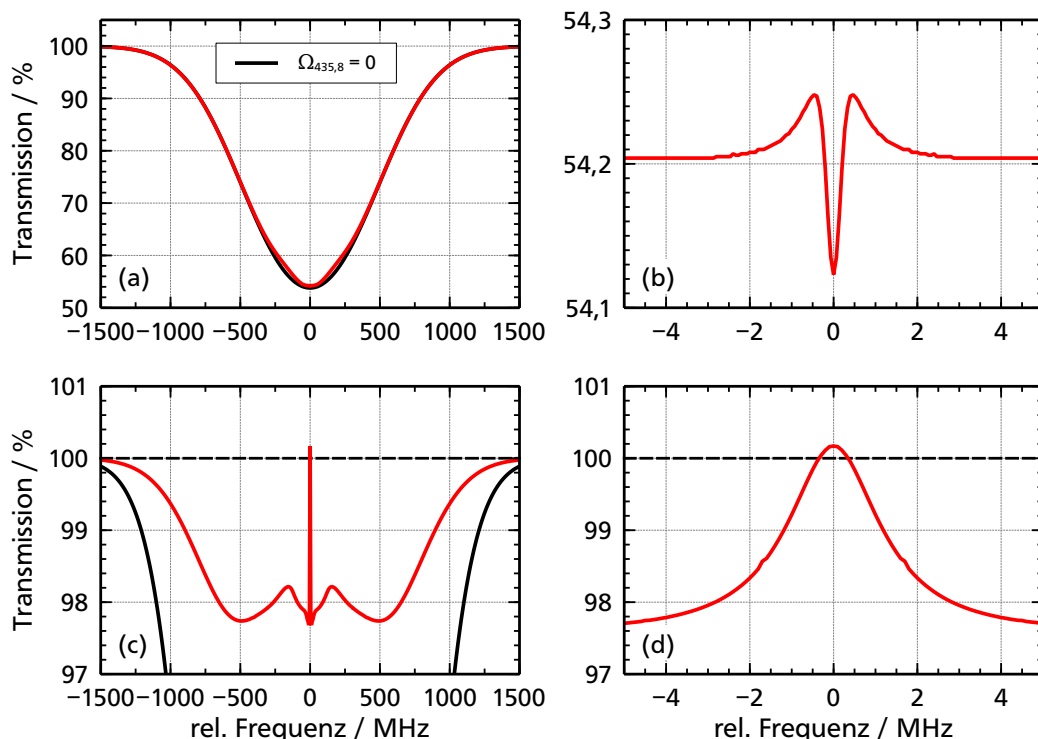


Abbildung 2.12: Absorptionsspektren, berechnet mit dem erweiterten theoretischen Modell für realistische, im Experiment einsetzbare, Laserparameter (bis auf die zu kleine Rabi-Frequenz des Probenstrahls $\Omega_{253,7}$). (a) Absorptionsspektrum ohne inkohärente Pumpe auf dem LWI-Laserübergang. Zum Vergleich ist in Schwarz das ungestörte, dopplerverbreiterte Absorptionsspektrum ohne die Kopplung durch den 435,8 nm Laser aufgetragen ($\Omega_{435,8} = 0$). (b) Vergrößerte Darstellung der drei-Photonen Resonanz. (c) Absorptionsspektrum wie in (a) nur mit inkohärenter Pumpe der Stärke $\Omega_{\text{Pumpe}} = 2\pi \cdot 10$ MHz und spektralen Breite $\text{FWHM}_{\text{Pumpe}} = 100$ MHz. (d) Vergrößerte Darstellung der drei-Photonen Resonanz mit inkohärenter Pumpe. Die wichtigsten für diese Berechnung verwendeten Parameter sind: $\Omega_{253,7} = 2\pi \cdot 0,01$ MHz, $\Omega_{435,8} = 2\pi \cdot 30,8$ MHz, $\Omega_{546,1} = 2\pi \cdot 6,2$ MHz und $\Omega_{404,7} = 2\pi \cdot 2,8$ MHz; Temperatur der Quecksilberatome $T = 5^\circ\text{C}$; Wechselwirkungszeit $t_{\text{WW}} = 5 \mu\text{s}$; Linienbreiten für Probenstrahl und die beiden Kopplungslaser jeweils 60 kHz.

größer geworden, aber immer noch kleiner als die natürliche Linienbreite des atomaren Übergangs.

Die inkohärente Pumpe verschiebt den Peak der drei-Photonen Resonanz wieder in den Verstärkungsbereich, Abb. 2.13 (c) und (d). Die Breite des Peaks ist mit 2,7 MHz gegenüber

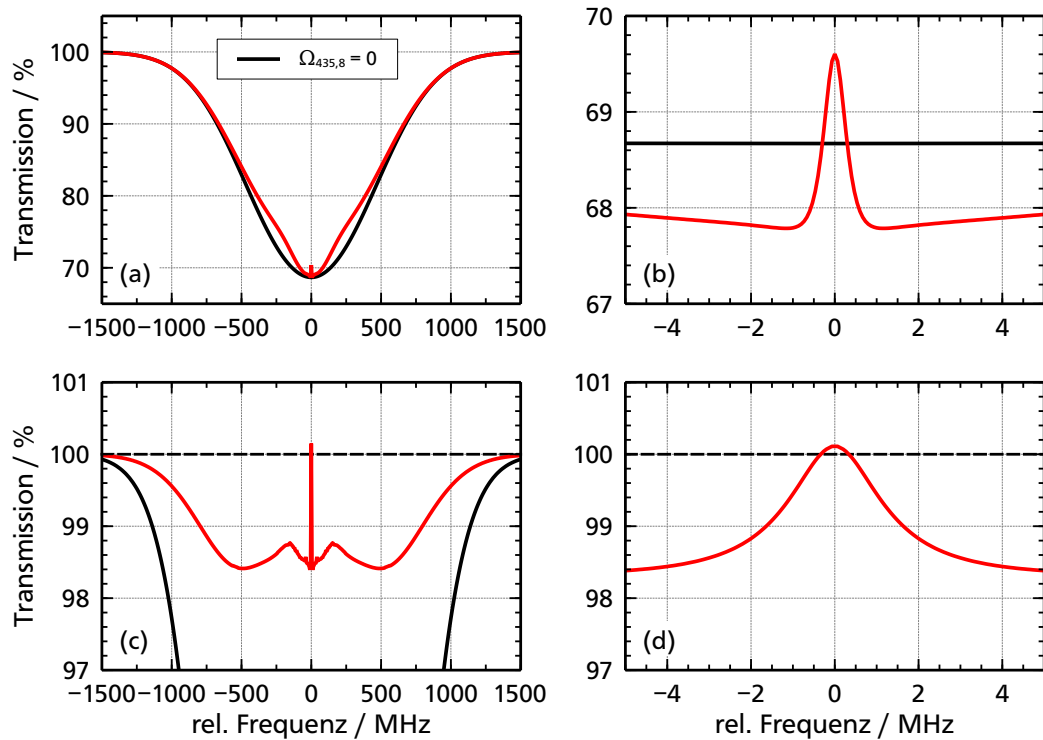


Abbildung 2.13: Absorptionsspektren, berechnet mit dem erweiterten theoretischen Modell. Die verwendeten Laserparameter sind bis auf $\Omega_{253,7} = 2\pi \cdot 0,212 \text{ MHz}$ identisch mit denen in Abb. 2.12. (a) Absorptionsspektrum ohne inkohärente Pumpe auf dem LWI-Laserübergang. Zum Vergleich ist in Schwarz das ungestörte, dopplerverbreiterte Absorptionsspektrum ohne die Kopplung durch den 435,8 nm Laser aufgetragen ($\Omega_{435,8} = 0$). (b) Vergrößerte Darstellung der drei-Photonen Resonanz. (c) Absorptionsspektrum wie in (a) nur mit inkohärenter Pumpe der Stärke $\Omega_{\text{Pumpe}} = 2\pi \cdot 10 \text{ MHz}$ und spektralen Breite $\text{FWHM}_{\text{Pumpe}} = 100 \text{ MHz}$. (d) Vergrößerte Darstellung der drei-Photonen Resonanz mit inkh. Pumpe.

der Berechnung mit $\Omega_{253,7} = 2\pi \cdot 0,01 \text{ MHz}$ unverändert.

Die Berechnungen mit dem sehr detaillierten theoretischen Modell zeigen, dass auch mit im Experiment zugänglichen Parametern LWI in diesem vier-Niveau System in Quecksilber möglich sein sollte. Ein Ziel dieser Arbeit ist es die theoretischen Vorhersagen zu Überprüfen.

3 Die Lasersysteme

Für die Umsetzung des von Fry *et al.* in [27] vorgestellten Schemas für LWI in Quecksilber werden zwei Lasersysteme bei 435,8 nm und 546,1 nm für den Aufbau der Kohärenz benötigt. Ein weiterer Laser bei 404,7 nm dient als spektral breiter Rückpumpplaser, um zu verhindern, dass sich Population in dem metastabilen Zustand 6^3P_0 sammelt und nicht mehr für das LWI-System zur Verfügung steht.

Ein Lasersystem bei 253,7 nm, dem eigentlichen LWI-Laserübergang, dient der Erprobung des LWI-Schemas. Mit diesem Lasersystem ist es möglich die in Abschnitt 2.3.3 vorgestellte Simulation [28] zu verifizieren und die Parameter festzulegen, die für eine erfolgreiche Umsetzung von LWI in Quecksilber notwendig sind. Konkret wurde es in dieser Arbeit benutzt, um erstmals erfolgreich eine dopplerfreie drei-Photonen Resonanz zu messen und erste Ergebnisse in Richtung *amplification without inversion* zu erzielen.

Dieses Kapitel gibt zuerst einen groben schematischen Überblick über den gesamten experimentellen Aufbau. Anschließend werden die theoretischen Grundlagen der zwei verwendeten Frequenzstabilisierungsmethoden auf Basis der Polarisationspektroskopie sowie der dichroitischen Spektroskopie erarbeitet. Im folgenden Teil werden die drei Lasersysteme bei 435,8 nm, 546,1 nm und 404,7 nm detailliert vorgestellt und charakterisiert. Deren Entwicklung war eine der Hauptaufgaben der vorliegenden Arbeit. Für die UV-Strahlenquelle bei 253,7 nm konnte auf die 507,4 nm Strahlung eines vorhandenen Lasersystems zurück gegriffen werden, welches für eine magneto-optischen Falle für Quecksilber genutzt wird [59, 60], sowie auf einen Verdopplungsresonator aus der Arbeit von Herrn Tobias Beck [61]. Aus diesem Grund wird dieses Lasersystem nur kurz vorgestellt. Abschließend wird der UV-Strahlengang zur UHV-Zelle (Ultrahochvakuum-Zelle) beschrieben, sowie die Überlagerung aller Laser in der Zelle. Alle in diesem Kapitel angegebenen Strahldurchmesser beziehen sich auf einen Leistungsabfall des Gaußstrahls auf $1/e^2 = 13,5\%$.

3.1 Überblick über das Gesamtsystem

Ausgehend von Fry *et al.* [27] und den in Abschnitt 2.4 durch die Simulation ermittelten Anforderungen wurden im Rahmen dieser Arbeit drei Lasersysteme bei den Wellenlängen 546,1 nm, 435,8 nm und 404,7 nm entwickelt. Ein besonderes Augenmerk gilt hierbei den Systemen bei 546,1 nm und 435,8 nm, da diese die Kohärenz aufbauen und deshalb eine möglichst schmale Linienbreite benötigen und in der Frequenz präzise auf die zugehörigen atomaren Übergänge stabilisiert sein müssen.

Eine komprimierte Darstellung des Gesamtsystems ist in Abb. 3.1 zu sehen. Die Fundamentalfrequenz jedes der vier Lasersysteme wird durch eine Laserdiode mit externer Rückkopplung

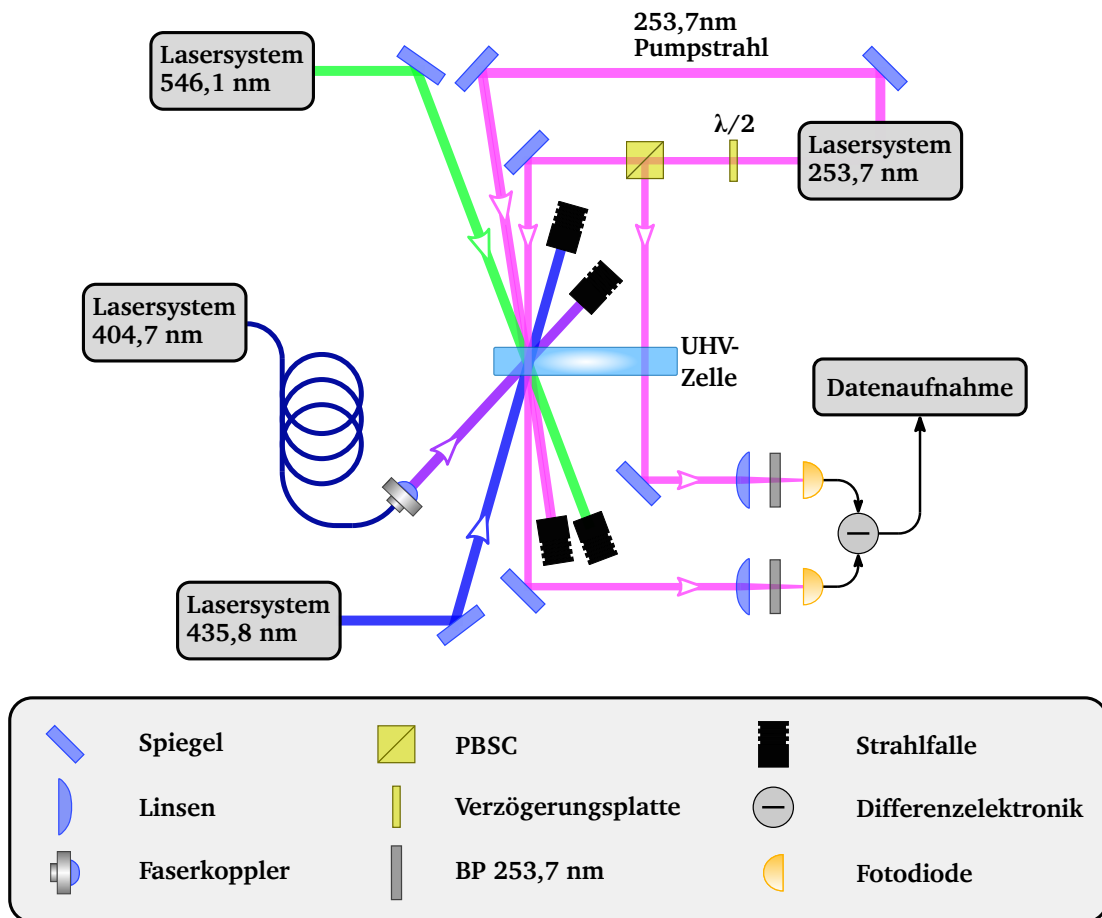


Abbildung 3.1: Komprimierte schematische Darstellung des Experimentellen Aufbaus für *amplification without inversion*.

(*external cavity diode laser*, kurz ECDL) erzeugt [62]. ECDLs besitzen typischerweise Linienbreiten unterhalb von 100 kHz [63] und eignen sich dadurch besonders für eine kohärente Anregung wie in dieser Arbeit gefordert. Ein Stabilisierungsverfahren der Systeme bei 435,8 nm, 546,1 nm und 253,7 nm, welches den internen Resonator des ECDLs auf dessen externen Resonator stabilisiert, erlaubt ein einfaches Abstimmen der Wellenlänge auf die gewünschten atomaren Übergänge sowie lange Stabilisierungszeiten, da Modensprünge aufgrund von Langzeitdrifts ausgeglichen werden [64, 65].

Da für die Wellenlängen von 546,1 nm und 253,7 nm keine Laserdioden verfügbar sind und bei 435,8 nm keine Laserdioden mit genügend Ausgangsleistung zur Verfügung stehen, müssen diese Wellenlängen durch Frequenzverdopplung erzeugt werden. Für die UV-Strahlung werden zwei aufeinanderfolgende Verdopplungsstufen benötigt. Entsprechend liegen die Fundamentalwellenlängen bei 1092,2 nm, 1014,8 nm und 871,6 nm.

Um genügend Leistung für die Frequenzverdopplung bereit stellen zu können, wird die

Tabelle 3.1: Übersicht über die verwendeten Lasersysteme.

Wellenlänge	546,1 nm	435,8 nm	404,7 nm	253,7 nm
Fundamentale	1092,1 nm	871,6 nm	✗	1014,8 nm
Verstärkung	✗	Trapezver.	✗	Faserver.
SHG	SHG	SHG	✗	2× SHG
Kristall	LiNbO ₃	KNbO ₃	✗	LBO & BBO
Freq.-Stabi.	Pol.-Spek.	Pol.-Spek.	Dichr.-Spek.	✗

Leistung des 871,6 nm ECDLs durch einen Trapezverstärker verstärkt. Die Fundamentalwellenlänge von 1014,8 nm wird durch einen Faserverstärker basierend auf einer gekühlten Ytterbium dotierten Faser verstärkt. Bei 1092,2 nm wird eine Hochleistungsdiode eingesetzt, welche genügend Fundamentalleistung für eine effektive Verdopplung bietet.

Die Frequenzverdopplung findet in einem *bow-tie* förmigen Überhöhungsresonator statt, der mittels Pound-Drever-Hall Technik [66, 67] auf die Fundamentalfrequenz stabilisiert wird. Als nicht-lineares Medium wird für die Verdopplung von 871,6 nm ein KNbO₃-Kristall, für 1092,2 nm ein LiNbO₃-Kristall und für 1014,8 nm ein LBO-Kristall verwendet. Für diese drei Kristalle ist eine nicht-kritische Phasenanpassung über die Kristalltemperatur möglich. Die Frequenzverdopplung von 507,4 nm findet in einem kritisch phasenangepassten BBO-Kristall statt.

Eine Stabilisierung auf die Frequenzen der jeweiligen atomaren Übergänge wird für die Wellenlängen von 435,8 nm und 546,1 nm durch eine Polarisationspektroskopie (siehe Abschnitt 3.2.1) realisiert. Das 404,7 nm Lasersystem wird mittels dichroitischer Spektroskopie (siehe Abschnitt 3.2.2) stabilisiert. Bei allen drei Übergängen handelt es sich um angeregte atomare Übergänge, die im thermischen Gleichgewicht bei Raumtemperatur keine Besetzung aufweisen. Aus diesem Grund wird für die Spektroskopie eine Quecksilberdampfzelle verwendet, in der durch ein angelegtes *rf*-Feld eine Gasentladung gezündet wird.

Für das Lasersystem bei 253,7 nm war in diesem Stadium des Experiments noch keine Absolutstabilisierung notwendig, da die Frequenz für die Spektroskopie über die gesamte Absorption eines Isotops abgestimmt wurde. Dafür ist eine Kontrolle der Laserfrequenz über ein Wellenlängenmessgerät ausreichend.

Eine Zusammenfassung der Eigenschaften der vier Lasersysteme ist Tabelle 3.1 zu entnehmen.

Die Überlagerung aller Strahlen erfolgt in einer UHV-Zelle, die an ein Vakuumsystem mit gekühltem Quecksilberreservoir angeschlossen ist. So kann der Dampfdruck und damit auch die optische Dichte eingestellt werden. Das Vakuumsystem wird in Kapitel 4 vorgestellt.

Da nicht alle Lasersysteme auf einem optischen Tisch Platz finden, wurde das 404,7 nm System auf einem externen *breadboard* aufgebaut. Der Transport des Laserlichts erfolgt mit Hilfe einer polarisationserhaltenden Faser. Von dem 253,7 nm System befindet sich nur die

zweite Frequenzverdopplungseinheit mit auf dem optischen Tisch. Die hierfür notwendige Strahlung bei 507,4 nm wird ebenfalls über eine polarisationserhaltende Faser von einem benachbarten Tisch zugeführt.

Bei den für die Laserdioden verwendeten Stromsteuerungen handelt es sich um eine Eigenentwicklung, die in Zusammenarbeit mit Herrn Thorsten Führer [68] entwickelt wurde. Das grundlegende Design basiert auf der von Libbrecht und Hall entworfenen Schaltung [69]. Diese wurde jedoch angepasst, um eine Vielzahl möglicher Versorgungsspannungen von bis zu 12 V und Stromstärken von bis zu 2 A zu gewährleisten, um beispielsweise auch Quantenkaskadenlaser betreiben zu können wie in [70] vorgestellt. Weiterhin wurde die Schaltung um einen langsamen Modulationseingang erweitert, der es ermöglicht den gesamten Strombereich von 0 mA bis zum Maximalstrom zu modulieren und dabei eine Bandbreite von bis zu 200 kHz besitzt. Während des Entwurfs der vierlagigen Leiterplatte wurde besonders auf kurze Strecken im Bereich der Stromregelung Rücksicht genommen. So konnten Strom-Rauschdichten von $300 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$ in einem Frequenzbereich von 10 kHz bis 1 MHz und einem Maximalstrom von 140 mA erreicht werden. Da die Linienbreite einer Laserdiode vom Stromrauschen beeinflusst wird [68, 71], ist eine niedrige Strom-Rauschdichte von entscheidender Bedeutung für dieses Experiment.

Die in diesem Experiment verwendeten Proportional-Integral-Differenzial Regler (PID-Regler) sind ebenfalls Eigenentwicklungen des Autors und werden für die Stabilisierung der ECDLs, die Frequenzstabilisierung auf die atomaren Übergänge und die Stabilisierung der Resonatoren auf die Laserfrequenzen verwendet. Die Funktionalität der PID-Regler beinhaltet:

- Einstellbare Verstärkung, Offset und Invertierung für das Eingangssignals, sowie ein Monitor-Ausgang zur Kontrolle.
- Separat einstellbare Verstärkung des P-Anteils und Zeitkonstanten für I- und D-Anteil, sowie einstellbare Verhältnisse der drei Anteile zueinander.
- Integriertes Dreieckssignal mit einer Frequenz von 10 Hz, das anstatt des Regelsignals auf den Ausgang geschaltet werden kann, um den Regelbereich festzulegen. Alternativ kann der Ausgang über einen drei-Wege Schalter auf 0 V gesetzt werden.
- *Relock*-Funktion wenn das Regelsignal außerhalb des eingestellten Bereichs liegt.
- Einstellbare Mindestintensität des Regelsignals, um z. B. sicher zu stellen bei einem *relock* wieder auf die Hauptmode eines Resonators zu stabilisieren.

Die Funktionalität orientiert sich an dem von TEM-Messtechnik GmbH entwickelten PID-Modul „PID 110“, die schaltungstechnische Realisierung sowie das Platinendesign sind jedoch komplett vom Autor durchgeführt worden. Die *relock*-Funktionalität wurde durch CMOS-Schalter realisiert, die schnelle Schaltzeiten sicher stellen. Eine zuverlässige *relock*-Funktion ist bei gleichzeitiger Verwendung von 10 Regelkreisen, die während den in Kapitel 6

⁰ADG1434, Analog Devices Inc.

vorgestellten Messungen mit diesem PID-Regler stabilisiert wurden von großer Relevanz, um einen konstanten Betrieb des Gesamtsystems zu gewährleisten.

3.2 Frequenzstabilisierung der Lasersysteme

Um die Frequenz eines Lasers auf einen atomaren Übergang zu stabilisieren gibt es eine Vielzahl unterschiedlicher Techniken, von denen einige z.B. in [4, 72] vorgestellt werden. Für die meisten dieser Techniken wird jedoch zusätzliche Elektronik bzw. elektrooptische Geräte benötigt. Die weit verbreitete dopplerfreie Sättigungsspektroskopie benötigt für die Erzeugung eines dispersiven Signals einen *Lock-In* Verstärker, der für eine schnelle Stabilisierung eine entsprechend große Bandbreite aufweisen muss [73]. Im Falle der dopplerfreien bichromatischen Spektroskopie wird ein akustooptischer Modulator verwendet [74].

Aufgrund der relativen Einfachheit der Verfahren wurden in dieser Arbeit die Polarisationspektroskopie sowie die dichroitische Spektroskopie gewählt. Beide Verfahren erlauben eine dopplerfreie Spektroskopie und erzeugen disperse Fehlersignale, die direkt zum Stabilisieren der Lasersysteme auf die atomaren Übergänge verwendet werden können. Dabei werden nur passive optische Komponenten zur Manipulation der Polarisation verwendet und für die dichroitische Spektroskopie zusätzlich ein statisches Magnetfeld, das durch Permanentmagnete erzeugt wird. Diese Techniken werden in den folgenden zwei Abschnitten vorgestellt.

3.2.1 Polarisationspektroskopie

Die Polarisationspektroskopie wurde 1976 von Wieman und Hänsch [75] als sensitivere Alternative zur Sättigungsspektroskopie eingeführt. Wie die Sättigungsspektroskopie bietet die Polarisationspektroskopie ebenfalls eine sub-Doppler Auflösung. Allerdings wird nicht direkt die Intensitätsänderung des Probenstrahls detektiert, sondern die Änderung seines Polarisationszustandes.

Eine schematische Darstellung des für eine Polarisationspektroskopie verwendeten Aufbaus nach [76] ist in Abb. 3.2 zu sehen. Das für die Spektroskopie verwendete Laserlicht wird an einem Polarisationsstrahlteilerwürfel (*polarization beam splitter cube*, kurz PBSC) in einen starken Pumpstrahl mit einer Intensität $I_{\text{pumpe}} > I_{\text{sat}}$ und einen schwachen Probenstrahl mit $I_{\text{probe}} \ll I_{\text{sat}}$ aufgeteilt, wobei I_{sat} der Sättigungsintensität des spektroskopierten Übergangs entspricht. Die Polarisation des Probenstrahls wird durch eine $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte um einen Winkel von 45° gedreht. Nach dem Durchgang durch die zu spektroskopierende Probenzelle dient ein weiterer Polarisationsstrahlteilerwürfel als Analysator. Bei blockiertem Pumpstrahl wird die Intensität des Probenstrahls zu gleichen Teilen zwischen dessen s- und p-Ausgang aufgeteilt. Die Leistung der beiden PBSC-Ausgänge wird von zwei Photodioden mit anschließender Differenzschaltung detektiert. Bei geblocktem Pumpstrahl ergibt sich demnach eine Nulllinie wenn der Laser in seiner Frequenz verstimmt wird, auch wenn dieser dabei über eine Absorptionslinie scannt.

Der Pumpstrahl ist nach dem Passieren einer $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte zirkular polarisiert und

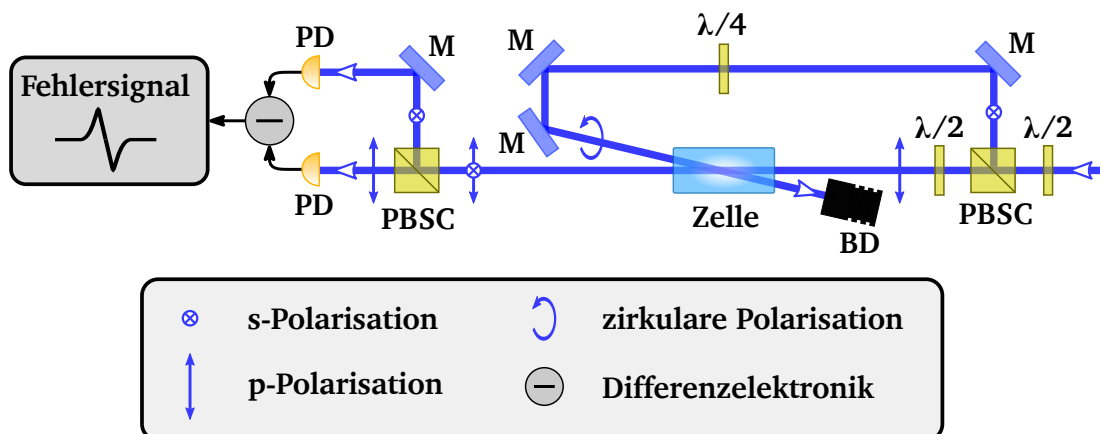


Abbildung 3.2: Schematischer Aufbau einer Polarisationspektroskopie mit den Polarisationszuständen der jeweiligen Strahlen. Der zirkular polarisierte Pumpstrahl bewegt sich gegenläufig zum Probenstrahl. M: Spiegel, $\lambda/2$ u. $\lambda/4$: Verzögerungsplatten, PBSC: Polarisationsstrahlteilerwürfel, BD: Strahlfalle, PD: Photodiode

wird in Gegenrichtung und unter einem möglichst kleinen Winkel mit dem Probenstrahl in der Zelle überlagert. Wird der Laser über einen atomaren Übergang der Probe in der Zelle verstimmt, so kann der zirkular polarisierte Pumpstrahl nach den Auswahlregeln nur Übergänge ansprechen, für deren Änderung in der magnetischen Quantenzahl $\Delta m = \pm 1$ (entsprechend für σ^\pm -Polarisation des Pumpstrahls) gilt. Im Folgenden werden die Auswirkungen auf den Probenstrahl an einem konkreten Übergang in Quecksilber erläutert.

In Abbildung 3.3 links ist der $6^3P_1 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergang in Quecksilber dargestellt, der von einem σ^+ -polarisierten Pumpstrahl getrieben und durch einen linear polarisierten Probenstrahl abgefragt wird. Der linear polarisierte Probenstrahl kann als Überlagerung von σ^+ - und σ^- -Polarisation angesehen werden. Da der Pumpstrahl nur die $\Delta m = +1$ Übergänge sättigt, erfahren auch nur die entsprechenden σ^+ -Polarisationskomponenten des Probenstrahls die Veränderung in der Absorption. Wird weiterhin von einer Gleichverteilung der Besetzung in den Zeeman-Unterniveaus des unteren Zustands 6^3P_1 ausgegangen, so bewirkt der Pumpstrahl, dass sich nach einer gewissen Zeit, abhängig von der Lebensdauer des oberen Niveaus 7^3S_1 und der Pumpintensität, ein Großteil der Besetzung im $m = +1$ Zustand von 6^3P_1 sammelt.

Dies führt insgesamt zu einer anisotropen Absorption der Polarisationskomponenten des Probenstrahls und induziert somit Doppelbrechung in dem Medium [4]. Die lineare Polarisation des Probenstrahls wird somit beim Durchlaufen der Zelle gedreht, dies kann wiederum durch den als Analysator eingesetzten zweiten PBSC detektiert werden.

Durch die gegenläufige Konfiguration von Pump- und Probenstrahl kann der Letztere die Veränderung im Medium nur wahrnehmen, wenn beide Strahlen mit den gleichen Atomen

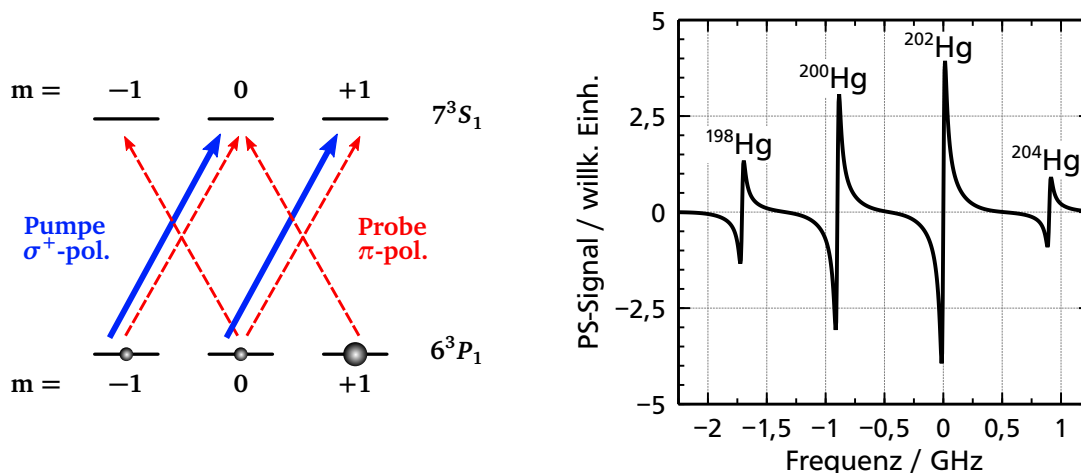


Abbildung 3.3: Links: Niveauschema des $6^3P_1 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergangs bei 435,8 nm für bosonische Quecksilberisotope. Die lineare Polarisation des Probenstrahls ist durch die Überlagerung zweier entgegengesetzt zirkularer Komponenten dargestellt. Die Besetzung sammelt sich im unteren $m = +1$ Niveau, angedeutet durch die Kugeln.

Rechts: Berechnetes PS-Fehlersignal der zentralen vier bosonischen Quecksilberisotope zum linken Niveauschema, wie es nach der Differenzbildung der Photodiodensignale entsteht.

wechselwirken. Aufgrund der Dopplerverbreiterung im Medium und der daraus resultierenden Dopplerverschiebung ist dies nur für Atome der Fall, deren Geschwindigkeit in Strahlrichtung null ist. Das durch die Polarisationspektroskopie entstehende Signal weist also eine sub-Doppler Auflösung im Bereich der natürlichen Linienbreite des spektroskopierten Übergangs auf.

Durch ein auf Ratengleichungen basierendes Modell, wie es z. B. in [77, 78] vorgestellt wird, ist es möglich die entstehenden Signale der Polarisationspektroskopie zu simulieren. Dabei wird die Besetzung der Niveaus des spektroskopierten Übergangs unter Berücksichtigung der entarteten Zeeman-Niveaus berechnet. Hierbei ist auch die zeitliche Entwicklung wichtig, da die Wechselwirkungszeit der Atome mit den Laserstrahlen endlich ist und typischerweise im Bereich einiger μs liegt. Da vor allem auch das Pumpen der Besetzung in andere Zeeman-Unterniveaus einen großen Einfluss hat, kann sich hierdurch sogar das Vorzeichen des Fehlersignals ändern.

Eine Simulation des Fehlersignals für den $6^3P_1 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergang der zentralen vier bosonischen Quecksilberisotope, wie es mit dem Aufbau aus Abb. 3.2 entsteht, ist in Abb. 3.3 rechts zu sehen. Die Zelltemperatur beträgt für diese Simulation ca. 23°C , was einer Dopplerbreite von 603 MHz FWHM entspricht. Für den Pumpstrahl wurde eine Intensität von $I_{\text{pumpe}} = I_{\text{sat}}$ angenommen. Das nach der Differenzbildung der beiden Photodiodensignale

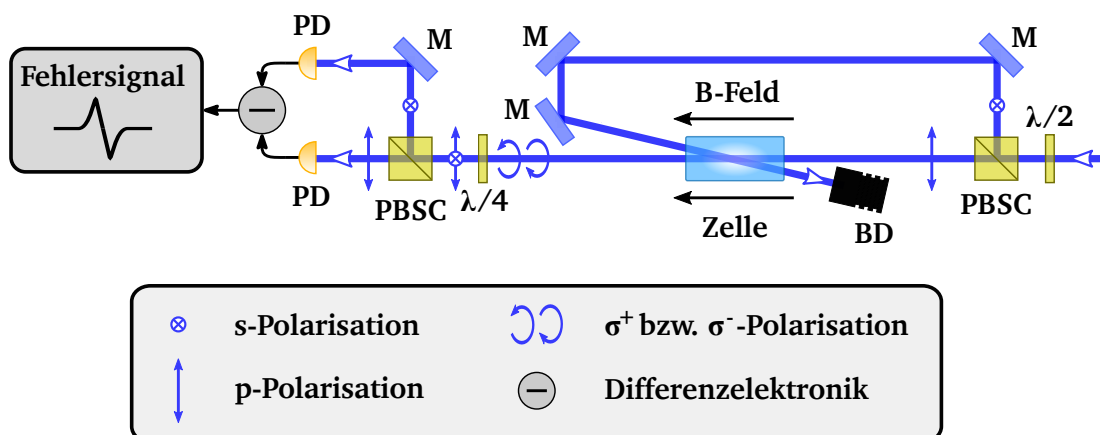


Abbildung 3.4: Schematischer Aufbau einer dichroitischen, dopplerfreien Spektroskopie mit den Polarisationszuständen der jeweiligen Strahlen. In der Zelle liegt ein Magnetfeld in Richtung des Probenstrahls an. M: Spiegel, $\lambda/2$ u. $\lambda/4$: Verzögerungsplatten, PBSC: Polarisationsstrahlteilerwürfel, BD: Strahlfaller, PD: Photodiode

gnale entstehende dispersive PS-Signal weist eine sub-Doppler Auflösung auf, mit einem Nulldurchgang an der zentralen Position des Übergangs.

Durch diese Eigenschaften kann es direkt als Regelsignal zum Stabilisieren eines Lasers auf einen atomaren Übergang verwendet werden.

3.2.2 Dichroitische Spektroskopie

Die Basis der dichroitischen Spektroskopie bildet der Zeeman-Effekt, also die Aufspaltung atomarer Übergänge durch ein äußeres Magnetfeld. Die Idee, den Zeeman-Effekt zur Erzeugung eines dispersiven Fehlersignals zu verwenden, um die Frequenz eines Lasers zu stabilisieren, stammt von Chéron *et al.* und wurde 1994 publiziert [79]. Vier Jahre später wurde von Corwin *et al.* [80] für diese Stabilisierungstechnik der Begriff DAVLL (*dichroic atomic vapor laser lock*) geprägt. In beiden Fällen wurden dopplerverbreiterte Signale benutzt, erst 2002 wurde das Verfahren von Petelski *et al.* [81] auf dopplerfreie Signale erweitert.

Abbildung 3.4 zeigt den schematischen Aufbau einer dopplerfreien dichroitischen Spektroskopie. Das Laserlicht wird an einem Polarisationsstrahlteilerwürfel in einen linear polarisierten Pump- und Probenstrahl aufgeteilt. Der Probenstrahl propagiert durch eine Zelle, welche das zu spektroskopierende Element in Form von Gas bzw. Dampf enthält. Der Pumpstrahl wird, wie in einer gewöhnlichen Sättigungsspektroskopie, in Gegenrichtung in der Zelle mit dem Probenstrahl überlagert.

An der Zelle liegt ein statisches Magnetfeld in Strahlrichtung an, welches zu der Zeeman-Aufspaltung der atomaren Niveaus führt. Dies ist in Abb. 3.5 links für den $6^3P_0 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergang in Quecksilber dargestellt. Für diesen Übergang ist das Prinzip besonders gut zu veranschaulichen, da das untere Niveau nicht aufspaltet. Außerdem wird die dichroitische

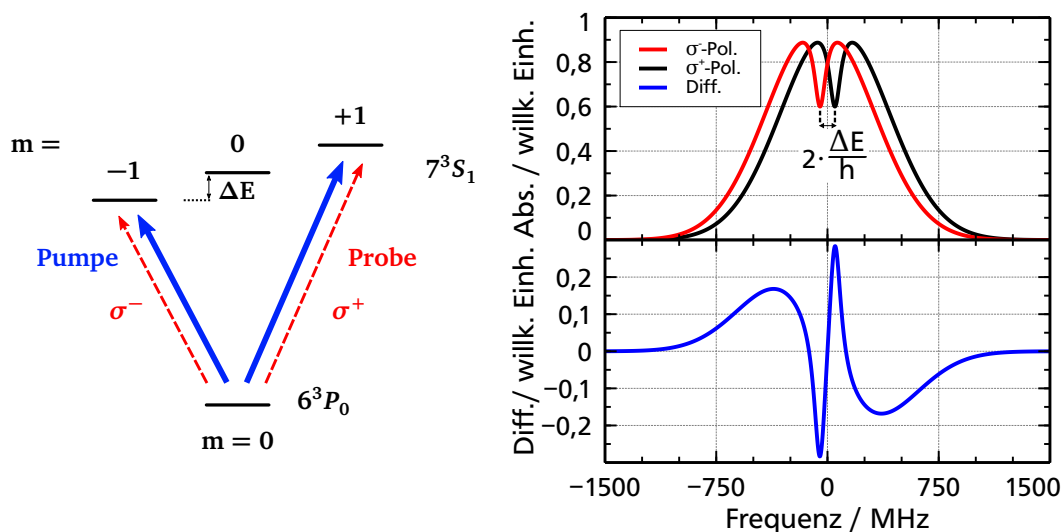


Abbildung 3.5: Links: Niveauschema des $6^3P_0 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergangs bei 404,7 nm für bosonische Quecksilberisotope. Die lineare Polarisation von Proben- und Pumpstrahl ist durch die Überlagerung zweier entgegengesetzt zirkularer Komponenten dargestellt. Die Zeeman-Niveaus sind durch das angelegte Magnetfeld um die Energie ΔE verschoben.

Rechts oben: Absorptionsspektrum mit Lamb-Dip für die zwei zirkularen Komponenten des Probenstrahls, verschoben um $\Delta \nu = 2 \cdot \Delta E/h$.

Rechts unten: Die Differenz aus den σ^- - und σ^+ -Signalen ergibt das dispersive und dopplerfreie DAVLL Signal. Angelehnt an [81].

Spektroskopie im Experiment auch genau auf diesen Übergang angewendet. Die σ^- und σ^+ Komponenten des linear polarisierten Probenstrahls sehen eine aufgrund der Aufspaltung um

$$\Delta E = g_j \cdot m_j \cdot \mu_B \cdot B = h \cdot \Delta \nu \quad (3.1)$$

verschobene Absorption [82]. Hierbei steht g_j für den Landé-Faktor, m_j die Zeeman-Komponente, μ_B das Bohrsche Magneton, B das Magnetfeld und h für die Planck Konstante. $\Delta \nu$ entspricht der resultierenden Frequenzverschiebung. Spaltet das untere Niveau ebenfalls auf, muss dies für die Berechnung der energetischen Verschiebung berücksichtigt werden. Aufgrund des Sättigungseffektes durch den Pumpstrahl weisen beide Absorptionsprofile einen Lamb-Dip auf. Das Magnetfeld darf keine zur Strahlrichtung transversalen Anteile aufweisen, da ansonsten auch Übergänge mit $\Delta m = 0$ angesprochen werden können.

Nach der Zelle werden die beiden zirkularen Polarisationsanteile durch eine $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte in zwei orthogonale lineare Polarisationsanteile projiziert. Diese können durch einen weiteren Polarisationsstrahlteilerwürfel als Analysator voneinander getrennt und durch

zwei separate Photodioden detektiert werden.

Abbildung 3.5 rechts oben zeigt die von den beiden Photodioden detektierten Absorptionsprofile. Dies sind die um $\Delta \nu$ zueinander frequenzverschoben. Für diese Grafik wurde eine Dopplerbreite des Übergangs von 825 MHz angenommen, mit einer natürlichen Linienbreite von 50 MHz. Anschließend wird aus den Photodiodensignalen die Differenz gebildet und es entsteht ein dispersives Signal mit einem Nulldurchgang an der Stelle des atomaren Übergangs, wie in Abb. 3.5 rechts unten dargestellt. Da die Flanke des Fehlersignals durch die Differenz aus den beiden Lamb-Dips entsteht, weist das Signal eine sub-doppler Auflösung auf.

Durch seine Eigenschaften kann das Differenzsignal aus der dichroitischen Spektroskopie direkt für die Frequenzstabilisierung eines Lasers auf einen atomaren Übergang verwendet werden.

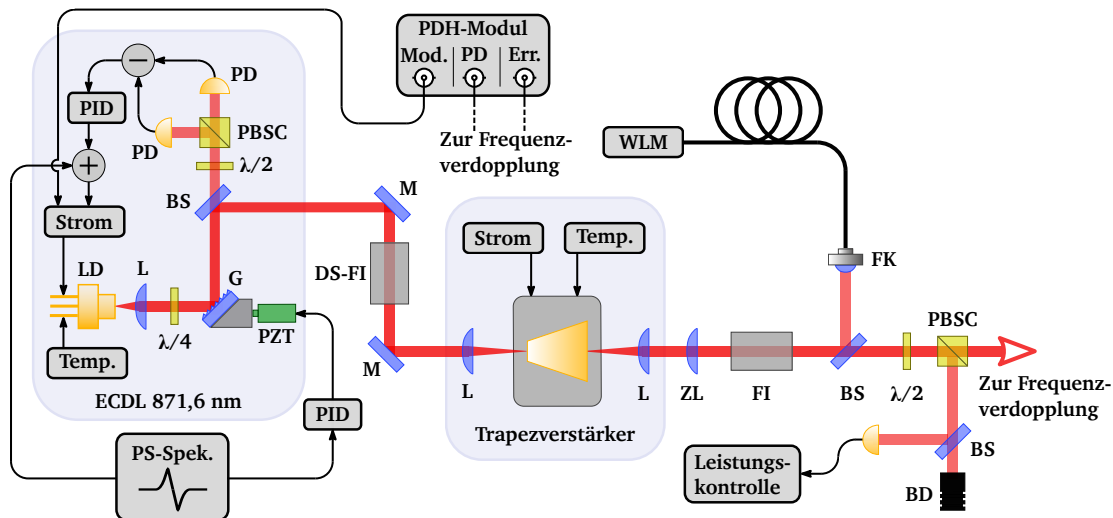


Abbildung 3.6: Aufbau des 871,6 nm ECDL mit anschließendem Trapezverstärker. LD: Laserdiode, M: Spiegel, BS: Strahlteiler, L: Linse, ZL: Zylinderlinse, G: Gitter, PZT: Piezoaktor, $\lambda/2$ u. $\lambda/4$: Verzögerungsplatten, PBSC: Polarisationsstrahlteilerwürfel, BD: Strahlfalle, PD: Photodiode, DS-FI: zweistufiger Faradayisolator, FK: Faserkoppler

3.3 Das 435,8 nm Lasersystem

In den folgenden Abschnitten wird das 435,8 nm Lasersystem vorgestellt, dessen Aufbau sich grob in die drei Komponenten ECDL mit Trapezverstärker, Frequenzverdopplung und Frequenzstabilisierung aufteilen lässt.

3.3.1 ECDL und Trapezverstärker

Die Fundamentalwellenlänge bei 871,6 nm wird von einer Fabry-Pérot Laserdiode¹ mit externer Rückkopplung erzeugt. Der Aufbau ist in Abbildung 3.6 dargestellt. Als rückkoppelndes Element wird ein holographisches Gitter² verwendet. Dieses ist in der Littrow-Konfiguration angeordnet [62, 83], wobei die erste Beugungsordnung zurück in die Laserdiode gekoppelt wird. Die nullte und minus erste Beugungsordnung stehen als Nutzstrahl zur Verfügung. Das Gitter bildet zusammen mit der Frontfacette der Laserdiode den externen Resonator des ECDLs. Durch die Frequenzselektivität des Gitters ist es möglich die Wellenlänge der Laserdiode durch Verkippen des Gitters zu verstimmten. Weiterhin wird durch die selektive Rückkopplung auch die Linienbreite beeinflusst und kann so in Bereiche unterhalb von 100 kHz gebracht werden [63, 84].

Die Halterung des Gitters ist auf einem Piezoaktor³ montiert, wodurch die Länge des exter-

¹LD-0870-0100-2, TOPTICA Photonics AG

²GH13-18U, Thorlabs GmbH

³PA 8/12 - P-151-00, Piezosystem Jena GmbH

nen Resonators verfahren und die Frequenz des ECDLs fein abgestimmt werden kann. Die Form des Piezoaktors ermöglicht es diesen in einen stabilen Spiegelhalter⁴ zu montieren, so dass die Wellenlänge durch ein gleichzeitiges Verkippen von Piezoaktor und Gitter auch grob manuell durchgestimmt werden kann.

Für einen stabilen kontinuierlichen Betrieb befinden sich alle Elemente des ECDLs auf einer Kupferplatte, die durch zwei Peltierelemente in der Temperatur stabilisiert wird. Ein kompaktes Aluminiumgehäuse sorgt für eine Abschirmung von der Umgebung. Eine zweites, mit Akustikschaum ausgekleidetes Plexiglasgehäuse schirmt den kompletten ECDL zusätzlich vor akustischen Störungen ab.

Wird einer der beiden Resonatoren des ECDLs verstimmt (der interne Resonator durch den Laserdiodenstrom bzw. die Temperatur, der externe Resonator z. B. durch den Piezoaktor) kommt es zu Modensprüngen [85]. Diese können es erschweren, den ECDL auf eine gewünschte Wellenlänge abzustimmen bzw. im Falle einer Spektroskopie über einen atomaren Übergang zu scannen. Zur Vermeidung der Modensprünge wurde eine aktive Stabilisierungsmethode implementiert, die es erlaubt, den internen Resonator des ECDLs auf den externen zu stabilisieren [64, 65]. Diese basiert auf dem von Hänsch und Couillaud entwickelten Polarisationspektroskopieverfahren [86].

Hierfür wird eine $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte in den externen Resonator des ECDLs gestellt. Diese Verzögerungsplatte transferiert die beim Verstimmen des ECDLs typischen Leistungsschwankungen [87] in den Polarisationszustand des ausgehenden Lichts. Mittels eines Polarisationsstrahlteilerwürfels und zweier Photodioden kann der Polarisationszustand detektiert werden. Durch die Differenzbildung der Photodiodensignale und eine entsprechenden Einstellung der $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte ergibt sich das Fehlersignal für die Stabilisierung. Eine $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte dient der Einstellung des Nulldurchgangs des Fehlersignals. Dieses wird über einen PID-Regler an den langsamen Modulationseingang der Stromsteuerung auf den Laserdiodenstrom zurück gekoppelt und beeinflusst somit den internen Resonator des ECDL. Wird der externe Resonator durch Verschieben des Gitters verstimmt, so folgt bei aktiver Stabilisierung der interne Resonator und Modensprünge werden verhindert. Damit ist es möglich den ECDL bis zu 22 GHz weit modensprungfrei zu verstimmen.

Für die Frequenzstabilisierung wird das von der Polarisationspektroskopie stammende Fehlersignal (siehe Abschnitt 3.3.3) über einen PID-Regler an den Piezoaktor des Gitters weitergegeben. Auf einen Piezoverstärker wurde bewusst verzichtet, da sich durch dessen Grundrauschen die Linienbreite des ECDLs signifikant verschlechtert. Zusätzlich kann das Signal als reiner P-Anteil über eine selbst entwickelte Addierer-Schaltung auf den langsamen Modulationseingang der Stromsteuerung (mit einer Bandbreite von 200 kHz) gegeben werden um schnelle Frequenzfluktuationen ausregeln zu können.

An den schnellen Modulationseingang der Stromsteuerung wird die 20 MHz Sinus-Modulation für die PDH-Stabilisierung des Verdopplungsresonators angelegt (siehe Abschnitt 3.3.2). Diese Modulation wird dem Laserdiodenstrom direkt aufgeprägt, wobei die Modulations-

⁴Polaris-K05, Thorlabs GmbH

tiefe maximal 2 mA beträgt. Dies führt zu symmetrischen Seitenbändern im Abstand der Modulationsfrequenz um die Zentralfrequenz der ECDL-Strahlung.

Ein zweistufiger Faraday-Isolator⁵, mit einer Isolation von -57 dB, schützt die Laserdiode vor unerwünschter optischer Rückkopplung. Danach stehen ca. 28 mW als Seed-Strahlung zur Verfügung. Diese wird in einen Trapezverstärker⁶ (*tapered amplifier*, kurz TA) gekoppelt und auf bis zu 1,5 W verstärkt, wobei deren spektralen Eigenschaften erhalten bleibt [12]. Durch die stark asymmetrische Geometrie der Ausgangsfacette des TA ist es notwendig, den Strahl zusätzlich durch eine Zylinderlinse zu kollimieren. Ein Faraday-Isolator schützt den TA vor Rückreflexen aus der anschließenden Verdopplungseinheit.

Wird die Ausgangsleistung des TA durch dessen Strom reguliert ($I_{\max} = 2,6$ A), führt dies zu einer Veränderung der thermischen Last in der Halterung des Halbleiterchips. Dies wiederum führt zu einer Veränderung der Position des Ausgangsstrahls, bis die Temperaturregelung die neuen Lastverhältnisse ausgeregelt hat. Um dies zu vermeiden, wird der TA bei einem festen Stromwert betrieben und dessen Leistung durch eine Kombination von $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte und Polarisationsstrahlteilerwürfel eingestellt. Eine Photodiode ermöglicht die Kontrolle der TA-Ausgangsleistung.

Über eine Faser wird ein Teil des Lichts zu einem Wellenlängenmessgerät⁷ geführt. Mit diesem wird die aktuelle Laserfrequenz bestimmt, was ein einfacheres Auffinden der atomaren Übergänge ermöglicht.

3.3.2 Frequenzverdopplung

Die Fundamentalstrahlung des ECDLs bei 871,6 nm muss in ihrer Frequenz verdoppelt werden, um resonant auf den $6^3P_1 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergang in Quecksilber zu sein. Durch die begrenzte Leistung des TA von 1,5 W und das Bestreben, diesen bei so geringen Leistungen wie möglich zu betreiben, um seine Lebensdauer zu maximieren, wurde die Frequenzverdopplung so effizient wie möglich gestaltet.

Als nicht-lineares Medium wird ein Kaliumniobat-Kristall (KNbO_3) verwendet, der einen der größten nicht-linearen Koeffizienten besitzt und gleichzeitig eine nicht-kritische Typ-1 Phasenanpassung für Wellenlängen im Bereich um 900 nm erlaubt [88, 89]. Für die Wellenlänge von 871,6 nm beträgt der effektive nicht-lineare Koeffizient $d_{\text{eff}} = 13,8$ pm/V und die Phasenanpassungstemperatur $72,1$ °C [90].

Der verwendete Kristall ist 10 mm lang mit planen Endflächen und in a-Richtung geschnitten. Die Endflächen sind antireflektiv für die Fundamentale und die Harmonische beschichtet. Alle wichtigen Parameter sind auch in Anhang D zusammengefasst.

Der Kristall befindet sich in einem *bow-tie*-förmigen Ring-Resonator zur Überhöhung der Fundamentalleistung wie in Abb. 3.7 dargestellt. Diese Resonatorgeometrie ermöglicht kleine Faltungswinkel und dadurch einen geringen Astigmatismus des umlaufenden Strahls an der

⁵IOT-5-870-HP, Thorlabs GmbH

⁶TA-0870-1500-DHP, m2k-laser GmbH

⁷WS/7, HighFinesse GmbH

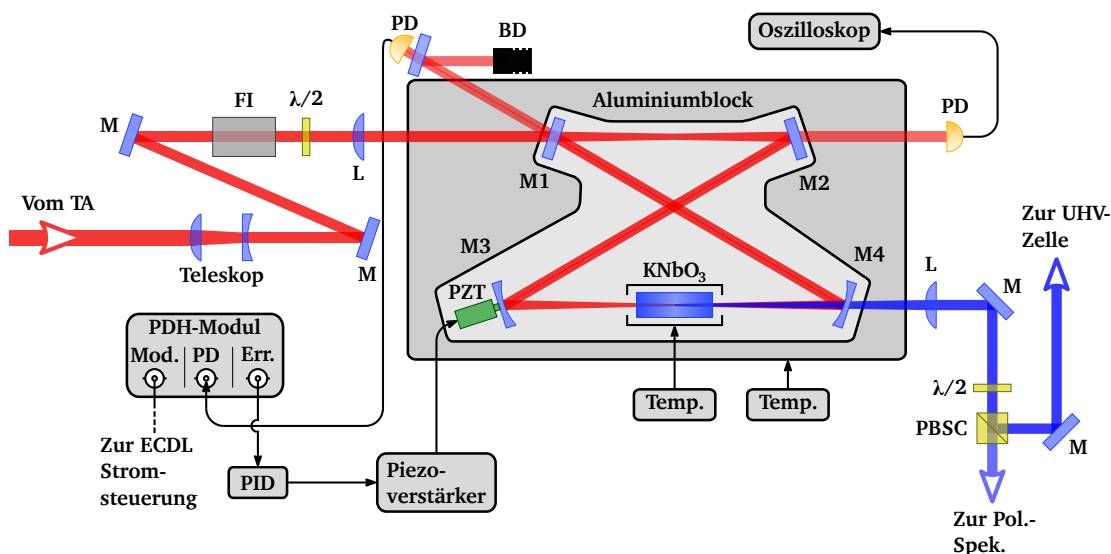


Abbildung 3.7: Aufbau der 871,6 nm Frequenzverdopplung in einem *bow-tie* Ring-Resonator mit Kaliumniobat-Kristall. M: Spiegel, L: Linse, PZT: Piezoaktor, $\lambda/2$: Verzögerungsplatte, PBSC: Polarisationsstrahlteilerwürfel, BD: Strahl-falle, PD: Photodiode, FI: Faradayisolator

Kristallposition. Weiterhin können sich durch den ringförmigen Umlauf des Strahls keine stehenden Wellen ausbilden. Vor dem Resonator befindet sich eine Anordnung von Teleskop und einer einzelnen Linse, um die Mode des einfallenden Strahls auf die Resonatorgrundmode anzupassen. Ein weiterer Faraday-Isolator schützt den Trapezverstärker vor Rückreflexen aus dem Resonator, entstehend durch die Restreflektivität der Kristallendflächen. Die anschließende $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte dreht die Polarisation senkrecht zur Einfallsebene der Resonatorspiegel, um eine möglichst hohe Finesse zu erreichen.

Der Resonator wurde mit einem speziellen Programm (JLaserLab, entwickelt in der gleichen Arbeitsgruppe von Herrn Alexander Bertz [91]) entworfen. Dabei wurde besonders auf einen geringen Astigmatismus im Bereich des Kristalls bei einer gleichzeitig kompakten Geometrie geachtet. Die Letztere ist für die Temperaturstabilisierung des gesamten Resonators wichtig, wie weiter unten erklärt wird. Die Simulation des Strahlengangs im Resonator mit JLaserLab ist in Abb. 3.8 zu sehen, in der auch die Positionen der vier Resonatorspiegel eingezeichnet sind.

Das Licht gelangt durch den teildurchlässigen Spiegel M1, mit einer Reflektivität von 95 % für 871,6 nm, in den Resonator. Die Eintrittsfacette von M1 ist für die Fundamentale antireflexbeschichtet. Spiegel M2 bis M4 sind hochreflektiv für die Fundamentalwellenlänge und antirefektiv für die Harmonische beschichtet. Die Außenseiten sind jeweils antirefektiv für 435,8 nm beschichtet. Spiegel M3 und M4 besitzen einen Krümmungsradius von -75 mm

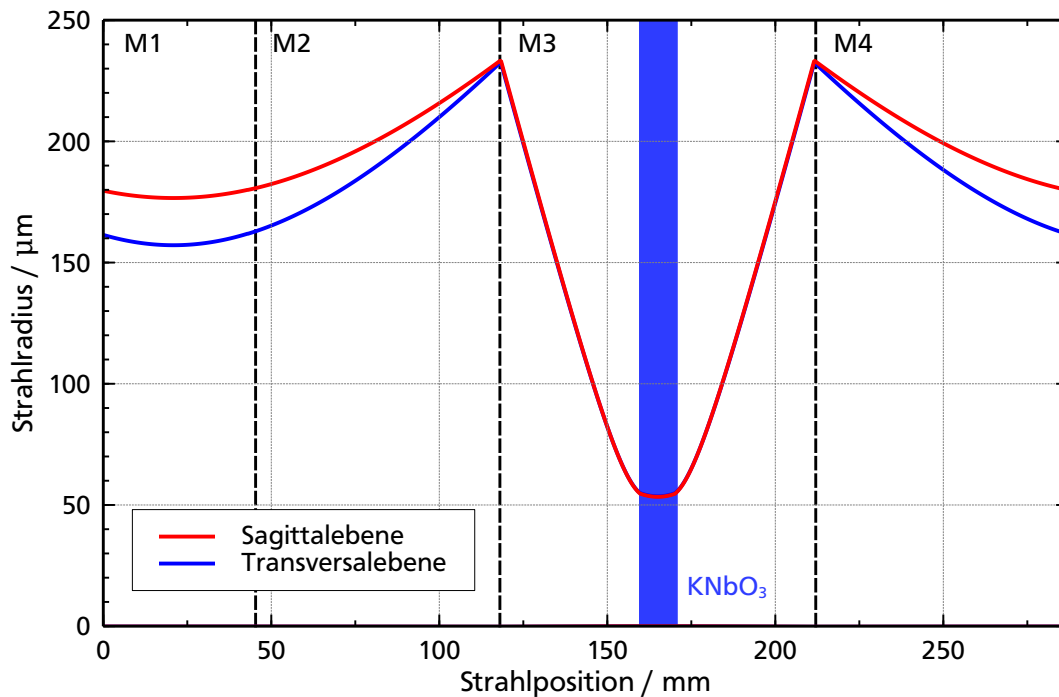


Abbildung 3.8: Strahlverlauf der Fundamentalen in Sagittal- und Transversalebene im 871,6 nm Ring-Resonator, simuliert mit JLaberLab. Eingezeichnet sind die Positionen der vier Resonatorspiegel, wobei der Einkoppelspiegel an der Strahlposition 0 mm steht. Weiterhin ist die Position des Kaliumniobat-Kristalls mit seiner Länge von 10 mm eingezeichnet.

und erzeugen eine Strahltaile von $53,4 \mu\text{m}$ im Kristall. Spiegel M3 ist auf einen Piezoaktor⁸ montiert, um die Länge des Resonators verstimmen zu können. Eine Auflistung der Spiegelparameter ist auch in Anhang D zu finden.

Für den verwendeten Kristall wurde die optimale Strahltaile nach Boyd und Kleinman [92] zu $26,3 \mu\text{m}$ bestimmt. Im Experiment wurde bewusst eine größere Strahltaile gewählt um die Leistungsdichte im Kristall zu verringern und damit Effekten wie BLIIRA (*blue light induced infrared absorption*) und thermischer Linsenbildung vorzubeugen [93], gleichzeitig wurde sie jedoch klein genug gehalten, um mit der begrenzten Fundamentalleistung eine genügend hohe Konversionseffizienz zu erzielen.

Die Stabilisierung des Resonators auf die Fundamentalwellenlänge erfolgt durch die Pound-Drever-Hall Technik mittels eines kommerziellen PDH-Moduls⁹. Dieses Modul besitzt einen Ausgang für das Modulationssignal, einen Eingang für das Photodiodensignal und einen

⁸PA 8/12 - P-151-00, Piezosystem Jena GmbH

⁹miniPDH, TEM Messtechnik GmbH

Ausgang für das Fehlersignal. Die Frequenzmodulation der Fundamentalstrahlung wird, wie in Kapitel 3.6 beschrieben, direkt auf den Strom der Laserdiode aufgebracht. So kann auf einen zusätzlichen, für diesen Zweck normalerweise eingesetzten, elektrooptischen Modulator (EOM) verzichtet werden. Das vom Einkoppelspiegel M1 reflektierte Licht trifft auf eine schnelle Photodiode¹⁰, die mit -15 V in Sperrrichtung vorgespannt ist. Das Signal wird ohne Verstärkung über einen $100\ \Omega$ Widerstand abgegriffen und dem PDH-Modul zugeführt. Dieses erzeugt das klassische PDH-Fehlersignal [66, 67] das direkt an den PID-Regler übergeben wird. Dessen Regelsignal wird durch einen Piezoverstärker¹¹ verstärkt und an den Piezoaktor von Spiegel M3 weitergegeben, wodurch der Regelkreis geschlossen wird.

Durch eine weitere Photodiode kann das durch den Spiegel M2 austretende Lecklicht detektiert werden. Durch Scannen des Piezoaktors von Spiegel M3 kann so die Airy-Funktion des Resonators gemessen und dessen Finesse bestimmt werden. Die theoretisch zu erwartende Finesse $\mathcal{F}_{\text{theo.}}$ des Resonators lässt sich mit der Formel [2]

$$\mathcal{F} = \frac{\pi \cdot \sqrt{\sqrt{R_{M1}R_{M2}R_{M3}R_{M4}}}}{1 - \sqrt{R_{M1}R_{M2}R_{M3}R_{M4}}} \quad (3.2)$$

und den in Tabelle D.2 gegebenen Spiegelparametern zu $\mathcal{F}_{\text{theo.}} = 115,7$ berechnen. Die tatsächlich gemessene Finesse bei einer Fundamentalleistung von 44 mW beträgt $\mathcal{F}_{\text{gem.}} = 95,7 \pm 21,8$. Die Differenz erklärt sich durch die Unsicherheit in der Reflektivität des Einkoppelspiegels von $95 \pm 1\%$ und der Restreflektivität der Kristallbeschichtung. Der Resonator kann aufgrund des hohen Brechungsindex des Kristalls von $n = 2,28$ nicht ohne diesen justiert werden.

Die Phasenanpassung erfolgt, wie bereits weiter oben beschrieben, nicht-kritisch über die Temperatur. Dies hat den Vorteil, dass es keinen *walk-off* im Kristall gibt, der die Verdopplungseffizienz vermindert [94]. Allerdings bedingt diese Methode auch eine präzise Temperaturstabilität des Kristalls, welche bei Kaliumniobat durch die sehr kleine Temperaturbandbreite von 280 mK besonders anspruchsvoll ist [90, 95, 96]. Dafür wurde der gesamte Resonator, inklusive des Kristallofens, in einen massiven 11 kg schweren Aluminiumblock gesetzt, der durch vier Peltierelemente auf $28\text{ }^\circ\text{C}$ und somit ca. 6 K über der Labortemperatur stabilisiert wird. Als weiteres schirmendes Element befindet sich um den Aluminiumblock ein mit Akustikschaum ausgekleidetes Plexiglasgehäuse. Neben der besseren akustischen Abschirmung wird hierdurch die Temperaturstabilität nochmals verbessert.

Der Kristallofen besteht aus einem kleinen Kupferblock, der den KNbO_3 -Kristall umschließt. Der Kristall liegt nur mit zwei der Längsseiten direkt auf dem Kupferblock auf, da mechanische Spannungen aufgrund der sensiblen Domänenstruktur unbedingt zu vermeiden sind [96]. Eine Abbildung des Ofens ist in Anhang D zu finden. Der Kupferblock wird ebenfalls mit einem Peltierelement auf die Phasenanpassungstemperatur stabilisiert. Die Kaltseite des

¹⁰BPW24R, Vishay Electronic GmbH

¹¹12V40, Piezosystem Jena GmbH

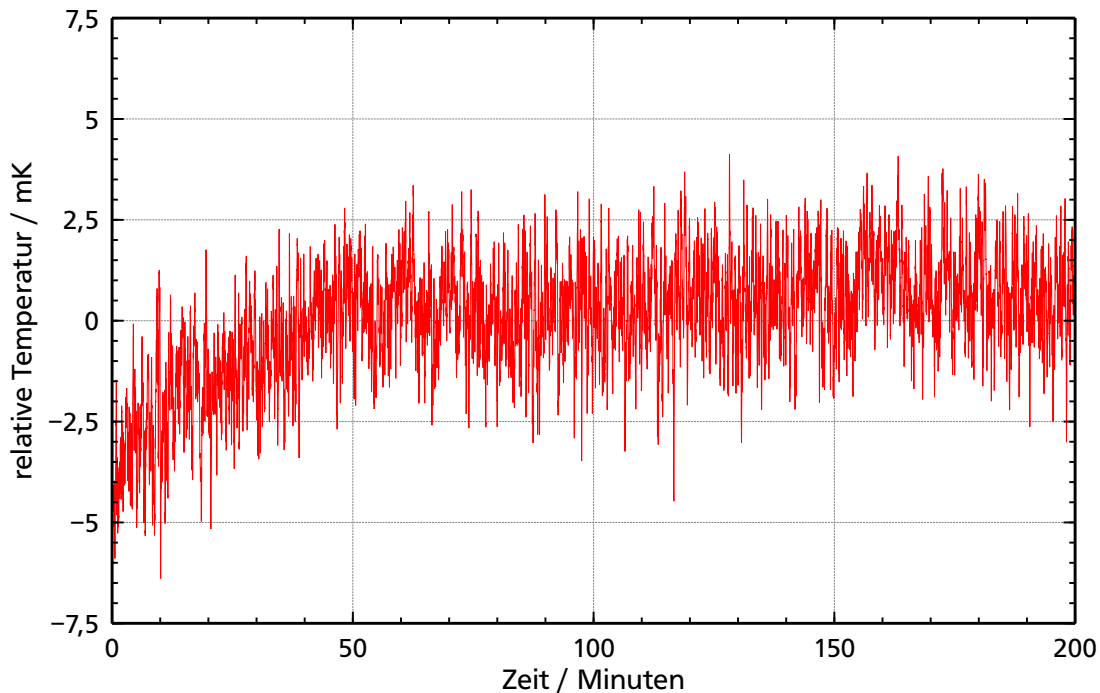


Abbildung 3.9: Temperaturstabilität des KNbO_3 -Kristallofens, gemessen mit einem $100\text{ k}\Omega$ -Thermistor. Aufgetragen ist die relative Temperaturabweichung zu einer Absoluttemperatur von ca. $51,51\text{ }^\circ\text{C}$.

Peltierelements ist über die Verstellmechanik des Kristallofens thermisch mit dem Aluminiumblock gekoppelt. Die Mechanik ermöglicht ein Verkippen des Kristalls in der horizontalen und vertikalen Ebene, sowie ein Verfahren des Kristalls in der Ebene senkrecht zu seiner Längsachse. Hierdurch kann die optimale Stelle im Kristall für die Frequenzkonversion gefunden werden. Dies ist wichtig, da Kaliumniobat viele Fehlstellen im Kristallgitter aufweisen kann, die sich negativ auf die nicht-lineare Konversionseffizienz auswirken [97, 98].

Ein $100\text{ k}\Omega$ -Thermistor nahe des Kristalls ermöglicht die Temperaturmessung. Die Elektronik für die Temperaturstabilisierung basiert auf einem kommerziellen Chip¹², dessen Außenbeschaltung und Platinendesign für eine präzise Regelung optimiert wurde.

Zur Bestimmung der Temperaturstabilität des Kristallofens wurde anstelle des KNbO_3 -Kristalls ein $100\text{ k}\Omega$ -Thermistor im Ofen platziert und dessen Widerstandswert mit einem Präzisionsmultimeter¹³ ausgelesen. Eine Messung kurz nach dem Aufheizvorgang auf eine Temperatur von ca. $51,51\text{ }^\circ\text{C}$ ist in Abb. 3.9 zu sehen. Nach 50 Minuten hat sich die Temperatur auf den eingestellten Wert stabilisiert und die Schwankungen sind kleiner als 10 mK .

¹²WTC3243, Wavelength Electronics, Inc.

¹³2010 Multimeter, Keithley Instruments

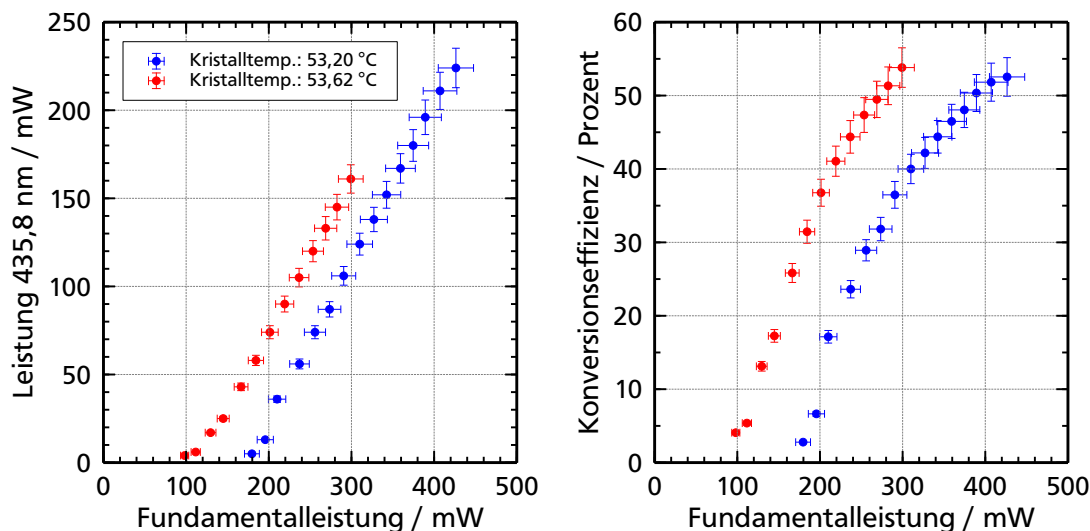


Abbildung 3.10: Links: Ausgangsleistung der Harmonischen, aufgetragen über die eingekoppelte Fundamentalleistung bei 871,6 nm für zwei Kristalltemperaturen.

Rechts: Konversionseffizienz der Frequenzverdopplung, aufgetragen über die eingekoppelte Fundamentalleistung für zwei Kristalltemperaturen.

Der Kristallofen innerhalb des temperaturstabilisierten Aluminiumblocks ist somit bestens für den KNbO_3 -Kristall geeignet.

Eine Messung der erreichten Leistungen bei 435,8 nm und der zugehörigen Konversionseffizienzen für zwei verschiedene Kristalltemperaturen von 53,20 °C und 53,62 °C ist in Abb. 3.10 dargestellt. Die Leistung wurde jeweils hinter der Kollimationslinse der Harmonischen gemessen. Bei der aufgetragenen Fundamentalleistung handelt es sich um die tatsächlich in den Resonator eingekoppelte, also moden-angepasste Leistung. Diese wird bestimmt, indem die Strahlfalle in Abb. 3.7 durch ein Leistungsmessgerät ersetzt wird, das die vom Einkoppelspiegel reflektierte Leistung misst. Dabei kann über das Verhältnis der gemessenen Leistung bei stabilisiertem zu scannendem Resonator die Einkoppeleffizienz errechnet werden. Diese liegt für die maximal eingekoppelten Leistungen bei ca. 60 % und erklärt sich über das unsaubere Strahlprofil des Trapezverstärkers. Der Resonator wirkt wie ein Modenfilter in dem nur die TEM_{00} -Mode umlaufen kann. Die Leistung in den höheren TEM-Moden des Trapezverstärkers steht für die Frequenzverdopplung nicht zur Verfügung.

Für eine Kristalltemperatur von 53,20 °C wird eine maximale Konversionseffizienz von 52,5 % erreicht, während diese bei einer Kristalltemperatur von 53,62 °C bei 53,8 % liegt. Die maximale Ausgangsleistung der Harmonischen sind für diese Temperaturen 224 mW,

respektive 161 mW. Wird die Fundamentalleistung weiter erhöht, bricht die Konversionseffizienz und somit auch die Leistung der Harmonischen ein. Dies wird durch den als BLIIRA bekannten Effekt in Kaliumniobat und einer einhergehenden thermischen Linsenbildung hervorgerufen und wurde in mehreren Experimenten beobachtet [93, 99–102].

Eine Erklärung für das Auftreten von BLIIRA basiert auf dem Ladungsträgertransfermodell [93]. Fehlstellen zwischen Leitungs- und Valenzband in Kaliumniobat erzeugen für Löcher als positive Ladungsträger tiefe Fallen nahe des Leitungsbandes und seichte Fallen nahe des Valenzbandes. Die seichten Fallen sind durch thermische Ionisation frei von Löchern und das infrarote Licht der Fundamentalen kann die tiefen Fallen nicht besetzen. Das blaue Licht kann jedoch die tiefen Fallen anregen, wodurch Löcher im Valenzband entstehen, die in seichte Fallen gelangen können. Hierdurch kann auch das IR-Licht absorbiert werden. Je mehr blaues Licht vorhanden ist, desto stärker wird dieser Effekt.

Weiterhin ist zu beachten, dass KNbO_3 im Bereich um 460 nm auch eine hohe passive Absorption von durchschnittlich 4,8 % aufweisen kann, die bei niedrigeren Wellenlängen noch anwächst. Diese passive Absorption ist wie auch das Ausmaß des BLIIRA von Kristall zu Kristall stark unterschiedlich [93, 100].

Werden diese Eigenschaften von Kaliumniobat beachtet, lassen sich auch die in Abb. 3.10 gezeigten Verläufe für die Konversionseffizienz interpretieren. Durch die hohe Absorption im Blauen heizt sich der Kristall lokal im Zentrum um die Strahltaile auf. Dieser Effekt wird durch das Auftreten von BLIIRA noch zusätzlich verstärkt. Die Temperatur des Kristalls nahe der Strahltaile ist größer als die am Ofen eingestellte Temperatur und liegt in etwa bei der in [88] gemessenen Phasenanstimmungstemperatur von ungefähr $55\text{ }^\circ\text{C}$ und somit erheblich neben der mit [90] bestimmten theoretischen Phasenanstimmungstemperatur von $72,1\text{ }^\circ\text{C}$. Die Phasenanstimmungstemperatur kann aber aufgrund der, beim schwer zu handhabenden Kristallwachstum auftretenden, Fehlstellen in Kaliumniobat auch variieren [97].

Für eine Ofentemperatur von $53,62\text{ }^\circ\text{C}$ ist die Konversionseffizienz für niedrigere Fundamentalleistungen höher, da die Kristalltemperatur näher an der Phasenanstimmungstemperatur liegt und nicht mehr so stark durch die Fundamentale aufgeheizt werden muss.

Ab einer bestimmten Kristalltemperatur wird der radiale Temperaturgradient so groß, dass sich eine thermische Linse im Kristall ausbildet, welche die Konversionseffizienz einbrechen lässt und sich auch in einer Veränderung des Strahlprofils des blauen Lichts bemerkbar macht [103]. Das Auftreten der thermischen Linse beschränkt die maximal mögliche Leistung der Harmonischen. Wie aus Abb. 3.10 ersichtlich, tritt die thermische Linse bei etwa gleichen Konversionseffizienzen auf. Da diese aufgrund der Phasenanstimmung von der Kristalltemperatur abhängen, ist dies ein Indiz dafür, dass die lokalen Kristalltemperaturen beim Entstehen der thermischen Linse in etwa gleich sind.

Hat sich die Temperatur des Kristalls stabilisiert, bleibt auch die 435,8 nm Ausgangsleistung stabil. Eine Leistungsmessung der Harmonischen über einen Zeitraum von 60 Minuten ist in Abb. 3.11 aufgetragen. Die Blau-Leistung weist in dieser Messung eine Standardabweichung von 0,56 mW und eine Spitze-zu-Spitze Schwankung von 4,5 mW bei einer Durchschnitts-

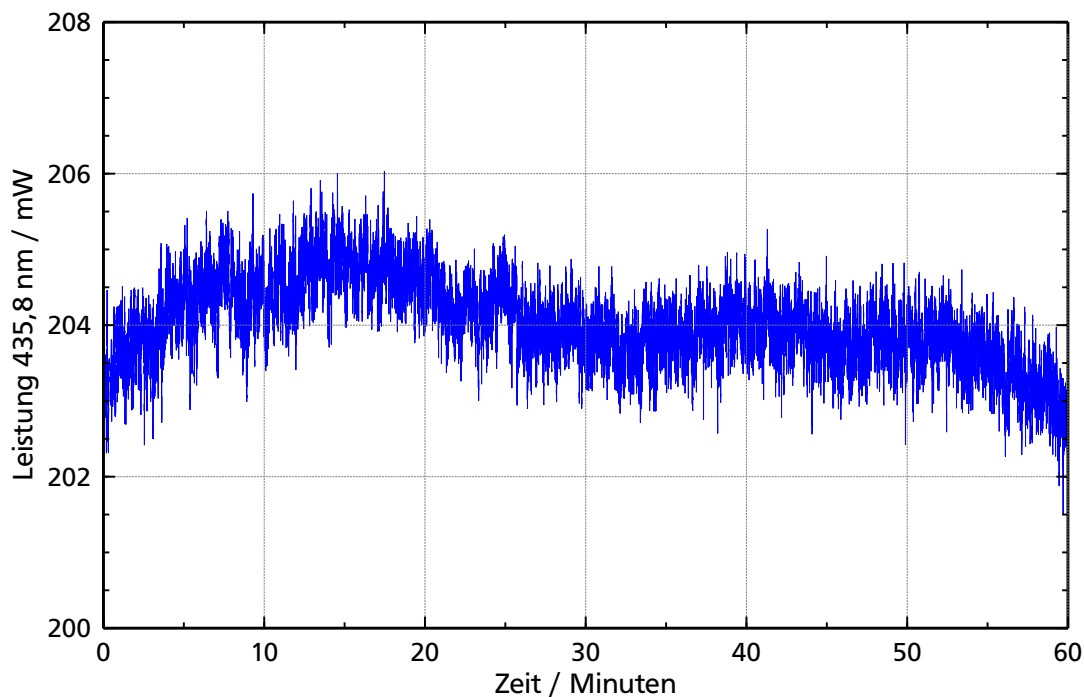


Abbildung 3.11: Leistungsmessung der 435,8 nm Strahlung aus dem Resonator über einen Zeitraum von 60 Minuten.

leistung von 204,0 mW auf. Dabei fand keinerlei Leistungs- bzw. Frequenzstabilisierung der Fundamentalstrahlung statt.

Der blaue Strahl wird nach Verlassen des Resonators durch den Spiegel M4 mit einer Linse kollimiert. Mittels einer $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte und eines Polarisationsstrahlteilerwürfels kann ein Teil der Leistung für die Frequenzstabilisierung verwendet werden, während der Hauptteil zur Überlagerungszone in die UHV-Zelle geleitet wird.

3.3.3 Frequenzstabilisierung

Das 435,8 nm Lasersystem wird durch eine Polarisationspektroskopie, wie sie in Abschnitt 3.2.1 vorgestellt wird, in seiner Frequenz stabilisiert. Da hierbei ein atomarer Übergang verwendet wird, handelt es sich um eine Absolutstabilisierung der Frequenz. Der hierfür verwendete Aufbau ist in Abb. 3.12 dargestellt und weicht nur in wenigen Details von dem in Abschnitt 3.2.1 gezeigten Referenzaufbau ab. Für die Güte der zirkularen Polarisation des Pumpstrahls ist es entscheidend, die $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte so zu stellen, dass nach dieser möglichst wenige Spiegel passiert werden. Die verwendeten Spiegel weisen eine leicht unterschiedliche Reflektivität für s- bzw. p-polarisiertes Licht auf. Dies führt für zirkular polarisiertes Licht zu einer Elliptizität und somit einer unsaubereren Polarisation. Diese ist

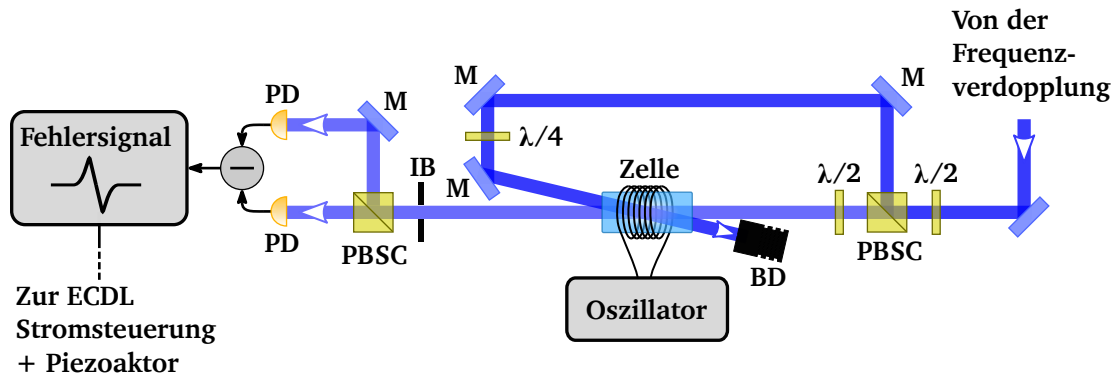


Abbildung 3.12: Aufbau der 435,8 nm Polarisationspektroskopie für die Frequenzstabilisierung. M: Spiegel, $\lambda/2$ u. $\lambda/4$: Verzögerungsplatte, PBSC: Polarisationsstrahlteilerwürfel, BD: Strahlfalle, PD: Photodiode, IB: Irisblende

jedoch für die Polarisationspektroskopie besonders wichtig.

Der untere Zustand des spektroskopierten $6^3P_1 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergangs ist Aufgrund des großen energetischen Abstandes zum Quecksilbergrundniveau 6^1S_0 bei Raumtemperatur in der Quecksilberdampfzelle nicht bevölkert. Ein Pumpen des 6^3P_1 -Niveaus durch den UV-Laser ist ausgeschlossen, da während dieser Arbeit sämtliche UV-Leistung für das eigentliche LWI-Experiment benötigt wurde.

Eine elegantere Methode stellt in diesem Fall das Zünden einer Radiofrequenz Entladung (rf-Entladung) in der spektroskopierten Zelle dar, wie es z.B. auch in [104, 105] zur Anwendung kommt. Hierbei wird ein rf-Feld mit einer Frequenz induktiv über eine Spule bzw. eine Antenne in die Zelle gekoppelt. Die Frequenz des rf-Felds liegt dabei typischerweise im Bereich mehrerer MHz [106]. Durch dieses Feld werden Ionen und Elektronen in der Zelle beschleunigt, so dass durch Stöße ein Plasma entsteht und somit Atome in höhere Zustände angeregt werden [107, 108]. Ein großer Vorteil dieses Verfahrens ist, dass keine Elektroden innerhalb der Zelle liegen und somit Verunreinigungen einbringen könnten [109].

Die verwendete Quecksilberdampfzelle hat eine Länge von 70 mm und einen Durchmesser von 19 mm. Die unbeschichteten Zellenfenster bestehen aus Quarzglas, sind in einem Winkel von 2° angebracht und weisen eine Keilform mit einem Winkel von ebenfalls 2° auf, um das Auftreten eines Etalonneffekts zu vermeiden. Die Zelle ist mit einem Tropfen vakuumgereinigtem Quecksilber im natürlichen Isotopengemisch und 0,5 mbar Argon gefüllt. In Versuchen hat sich gezeigt, dass sich Argon günstig auf das Zündverhalten der rf-Entladung auswirkt, ähnlich wie Xenon die Entladung in Rubidium-Zellen unterstützt [107, 110]. Argon wird auch in den als Referenzstandards verwendeten ^{198}Hg Entladungslampen genutzt. Entsprechende Untersuchungen zeigen, dass sich die Frequenzverschiebung durch Argon bei dem vorhanden Druck von 0,5 mbar unterhalb der natürlichen Linienbreite befindet [105, 111–113].

Die Zellenfenster sind mit einem Widerstandsdraht umwickelt und können durch diesen

geheizt werden. Dies ist notwendig, um ein Kondensieren von Quecksilber an den Fenstern zu vermeiden.

Als Oszillator für die rf-Entladung wird ein kommerzielles CB-Funkgerät¹⁴ mit einer maximalen Sendeleistung von 4 W bei einer Frequenz von 27 MHz verwendet [114]. Die Einkopplung erfolgt über eine Drahtwicklung als Antenne um die Zelle. Die Impedanz der Antenne kann über eine Anordnung von Spulen und einen Drehkondensator angepasst werden, um möglichst viel Leistung in die Zelle koppeln zu können.

Die Zelle ist inklusive ihrer Halterung in einem Aluminiumgehäuse untergebracht, das mit der Erdleitung verbunden ist und somit als Schirmung dient. Dies verhindert, dass die rf-Leistung nach außen gelangt und störend in die restliche Elektronik des Lasersystems koppeln kann.

Eine Irisblende verhindert, dass Reflexe des Pumpstrahls von den Zellenfenstern zu den Photodioden gelangen. Die verwendeten Photodioden¹⁵ besitzen eine hohe Bandbreite von 50 MHz und sind im Wellenlängenbereich von 436 nm mit 0,3 A/W sehr sensitiv. Durch die große photosensitive Fläche von 5 mm × 5 mm ist keine Fokussierung des Probenstrahls notwendig. Die Differenzelektronik wurde in Anlehnung an die in [59] verwendete Elektronik selbst gebaut.

Der Pumpstrahl besitzt einen Durchmesser von 1,93 mm, die Leistung vor der Zelle beträgt 4,8 mW. Dies entspricht einer Leistungsdichte von $I_{\text{pump}} = 163,8 \text{ mW/cm}^2 = 11,7 \cdot I_{\text{sat}}$. Der Durchmesser des Probenstrahls beträgt 1,90 mm, mit einer Leistung von 190 μW nach der Zelle, gemessen ohne Entladung. Die Leistungsdichte beträgt entsprechend 6,69 mW/cm². Die Leistung des Probenstrahls vor der Zelle beträgt jedoch 4,5 mW. Da durch die Entladung Quecksilber in die Zellenfenster diffundiert und einen ungleichmäßigen, reflektierenden Film bildet, wird die Transmission erheblich verschlechtert [115]. Dieser Effekt wird auch nicht durch das Heizen der Zellenfenster verhindert. Über die Leistungsdichten innerhalb der Zelle lässt sich keine eindeutige Aussage treffen, da die Diffusion nicht gleichmäßig bei beiden Zellenfenstern stattfindet. Auf genauere Messungen diesbezüglich wurde verzichtet, da es an dieser Stelle nur auf die Qualität der Frequenzstabilität ankommt und diese hierdurch nicht signifikant beeinträchtigt wird.

Der Winkel Θ zwischen Pump- und Probenstrahl beträgt ca. 30 mrad und führt somit zu einer verbleibenden Dopplerverbreiterung $\gamma_{\text{geom.}}$ der gesättigten Absorption. Diese lässt sich über die Formel

$$\gamma_{\text{geom.}} = \frac{1}{2 \cdot \ln 2} \cdot \Theta \cdot \gamma_D \quad (3.3)$$

aus [116] berechnen. Dabei steht γ_D für die Dopplerbite des Übergangs und beträgt für eine Temperatur von 60 °C $\gamma_D = 634 \text{ MHz}$. Somit ergibt sich ein $\gamma_{\text{geom.}} = 14 \text{ MHz}$.

¹⁴MC-8 MARK II FMN, Team Electronic

¹⁵S9195, Hamamatsu Photonics

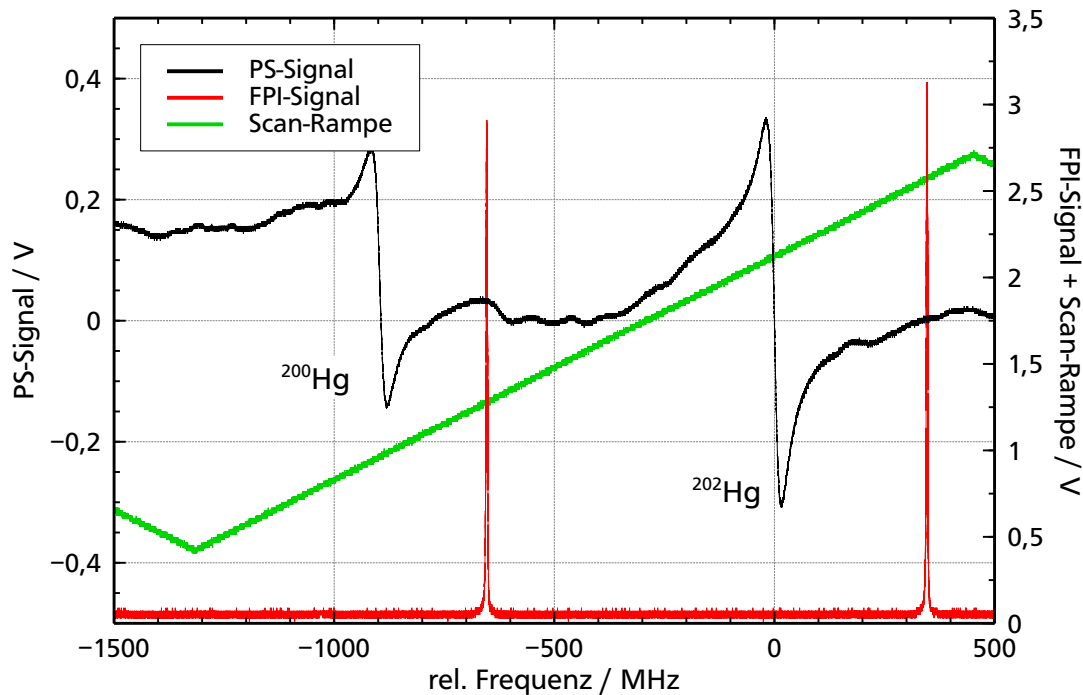


Abbildung 3.13: Frequenzscan über die bosonischen Quecksilberisotope ^{200}Hg und ^{202}Hg und das daraus resultierende Signal der Polarisationspektroskopie.

Abbildung 3.14 zeigt einen Frequenzscan über die Quecksilberisotope ^{200}Hg und ^{202}Hg , aufgenommen mit einem Oszilloskop. Die abgebildete Scan-Rampe liegt am Piezoaktor des 871,6 nm ECDL an. Zusätzlich wurde eine Teil des blauen Laserlichts in einen konfokalen Fabry-Pérot Resonator¹⁶ mit einem freien Spektralbereich von $1,00 \pm 0,01$ GHz und einer Finesse > 320 eingekoppelt. Anhand dieses Signals wurde die Frequenzachse kalibriert und auf ^{202}Hg zentriert. Die Verschiebung der beiden Isotope ist in [117] mit 900 MHz angegeben und kann durch diese Messung, zwischen den Mittelpunkten der dispersiven Signale, zu 896 MHz abgeschätzt werden. Sie liegt damit im Fehlerintervall des freien Spektralbereichs des Resonators.

Eine Vergrößerung des Fehlersignals für das ^{202}Hg Isotop ist in Abb. 3.14 zu sehen. Durch Verschieben des Nullpunkts kann der Laser in einem Bereich von ± 6 MHz um die Zentralfrequenz des Übergangs abgestimmt werden. Wird der Regelkreis über den Piezoaktor des ECDLs und dessen Stromsteuerung geschlossen, ergibt sich das in rot dargestellte Signal. Die Steigung des Fehlersignals wurde mittels einer Geradenanpassung zu 32,54 mV/MHz bestimmt. So ist es möglich die Spannungsfuktuation bei geschlossenem Regelkreis in eine

¹⁶FPI 100, TOPTICA Photonics AG

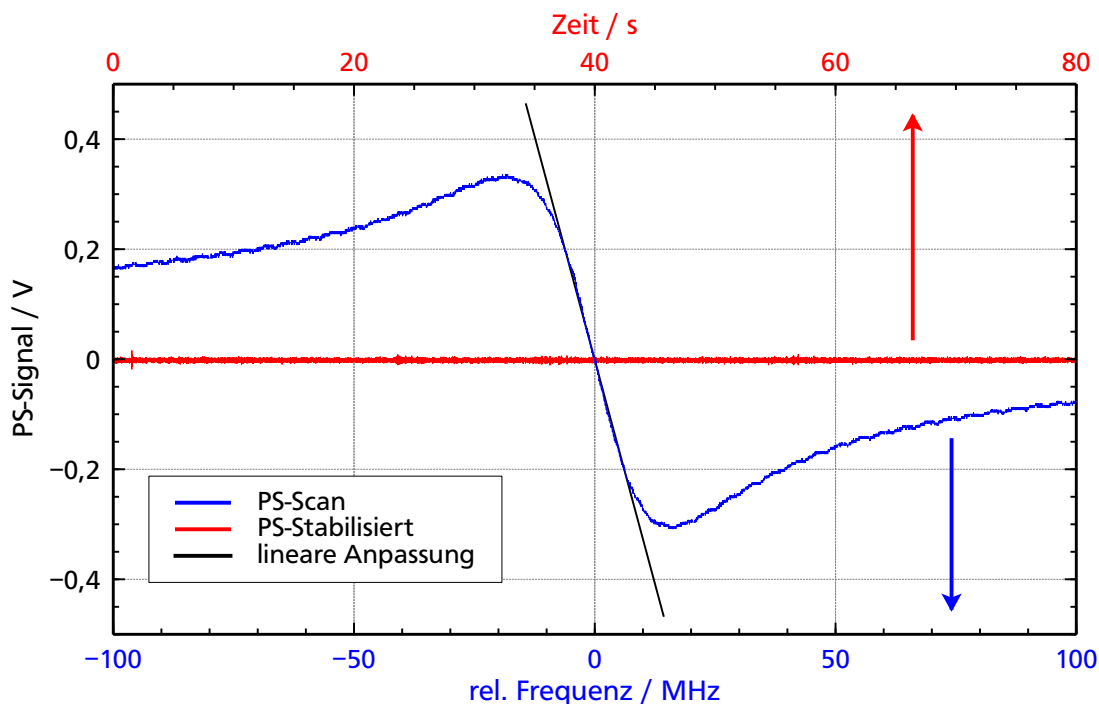


Abbildung 3.14: Vergrößerte Darstellung des Fehlersignals für einen Scan über das ^{202}Hg Isotop in blau und das Fehlersignal beim Schließen des Regelkreises in rot. Die schwarze Gerade ist eine lineare Anpassung an die Steigung des Fehlersignals.

Frequenzabweichung zu überführen, siehe Abb. 3.15. In der ersten Hälfte dieser Messung wurde die Stabilisierung nur über den Piezoaktor des ECDLs realisiert. Dabei ist die Bandbreite durch den Aktor auf wenige kHz beschränkt. Für die Stabilität der Frequenz ergibt sich eine Standardabweichung von 174 kHz und eine Spitze-zu-Spitze Abweichung von 1,4 MHz. In der zweiten Hälfte wird zusätzlich die Stabilisierung über den Laserdiodenstrom zugeschaltet. Dies entspricht einer Erhöhung der Regelbandbreite durch einen schnellen P-Anteil. Dadurch verbessert sich die Standardabweichung auf 60 kHz und die Spitze-zu-Spitze Abweichung beträgt nur noch 480 kHz.

Der Ausschnitt zeigt eine Vergrößerung des Fehlersignals für 40 ms ab Sekunde 6. Hier ist eine Restschwingung mit einer Frequenz von ca. 1,09 kHz zu erkennen. Diese wird durch die auf den Tisch übertragene Vibration des Vakuumpumpstands verursacht und spricht eine Resonanzfrequenz des ECDL-Gitterhalters an. Diese Schwingung liegt im zeitlichen Maßstab jedoch drei Größenordnungen über der maximalen Kohärenzzeit im LWI-Experiment, gegeben durch die Wechselwirkungszeit der Atome mit den Laserstrahlen von $t_{\text{WW}} = 5,4 \mu\text{s}$ (siehe auch Abschnitt 2.4).

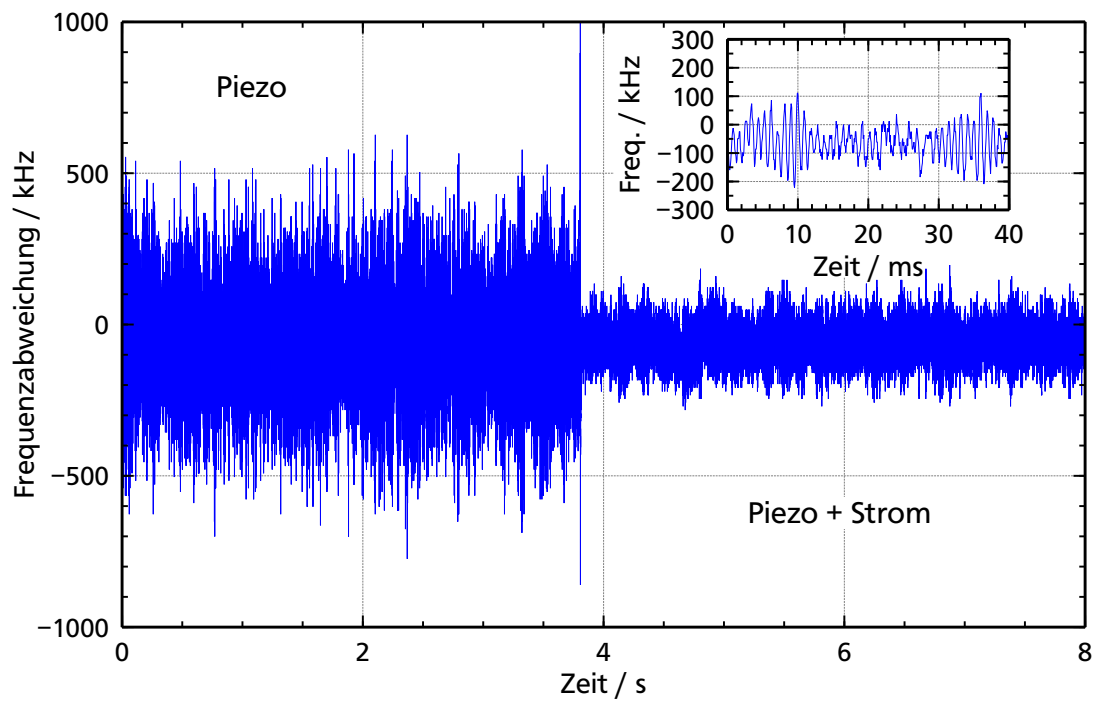


Abbildung 3.15: Verbleibende Frequenzschwingung beim Schließen des Regelkreises. In der linken Hälfte wurde nur der ECDL-Piezoaktor für die Stabilisierung verwendet. Rechts wurde das Regelsignal zusätzlich auf den Laserdiodenstrom geführt. Der Ausschnitt zeigt eine Zeitspanne von 40 ms ab Sekunde 6.

3.4 Das 546,1 nm Lasersystem

In den folgenden Abschnitten wird das 546,1 nm Lasersystem vorgestellt. Ähnlich dem vorangegangenen System lässt sich der Aufbau in die drei Module ECDL, Frequenzverdopplung und Frequenzstabilisierung aufteilen.

3.4.1 ECDL

Die Basis für die Erzeugung der Fundamentalstrahlung bei 1092,2 nm für die anschließende Frequenzverdopplung bildet ein ECDL in Littrow Anordnung mit einer Hochleistungslaserdiode¹⁷. Der Aufbau beider Module ist in Abb. 3.16 dargestellt. Die Mechanik des ECDLs und die Art seines Aufbaus ist dabei identisch mit der des 871,6 nm ECDL aus Abschnitt 3.3.1. Im Folgenden werden deshalb nur die abweichenden Komponenten explizit benannt. Für die Rückkopplung wird ein holographisches Gitter¹⁸ verwendet, das durch einen Piezoaktor verfahren werden kann. Um die dabei auftretenden Modensprünge zu vermeiden, wird wie zuvor das Stabilisierungsverfahren aus [64, 65] verwendet, um den internen auf den externen Resonator des ECDLs zu stabilisieren (siehe Abschnitt 3.3.1). Damit ist es möglich den ECDL über 36 GHz weit modensprungfrei zu verstimmen.

Für die Frequenzstabilisierung des ECDLs wird das Fehlersignal aus der Polarisationspektroskopie (siehe Abschnitt 3.4.3) über einen PID-Regler an den Piezoaktor des Gitters gegeben. Zusätzlich wird das Fehlersignal über eine Addiererschaltung als P-Regler auf den langsamen Modulationseingang der Stromsteuerung geführt.

Um Störungen des ECDLs durch Rückreflexe aus dem Verdopplungsresonator zu unterbinden, befinden sich zwei Faraday-Isolatoren direkt nach dem ECDL im Strahlengang. Ein kleiner Teil des Lichts wird über einen Polarisationsstrahlteilerwürfel ausgekoppelt und zur Kontrolle der Laserfrequenz in das Wellenlängenmessgerät geführt.

Danach steht für die Frequenzverdopplung eine maximale Leistung von 138 mW zur Verfügung.

3.4.2 Frequenzverdopplung

Für den im LWI-Schema schwach koppelnden Laser bei 546,1 nm wird nur eine geringe Leistung von kleiner 4 mW benötigt. Damit auf eine Verstärkung der Fundamentalleistung, z. B. durch einen Faserverstärker, verzichtet werden kann, wurde als nicht-lineares Medium ein Lithiumniobat-Kristall (LiNbO_3) gewählt. Mit einem effektiven nicht-linearen Koeffizienten von $d_{\text{eff}} = 4,45 \text{ pm/V}$ ist dieses Material gegenüber Lithiumtriborat mit $d_{\text{eff}} = 0,85 \text{ pm/V}$ weit effizienter, durch eine geringere Temperaturbandbreite und den photorefraktiven Effekt allerdings auch schwerer zu handhaben [90, 118, 119].

Der verwendete Kristall besitzt eine Länge von 20 mm und ist für eine nicht-kritische Phasen Anpassung mit den Kristallwinkeln $\Theta = 90^\circ$ und $\phi = 0^\circ$ geschnitten. Durch eine Dotierung des Kristalls mit 5 mol% Magnesiumoxid wird die Phasen Anpassungstemperatur auf $171,1^\circ \text{C}$

¹⁷LD-1080-0300-1, TOPTICA Photonics AG

¹⁸GH13-12V, Thorlabs GmbH

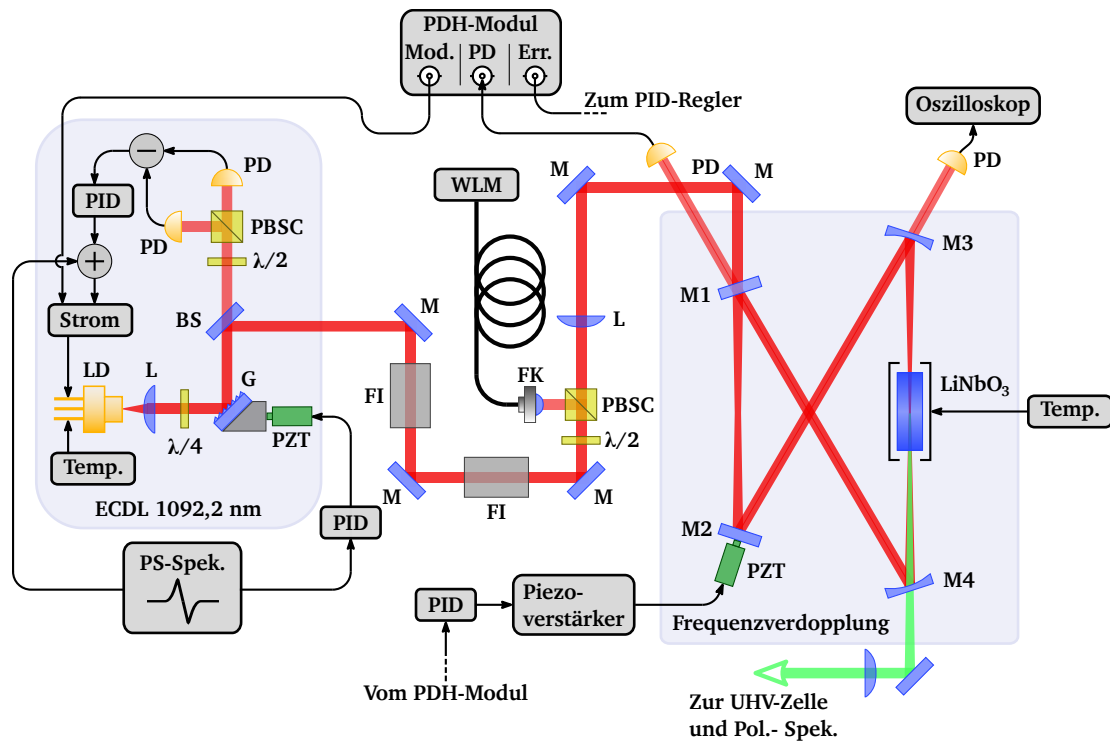


Abbildung 3.16: Aufbau des 1092,2 nm ECDL mit anschließender Frequenzverdopplung in einem *bow-tie* Ring-Resonator mit Lithiumniobat-Kristall. M: Spiegel, BS: Strahlteiler, G: Gitter, L: Linse, PZT: Piezoaktor, $\lambda/2$ u. $\lambda/4$: Verzögerungsplatte, PBSC: Polarisationsstrahlteilerwürfel, BD: Strahlfalle, PD: Photodiode, FI: Faradayisolator, FK: Faserkoppler

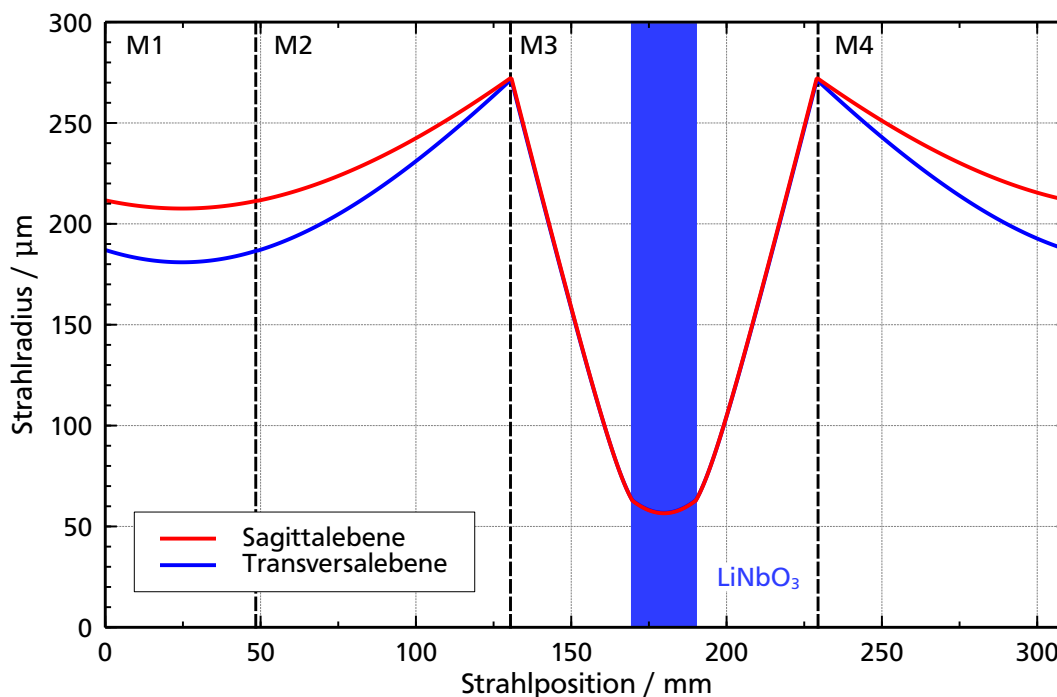


Abbildung 3.17: Strahlverlauf der Fundamentalen in Sagittal- und Transversalebene im 1092,2 nm Ring-Resonator, simuliert mit JLASERLab. Eingezeichnet sind die Positionen der vier Resonatorspiegel, wobei der Einkoppelspiegel an der Strahlposition 0 mm steht. Weiterhin ist die Position des Lithiumniobat-Kristalls mit seiner Länge von 20 mm eingezeichnet.

erhöht [90]. Dies minimiert den photorefraktiven Effekt, der bei Temperaturen über 170 °C stark abnimmt bzw. vollständig unterdrückt wird [120]. Die Stirnseiten des Kristalls sind poliert und jeweils für die Fundamentale und die Harmonische antireflektiv beschichtet. Die wichtigsten Kristallparameter sind ebenfalls in Anhang D zusammengefasst.

Die Fundamentalleistung bei 1092,2 nm wird in einem *bow-tie* förmigen Ring-Resonator überhöht. Der schematische Aufbau dieses Resonators ist Abb. 3.16 zu entnehmen. Die für den Resonator verwendeten Spiegel sind identisch mit denen der ersten Verdopplungsstufe aus [61]. Diese Spiegel wurden so gewählt, dass die Beschichtung die gesamte Bandbreite eines Yb-Faserverstärkers von 1010 nm bis 1100 nm abdeckt und somit flexibel für diesen Wellenlängenbereich zu verwenden sind. Die Geometrie des Resonators wurde mit dem Programm JLASERLab [91] an den LiNbO₃-Kristall angepasst. Dabei wurde besondere Rücksicht auf einen möglichst geringen Astigmatismus im Fokusbereich des Kristalls genommen, um einen runden Ausgangsstrahl der Harmonischen zu gewährleisten. Die Simulation des Strahlengangs ist in Abb. 3.17 dargestellt. Vor dem Resonator befindet sich eine plan-konvexe

Linse für die Modenanpassung des ECDL-Strahls an die Resonatormode. Der Laserstrahl gelangt durch den Einkoppelspiegel M1 mit einer Reflektivität von $97,0 \pm 0,5\%$ in den Resonator. Die außerhalb des Resonators liegende Seite des Spiegels M1 ist für die Fundamentale antireflektiv beschichtet. Die Spiegel M2 bis M4 sind auf der Innenseite des Resonators mit einer hochreflektiven Beschichtung mit $R > 99,85\%$ für die Fundamentale versehen, die Außenseiten sind für die Harmonische mit $R < 0,2\%$ antireflektiv beschichtet. Um einen Fokus im Kristall zu erzeugen, besitzen die Spiegel M3 und M4 einen Krümmungsradius von -75 mm . Hierdurch ergibt sich eine Strahltaile von $56,8\ \mu\text{m}$ im Zentrum des Kristalls. Nach dem Formalismus von Boyd und Kleinman [92] beträgt die optimale Strahltaile $41,7\ \mu\text{m}$, durch die vorgegebenen Spiegel kann diese nicht ganz erreicht werden. Die Parameter der eingesetzten Spiegel sind in Anhang D zusammengefasst.

Der Resonator wird durch die Pound-Drever-Hall Technik auf die Fundamentalstrahlung stabilisiert. Hierfür wird wieder ein kommerzielles PDH-Modul¹⁹ verwendet. Für die Frequenzmodulation wird das Oszillatorsignal über den schnellen Modulationseingang der Laserdioden-Stromsteuerung direkt auf den Laserdiodenstrom moduliert und so die Seitenbanden erzeugt. Das vom Einkoppelspiegel reflektierte Licht trifft auf eine schnelle Photodiode²⁰, welche die Seitenbanden detektiert. Hierfür ist die Diode mit -15 V in Sperrrichtung vorgespannt und das Signal wird über einen $100\ \Omega$ Widerstand unverstärkt abgegriffen. Das vom PDH-Modul ausgegebene Fehlersignal wird an einen PID-Regler gegeben. Das Regelsignal wird von einem Piezoverstärker²¹ verstärkt und an den Piezoaktor²² von Spiegel M2 angelegt, um den Regelkreis zu schließen.

Das Lecklicht durch den Resonatorspiegel M3 wird von einer weiteren Photodiode detektiert. So kann durch Scannen des Piezoaktors von Spiegel M2 die Airy-Funktion des Resonators gemessen werden. Die daraus bestimmte Finesse des Resonators mit Kristall und Licht in p-Polarisation beträgt $\mathcal{F}_{\text{gem.}} = 91,8 \pm 3,3$. Dem gegenüber steht eine durch die Spiegelreflektivitäten theoretisch erwartete Finesse von $\mathcal{F}_{\text{theo.}} = 186$. Diese Diskrepanz entsteht zum einen durch eine niedrigere Reflektivität des Einkoppelspiegels für p-polarisiertes Licht (der Grund für die Wahl der p-Polarisation ist weiter unten erläutert) und der gegebenen Unsicherheit der Reflektivität von $\pm 0,5\%$ und zum anderen durch eine unzureichende Antireflexbeschichtung der Kristallendflächen. Die mangelhafte Beschichtung äußert sich entsprechend auch in erhöhten nicht-linearen Verlusten im Resonator, was sich bei der Anpassung der theoretischen Konversionseffizienz in Abbildung 3.18 zeigt.

Der Lithiumniobat-Kristall ist in einem Kristallofen aus Aluminium gelagert. Der Ausschnitt für den Kristall wurde speziell an diesen angepasst, so dass eine optimale Wärmeübertragung stattfinden kann. Die hohen Temperaturen von über 170 °C werden durch zwei Heizpatronen

¹⁹PDD 110, TOPTICA Photonics AG

²⁰FDS100, Thorlabs GmbH

²¹12V40, Piezosystem Jena GmbH

²²PA 8/12 - P-151-00, Piezosystem Jena GmbH

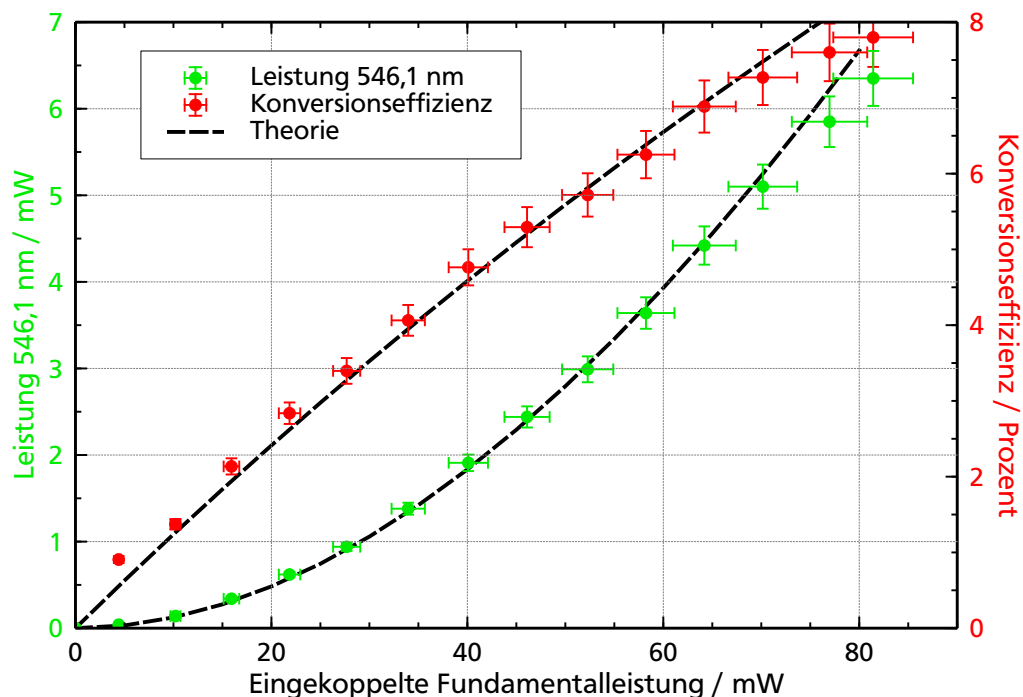


Abbildung 3.18: Konversionseffizienz der Frequenzverdopplung von 1092,2 nm und die daraus resultierende Leistung bei 546,1 nm, aufgetragen über die in den Ring-Resonator modenangepassten Leistung. Die für den theoretischen Verlauf angenommenen Resonator Daten sind dem Text zu entnehmen.

erreicht, die von einer kommerziellen Temperatursteuerung²³ geregelt werden. Ein Pt100 Platin-Messwiderstand, eingebracht in den Ofen in der Nähe des Kristalls, dient dabei zur Bestimmung der Temperatur. Damit wird eine Temperaturstabilität von ± 10 mK bei der Phasen Anpassungstemperatur erreicht. Diese liegt mit 178,8 °C etwas höher als die theoretisch erwartete. Die Bandbreite der Phasen Anpassungstemperatur liegt für einen 20 mm langen Kristall bei 375 mK [90]. Die erreichte Temperaturstabilität ist somit ausreichend für einen stabilen Betrieb.

Eine Messung der Konversionseffizienz ist in Abb. 3.18 aufgetragen. Für die Bestimmung der modenangepassten Fundamentalleistung wurde das Verhältnis des vom Einkoppelspiegel reflektierten Lichts bei scannendem und stabilisiertem Resonator gemessen. Die daraus resultierende Einkoppeleffizienz beträgt 59 %, was auf das elliptische Strahlprofil des ECDLs zurückzuführen ist. Bei einer eingekoppelten Fundamentalleistung von 81,4 mW wird eine Ausgangsleistung bei 546,1 nm von 6,35 mW erreicht. Dies entspricht einer Konversionseffizienz von 7,8 %. Die eingezeichneten theoretischen Verläufe wurden mit dem Formalismus

²³Eurotherm 2604, Eurotherm by Schneider Electric

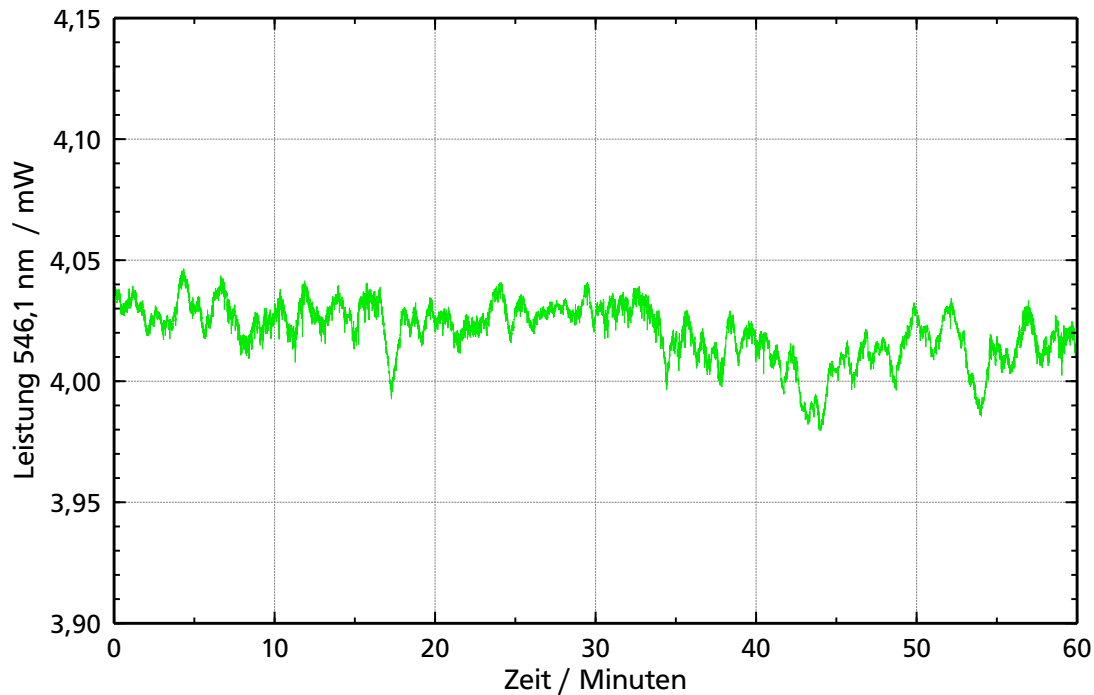


Abbildung 3.19: Leistungsmessung der 546,1 nm Strahlung vor der UHV-Zelle über einen Zeitraum von 60 Minuten.

von Polzik und Kimble [103] an die gemessenen Daten angepasst. Dafür wurden die nicht-linearen Verluste mit 4,5 % und der nicht-lineare Koeffizient mit 4,3 pm/V abgeschätzt. Die Reflektivität des Einkoppelspiegels liegt laut Hersteller für das eingekoppelte p-polarisierte Licht etwas niedriger und wurde zu 96,5 % angenommen. Die hohen nicht-linearen Verluste sind wie bereits erwähnt auf die Antireflexbeschichtung des Kristalls zurückzuführen und beschränken die Effizienz der Frequenzverdopplung wesentlich. Diese sind auch der Grund für eine höhere Konversionseffizienz bei einer niedrigeren Reflektivität des Einkoppelspiegels und der damit verbundenen Wahl der p-Polarisation für die Fundamentalstrahlung.

Nach dem Verlassen des Resonators wird das grüne Licht mit einer Linse kollimiert. Mit einer $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte und einem Polarisationsstrahlteilerwürfel wird ein kleiner Teil des Lichts für die Polarisationspektroskopie ausgekoppelt, während der Hauptteil in Richtung UHV-Zelle geleitet wird.

Eine Messung der Leistungsstabilität des grünen Lichts vor der UHV-Zelle ist in Abb. 3.19 zu sehen. Während der 60 minütigen Messzeit mit einer mittleren Leistung von 4,02 mW betrug die Standardabweichung 12 μ W bei einer Spitze-zu-Spitze Schwankung von 67 μ W.

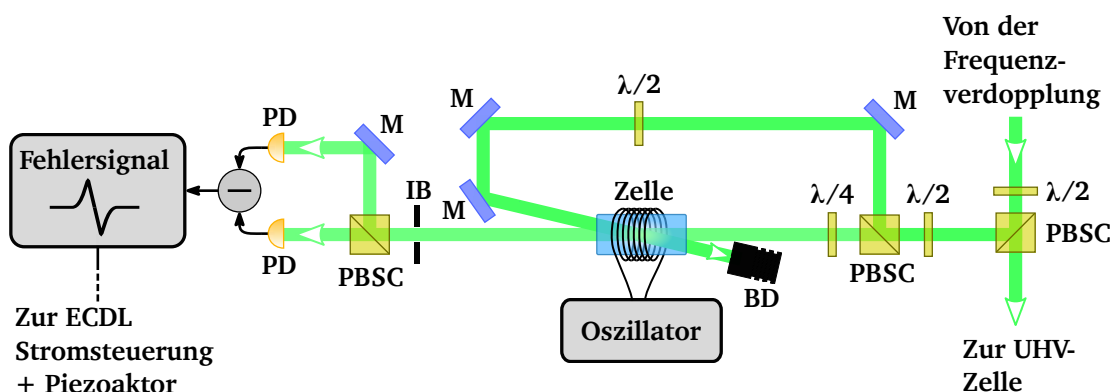


Abbildung 3.20: Aufbau der 546,1 nm Polarisationspektroskopie für die Frequenzstabilisierung. M: Spiegel, $\lambda/2$ u. $\lambda/4$: Verzögerungsplatte, PBSC: Polarisationsstrahlteilerwürfel, BD: Strahlfalle, PD: Photodiode, IB: Irisblende

3.4.3 Frequenzstabilisierung

Die Frequenzstabilisierung des 546,1 nm Lasersystems erfolgt ebenfalls über eine Polarisationspektroskopie in einer Quecksilberdampfzelle. Der Aufbau ist in Abb. 3.20 dargestellt und unterscheidet sich leicht von dem bereits vorgestellten Aufbau für das 436,8 nm System aus Abb. 3.12. Anstatt eines zirkular polarisierten Pumpstrahls wird in diesem Schema ein linear polarisierter Pumpstrahl und ein zirkular polarisierter Probenstrahl verwendet. Dieses alternative Schema für die Polarisationspektroskopie ist unempfindlich gegenüber den sogenannten *velocity-changing collisions* (VCC), der Geschwindigkeitsumverteilung der Atome durch Stöße [121, 122]. Dies ist besonders in Entladungslampen zu beobachten. Speziell für den 546,1 nm Übergang führte dieses alternative Schema zu einer Verbesserung des Fehlersignals.

Der untere Zustand des spektroskopierten $6^3P_2 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergangs ist metastabil mit einer Lebensdauer im Bereich von Sekunden [56] und entsprechend des Niveausystems in der Quecksilberdampfzelle nicht besetzt. Um das 6^3P_2 -Niveau zu bevölkern wird auch hier eine rf-Entladung in der Zelle gezündet. Aufgrund der langen Lebensdauer des Niveaus kann die Stärke der Entladung viel geringer ausfallen als im Falle des 436,8 nm Übergangs. Aus diesem Grund wird für die rf-Entladung eine nach [123] selbst gebaute Oszillatorschaltung auf Basis eines Colpitts-Oszillators verwendet, die es erlaubt die Sendeleistung und somit auch die Stärke der Entladung über ein Drehpotentiometer anzupassen. Zur Einkopplung der rf-Leistung in die Zelle wird diese mit einer Spule umwickelt. Da die Spule ein Teil der Oszillatorschaltung darstellt, muss deren Windungszahl und Dimensionierung an die jeweilige Zelle angepasst werden.

Die gesamte Elektronik des Oszillators sowie die Zelle mit ihrer Halterung ist in einem Aluminiumgehäuse untergebracht. Das Gehäuse ist für eine effektive Schirmung mit der Erdleitung verbunden. Dies verhindert, dass rf-Leistung nach außen gelangt und in die

Elektronik des Lasersystems koppeln kann.

Die Quecksilberdampfzelle selbst ist 40 mm lang und besitzt einen Durchmesser von 19 mm. Die unbeschichteten Zellenfenster bestehen aus Quarzglas und besitzen eine Keilform mit einem Winkel von 2° . Die Fenster sind unter einem Winkel von ebenfalls 2° an den Zellenkörper angebracht, um ein Etaloning zu vermeiden. In der Zelle befindet sich ein Tropfen vakuumgereinigtes Quecksilber im natürlichen Isotopengemisch, sowie 0,5 mbar Argon als Zündhilfe für die rf-Entladung.

Der Probenstrahl wird von zwei Photodioden²⁴ detektiert, die eine hohe Sensitivität von ca. $3,8 \text{ A/W}$ im Bereich um 546 nm aufweisen. Trotz der großen Detektorfläche mit einem Durchmesser von 5 mm liegt die Frequenzbandbreite dieser Photodioden bei bis zu 40 MHz. Die Differenzbildung der beiden Photodiodensignale erfolgt wieder durch eine selbstgebaute Elektronik nach [59].

Der Probenstrahl weist einen Durchmesser von 1,81 mm auf bei einer Leistung von $288 \mu\text{W}$ vor der Zelle, dies entspricht einer Leistungsdichte von $11,2 \text{ mW/cm}^2$. Nach dem Durchlaufen der Zelle ist ohne rf-Entladung, also ohne Absorption im Quecksilberdampf, nur noch eine Leistung von $111 \mu\text{W}$ vorhanden, was einer Leistungsdichte von $4,3 \text{ mW/cm}^2$ entspricht und somit unterhalb der Sättigungsintensität von $I_{\text{sat}} = 6,23 \text{ mW/cm}^2$ liegt. Auch bei dieser Zelle diffundiert durch die Entladung ein Teil des Quecksilbers in die Zellenfenster und sorgt für eine ungleichmäßige reflektierende Schicht, so dass sich über die Leistungsdichte des Proben- und Pumpstrahls innerhalb der Zelle keine absolute Aussage treffen lässt. Wobei wiederum die Kenntnis der genauen Leistungsdichten nicht entscheidend ist, sondern vor allem die Güte der Stabilisierung, die weiter unten ermittelt wird.

Der Pumpstrahl besitzt einen Durchmesser von 1,86 mm bei einer Leistung von $520 \mu\text{W}$ vor der Zelle, was einer Leistungsdichte von $19,1 \text{ mW/cm}^2$ entspricht.

Der Winkel Θ zwischen Pump- und Probenstrahl beträgt ca. 33 mrad und führt somit nach Gleichung 3.3 zu einer verbleibenden Dopplerverbreiterung der gesättigten Absorption von $\gamma_{\text{geom.}} = 12 \text{ MHz}$.

Das aus einem Frequenzscan des 546,1 nm Lasers resultierende Polarisationspektroskopiesignal ist in Abb. 3.21 aufgetragen. Für diese Messung wurde das Gitter des 1092,2 nm ECDL über dessen Piezoaktor verfahren und so die Frequenz in der Fundamentalen über 2 GHz modensprungfrei abgestimmt. Für die Kalibration der Frequenzachse wurde ein konfokaler Fabry-Pérot Resonator²⁵ mit einem freien Spektralbereich von $1,00 \pm 0,01 \text{ GHz}$ und einer Finesse > 240 verwendet, in den ein Teil des grünen Laserlichts eingekoppelt wurde. Für die Abbildung wurde der Nullpunkt der Frequenzachse auf das ^{202}Hg Isotop gelegt. Es sind die Fehlersignale, resultierend von sieben Quecksilberisotopen, zu erkennen. Der Frequenzabstand zwischen den beiden Isotopen ^{202}Hg und ^{200}Hg lässt sich durch die Kalibration zu

²⁴S3071, Hamamatsu Photonics

²⁵FPI 100, TOPTICA Photonics AG

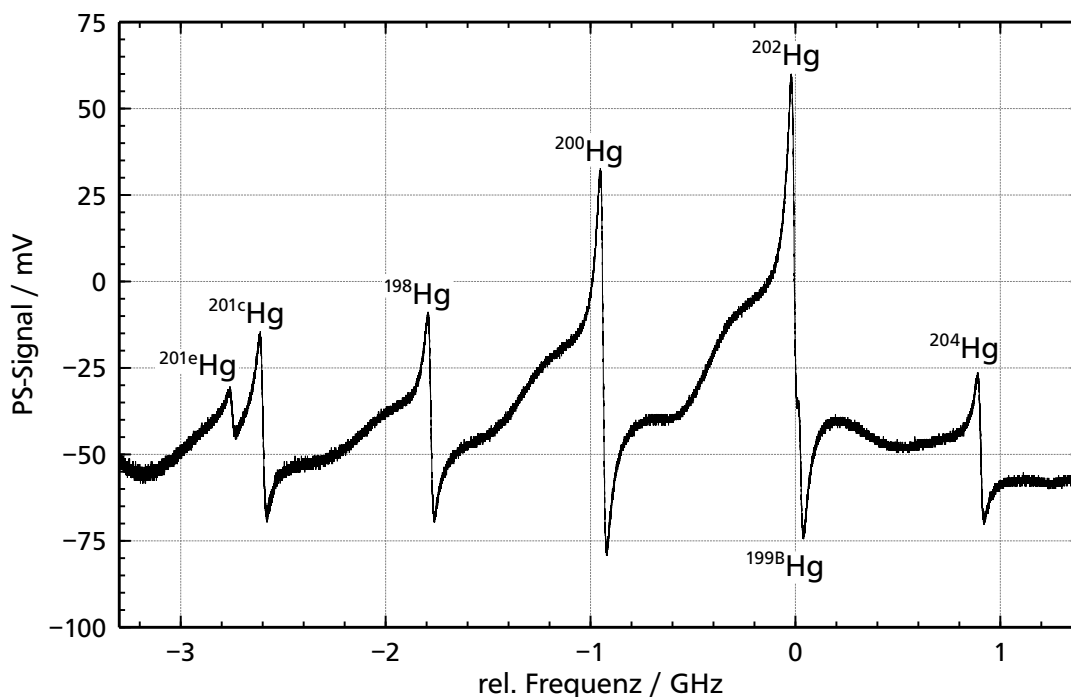


Abbildung 3.21: Frequenzscan über die mittleren sieben Quecksilberisotope ^{201e}Hg , ^{201c}Hg , ^{198}Hg , ^{200}Hg , ^{202}Hg , ^{199B}Hg und ^{204}Hg und das daraus resultierende Signal der Polarisationspektroskopie. Der Frequenzabstand zwischen ^{202}Hg und ^{199B}Hg beträgt nur 32 MHz [105].

932 MHz abschätzen und von ^{202}Hg und ^{204}Hg zu 911 MHz, die Literaturwerte liegen nach [105] bei 931 MHz respektive 913 MHz. Beide Werte liegen somit sehr nah am Literaturwert und im Fehlerintervall des freien Spektralbereichs des Resonators.

Der Abstand zwischen den Isotopen ^{202}Hg und ^{199B}Hg beträgt nach [105] nur 31,7 MHz. Die Fehlersignale können dennoch aufgelöst werden, wie eine vergrößerte Darstellung in Abbildung 3.22 zeigt. Typische Linienbreiten der gemessenen dopplerfreien Absorptionslinien liegen bei 34 MHz und damit einen Faktor 4,4 über der natürlichen Linienbreite von 7,75 MHz und auch über der Verbreiterung durch den verbleibenden Winkel zwischen Pump- und Probenstrahl. Die gemessene Verbreiterung ergibt sich aufgrund der rf-Entladung in der Dampfzelle und liegt im Bereich der von Sansonetti und Veza gemessenen Breite von 41 MHz [105] und der von Rayman *et al.* gemessenen Breite von 35 MHz [124], beide ebenfalls in einer Quecksilberdampfzelle mit rf-Entladung. Wobei diese beiden Experimente Zellen ohne jegliches Puffergas verwendeten, was darauf schließen lässt, dass die in dieser Arbeit ermittelte Verbreiterung nicht auf das verwendete Argon-Gas zurückzuführen ist.

Durch seine geringe Häufigkeit mit gerade einmal 0,15 % ist das ^{196}Hg Isotop mit einer

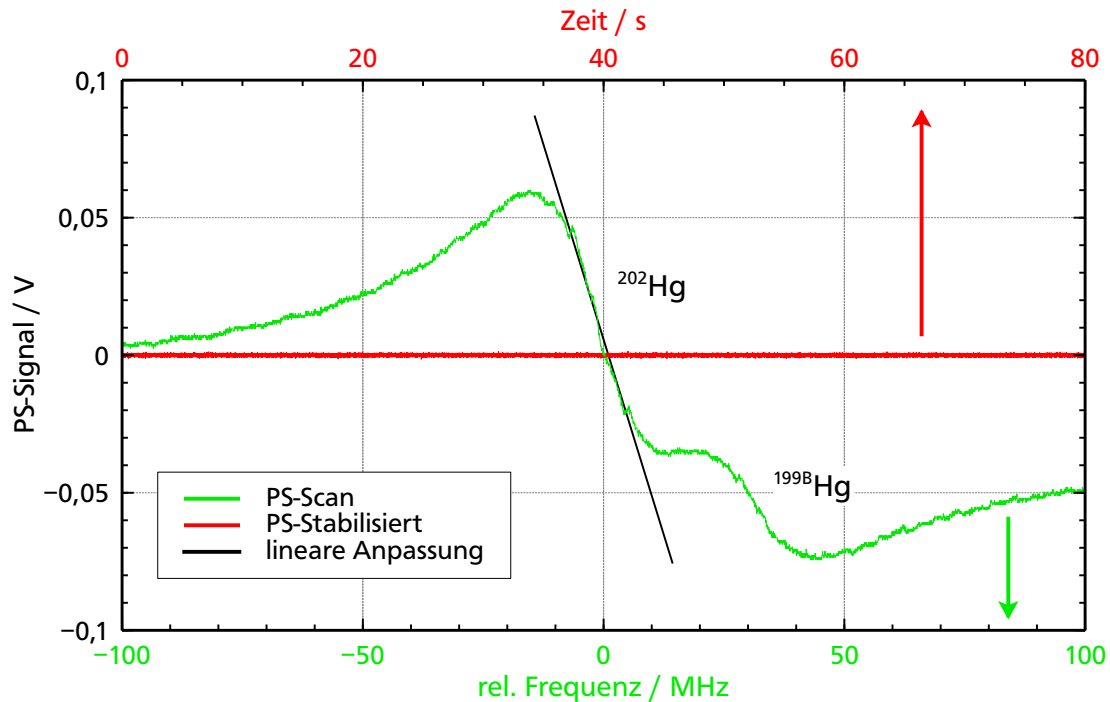


Abbildung 3.22: Vergrößerte Darstellung des Fehlersignals für einen Scan über das ^{202}Hg und $^{199\text{B}}\text{Hg}$ Isotop in grün und das Fehlersignal beim schließen des Regelkreises in rot. Die schwarze Gerade ist eine lineare Anpassung an die Steigung des ^{202}Hg Fehlersignals.

Verschiebung von $-2,52\text{ GHz}$ relativ zu ^{202}Hg nicht zu sehen.

In einer vergrößerten Darstellung des ^{202}Hg Fehlersignals in Abb. 3.22 ist auch deutlich das Fehlersignal des benachbarten $^{199\text{B}}\text{Hg}$ Isotops zu erkennen. Der Stabilisierungspunkt kann durch Verschieben des Nulldurchgangs des Signals um $\pm 6\text{ MHz}$ abgestimmt werden. Wird der Regelkreis über den Piezoaktor des ECDLs und des Laserdiodenstroms geschlossen, ergibt sich das in rot für eine Zeitspanne von 80 s eingezeichnete Signal und es bleibt nur eine minimale Restschwingung bestehen. Diese lässt sich über die Steigung des Fehlersignals in eine Frequenzabweichung umrechnen. Die Steigung des ^{202}Hg Fehlersignals kann durch eine Geradenanpassung zu $5,68\text{ mV/MHz}$ bestimmt werden.

Diese Anpassung wurde in Abbildung 3.23 auf das Fehlersignal angewendet und die Frequenzabweichung vom Stabilisierungspunkt über die Zeit aufgetragen. In den ersten 20 s driftet das Lasersystem unstabilisiert auf der Flanke des ^{202}Hg Fehlersignals. Anschließend wird der Regelkreis über den Piezoaktor geschlossen. Die Regelung schwingt in diesem Zustand sehr stark, da der integrale Anteil für eine reine Regelung über den Piezoaktor eine zu kleine Zeitkonstante aufweist. Diese kann erst sinnvoll in die Regelung eingreifen,

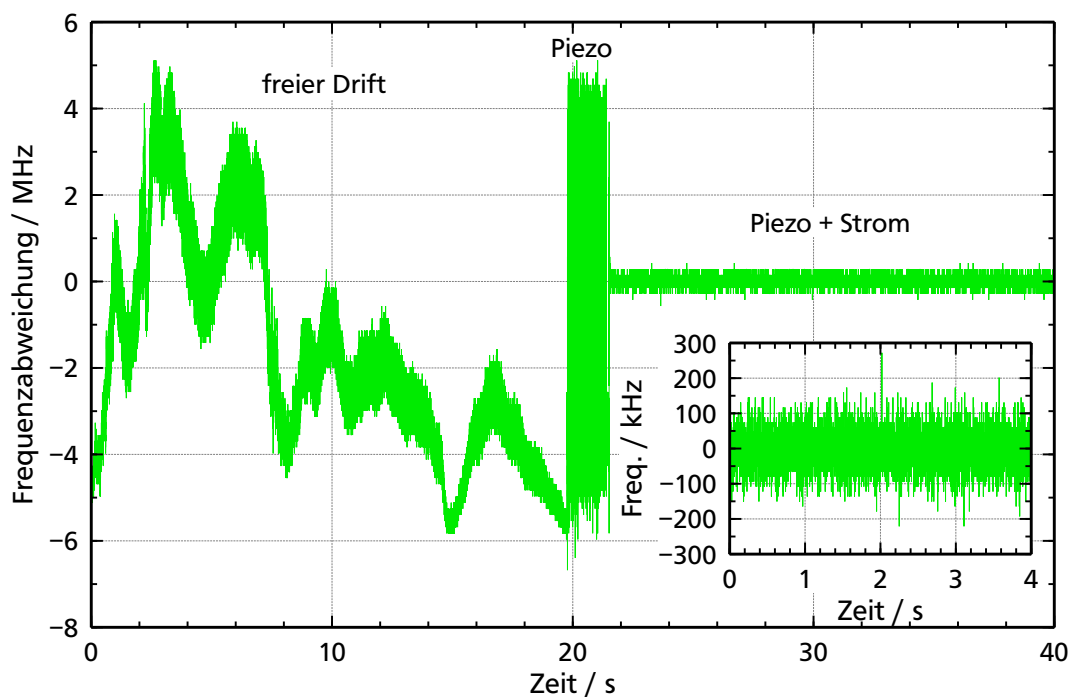


Abbildung 3.23: Frequenzabweichung des 546,1 nm Lasers zum Übergang des ^{202}Hg Isotops. Zwischen 0 s und 20 s ist die Frequenzstabilisierung deaktiviert und der Laser driftet über die Flanke des ^{202}Hg Fehlersignals. Ab Sekunde 20 wird der Regelkreis über den Piezoaktor geschlossen. Ab Sekunde 22 wird zusätzlich der schnelle P-Anteil über den Laserdiodenstrom zugeschaltet. Der Ausschnitt zeigt eine vergrößerte Darstellung der Stabilisierung mit Piezoaktor und Strom auf das ^{202}Hg Fehlersignal.

wenn das Fehlersignal zusätzlich auf den Laserdiodenstrom geführt wird und somit noch als schneller proportionaler Anteil zur Regelung beiträgt, wie ab Sekunde 22 zu sehen ist. Der Ausschnitt zeigt eine Vergrößerung bei eingeschalteter Stabilisierung über Piezoaktor und Laserdiodenstrom. Über diese 4 Sekunden weist das Fehlersignal eine Standardabweichung von 54,3 kHz auf, bei einer Spitze-zu-Spitze Abweichung von 493 kHz.

3.5 Das 404,7 nm Lasersystem

Die folgenden Abschnitte beschreiben das 404,7 nm Lasersystem. Der Einsatz als inkohärente Pumpe stellt an dieses System gänzlich andere Anforderungen als an die beiden Kopplungslaser. Trotzdem wurde als Basis ein schmalbandiger ECDL verwendet, da dieser mehrere Vorteile bietet: Es ist vergleichsweise leicht, die Wellenlänge auf den gewünschten Übergang anzupassen, die Linienbreite lässt sich über die Modulation des Laserdiodenstroms mit weißem Rauschen gezielt einstellen. Somit ist es auch möglich eine Stabilisierung zu implementieren.

Das System steht aus Platzgründen auf einem separaten *breadboard*, gelagert auf einem fahrbaren Gestell, neben dem optischen Tisch. Hierdurch ist es nicht so stabil gelagert wie die anderen Lasersysteme, durch den Einsatz als inkohärente Rückpumpe werden jedoch auch viel geringere Anforderungen an dieses System gestellt.

3.5.1 ECDL

Die Wellenlänge von 404,7 nm kann direkt mit einer Laserdiode²⁶ erzeugt werden. Diese ist in einer kommerziellen Halterung²⁷ mit integrierten Peltierelementen zur Temperaturstabilisierung befestigt. Eine schematische Darstellung des Aufbaus, der sich an [125] orientiert, ist Abb. 3.24 zu entnehmen. Ein holographisches Gitter²⁸ in Littrow Anordnung dient als frequenzselektives, rückkoppelndes Element zur Einstellung der Wellenlänge auf den $6^3P_0 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergang. Dafür ist es in einer 3-achsigen Halterung²⁹ montiert, deren Achsen sich sowohl manuell als auch über Piezoaktoren verstellen lassen.

Im Laufe der Arbeit wurden mehrere Laserdioden mit einem Verstärkungsspektrum im geforderten Wellenlängenbereich getestet. Dabei hat sich gezeigt, dass diese bedeutend empfindlicher auf die Rückkopplung durch das Gitter reagieren als Dioden im IR-Bereich. Aus diesem Grund wurde eine $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte in den externen Resonator eingebracht, um die Stärke der Rückkopplung durch das Gitter einstellen zu können. Zusätzlich war es notwendig, einen schmalbandigen Interferenzfilter³⁰ mit einer Halbwertsbreite von 1,5 nm in den externen Resonator zu setzen. Dessen Zentralwellenlänge kann über den Winkel auf die geforderte Wellenlänge von 404,7 nm abgestimmt werden. Dies verhindert das Auftreten weiterer longitudinaler Moden im Spektrum des ECDL.

Ebenso war es nicht zielführend die bereits bei den beiden Kopplungslasern in 3.3.1 und 3.4.1 vorgestellte Stabilisierung des internen auf den externen Resonator anzuwenden. Stattdessen wurde eine klassische *feed-forward* Schaltung [125] verwendet und so der Laserdiodenstrom mit der Verstimmung des Gitters über eine selbst entwickelte Schaltung synchronisiert. Dabei handelt es sich um keine aktive Stabilisierung, so dass Störungen und Langzeitdrifts nicht ausgeglichen werden können.

²⁶NDV4B16, NICHIA CORPORATION

²⁷TCLDM9, Thorlabs GmbH

²⁸GH13-36U, Thorlabs GmbH

²⁹KC1-T-PZ/M, Thorlabs GmbH

³⁰LL01-407-12.5, Semrock Inc

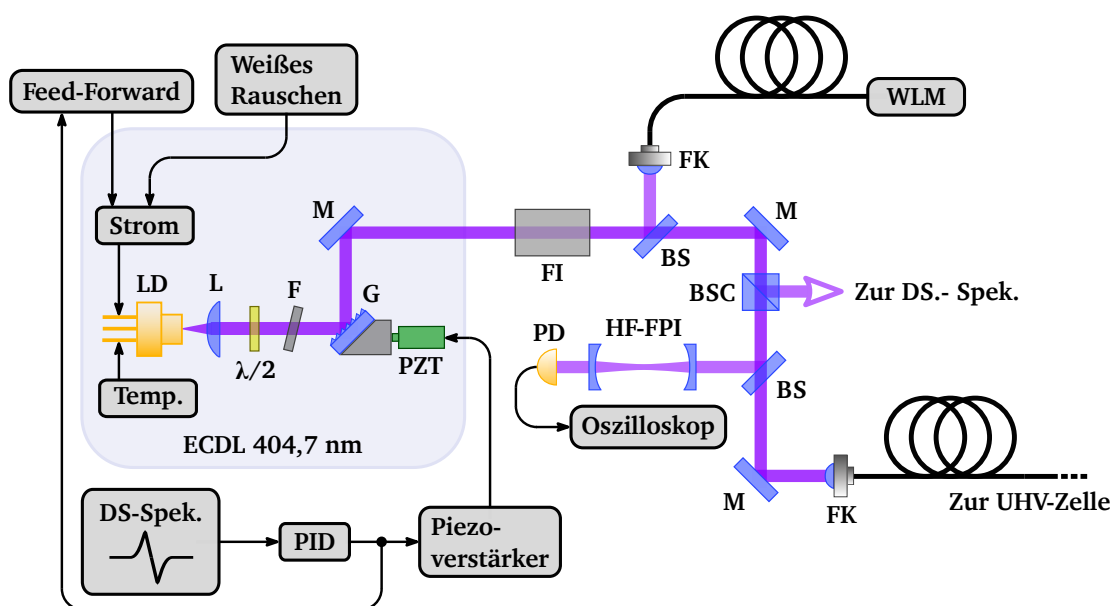


Abbildung 3.24: Aufbau des 404,7 nm ECDL. M: Spiegel, BS: Strahlteiler, G: Gitter, F: Filter, L: Linse, PZT: Piezoaktor, $\lambda/2$: Verzögerungsplatte, BSC: Strahlteilerwürfel, PD: Photodiode, FI: Faradayisolator, FK: Faserkoppler, HF-FPI: Fabry-Pérot Resonator

Durch einen konfokalen Fabry-Pérot Resonator³¹ mit einem freien Spektralbereich von $1,00 \pm 0,01$ GHz und einer Finesse > 240 kann kontrolliert werden, ob der ECDL auf einer einzelnen longitudinalen Mode läuft. Zur weiteren Analyse wird ein Teil des Lichts über eine Faser zu einem Wellenlängenmessgerät³² geführt, um die Wellenlänge grob vorjustieren zu können.

Die eigentliche Frequenzstabilisierung findet durch eine dichroitische Spektroskopie statt, für die ein weiterer Teil der Leistung durch einen Strahlteilerwürfel mit einer Reflektivität von 30 % ausgekoppelt wird. Das Fehlersignal der Spektroskopie wird an einen PID-Regler angelegt, dessen Ausgangssignal wiederum über den Piezoverstärker das Gitter des ECDLs ansteuert und so den Regelkreis schließt. Gleichzeitig wird das Ausgangssignal des PID-Reglers an die *feed-forward* Schaltung angelegt. Dies dient in diesem Falle nicht als schneller P-Anteil, wie bei den beiden Kopplungslasersystemen, sondern in erster Linie zur Erweiterung der Abstimbarkeit des ECDLs, um die Übergänge der Isotope zu finden.

Ein Faraday-Isolator schützt den ECDL vor Rückreflexen der anschließenden Optiken, insbesondere des Fabry-Pérot Resonators.

Das Licht wird über eine polarisationserhaltende Einzelmodenfaser auf den optischen Tisch zur UHV-Zelle transportiert. Dort wird es durch ein Mikroskopobjektiv aus der Faser ausgekoppelt, um ein sauberes Strahlprofil zu erhalten. Vor der UHV-Zelle wird eine Leistung

³¹FPI 100, TOPTICA Photonics AG

³²WS/7, HighFinesse GmbH

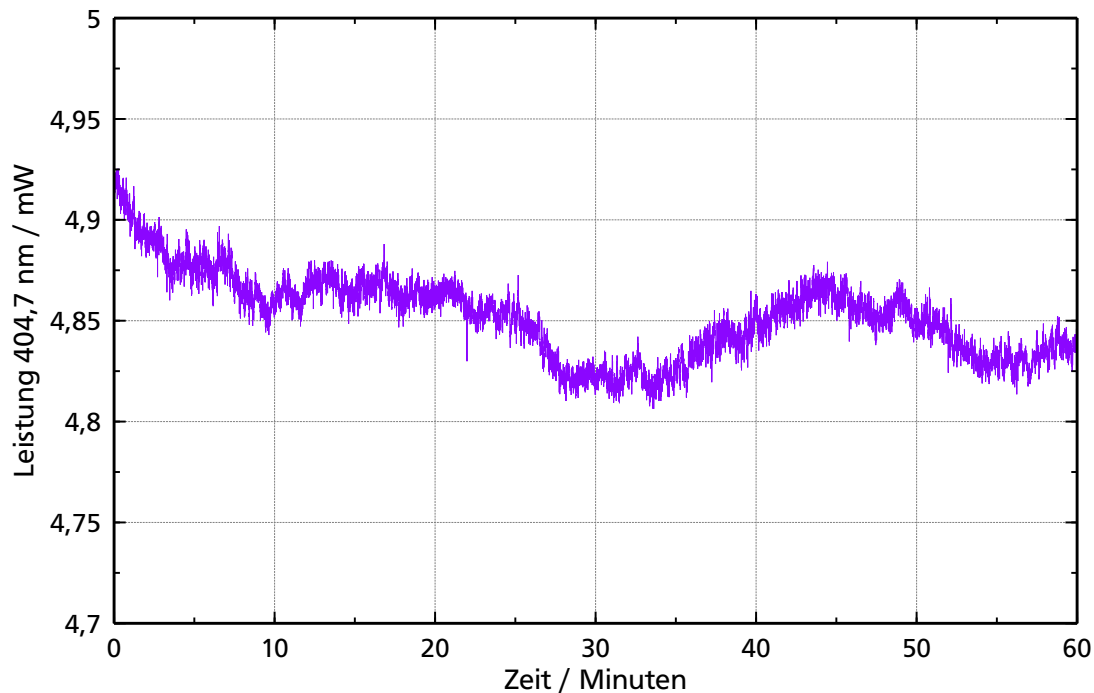


Abbildung 3.25: Leistungsmessung der 404,7 nm Strahlung vor der UHV-Zelle über einen Zeitraum von 60 Minuten.

von bis zu 4,8 mW erreicht. Abbildung 3.25 zeigt eine Leistungsmessung bei stabilisiertem ECDL auf das ^{202}Hg Isotop über einen Zeitraum von 60 Minuten. Für diese Messung beträgt die mittlere Leistung 4,85 mW und weist eine Standardabweichung von $20\ \mu\text{W}$, sowie eine Spitze-zu-Spitze Schwankung von $119\ \mu\text{W}$ auf.

Um die Linienbreite des ECDLs zu beeinflussen, wird der Laserdiodenstrom mit weißem Rauschen moduliert [71, 126]. Hierfür wird das von einem Frequenzgenerator³³ erzeugte weiße Rauschen mit einer Bandbreite von 10 MHz an den schnellen Modulationseingang der Laserdiodenstromsteuerung angelegt. Die Linienbreite kann mit dem Fabry-Pérot Resonator bestimmt werden. Dessen Halbwertsbreite und damit die untere Grenze der messbaren Linienbreite liegt für eine Finesse von 240 bei 4,2 MHz.

Zwei beispielhafte Transmissionssignale des Resonators für eine Rauschamplitude von 0 V und 5 V sind in Abb. 3.26 rechts dargestellt. Die Kalibration der Frequenzachse erfolgte über den freien Spektralbereich des Resonators. Das Transmissionssignal besteht streng genommen aus einer Faltung der Airy-Funktion des Resonators mit der Linienbreite des ECDL. Durch die hohe Finesse des Resonators wird das Signal schon für geringe Linienbreiten im zweistelligen MHz-Bereich von der Breite des ECDLs dominiert und sollte bei der

³³33120A, Hewlett-Packard Company

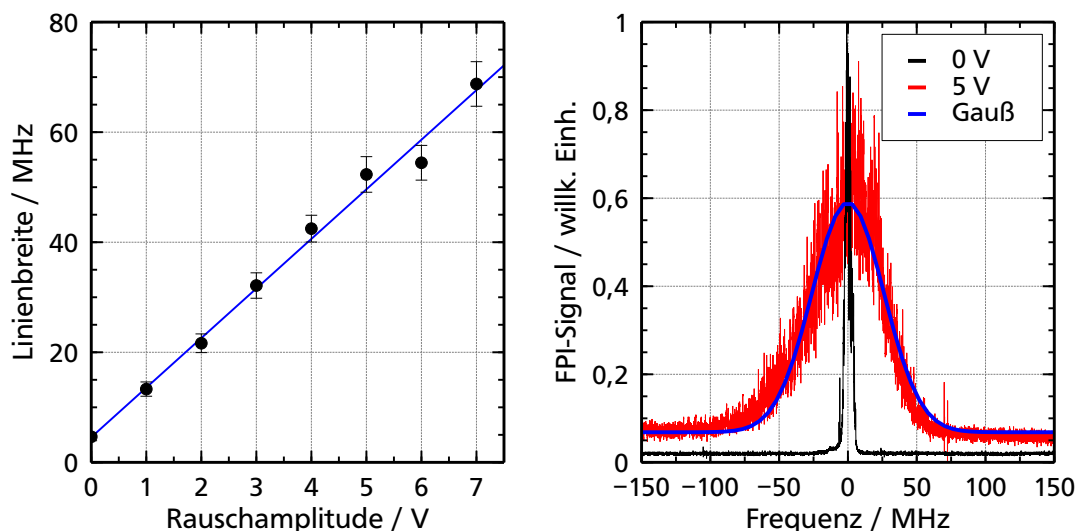


Abbildung 3.26: Links: Mit dem FPI bestimmte Linienbreite, aufgetragen über die Maximalamplitude des weißen Rauschens, angelegt am schnellen Modulationseingang der Stromsteuerung. Die blaue Gerade ist eine lineare Anpassung an die Datenpunkte.

Rechts: Zwei normierte Transmissionssignale des FPI für eine Modulationsamplitude von 0 V und 5 V, sowie die Anpassung einer Gauß-Funktion an das Signal der 5 V Modulation.

Modulation mit weißem Rauschen einer Gauß-Funktion ähneln [126]. Zur Bestimmung der Linienbreite wird deshalb eine Gauß-Funktion an das Transmissionssignal angepasst, deren Halbwertsbreite der Linienbreite des ECDLs entspricht. Dies ist in Abb. 3.26 rechts für das Signal mit 5 V Rauschamplitude dargestellt.

Der linke Graph in Abb. 3.26 zeigt auf, wie sich die Linienbreite des ECDLs als Funktion der Rauschamplitude entwickelt. Die Anpassung einer Geraden zeigt eine lineare Abhängigkeit der Linienbreite von der Rauschamplitude wie nach [126] erwartet. Bei einer natürlichen Linienbreite des $6^3P_0 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergangs von 3,34 MHz ist der ECDL bei einer Rauschamplitude von 5 V und damit einer Linienbreite von über 50 MHz als ausreichend inkohärent anzusehen.

3.5.2 Frequenzstabilisierung

Die Frequenz des 404,7 nm ECDL wird mittels einer dichroitischen Spektroskopie, wie in Kapitel 3.2.2 beschrieben, stabilisiert. Eine Polarisationspektroskopie wie bei den beiden Kopplungslasern ist für die bosonischen Quecksilberisotope, insbesondere des ^{202}Hg Isotops im gegebenen Aufbau nicht anwendbar. Dies ist der Niveaustuktur des $6^3P_0 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergangs geschuldet, dessen oberes 7^3S_1 Niveau in drei Zeeman-Unterniveaus aufspaltet,

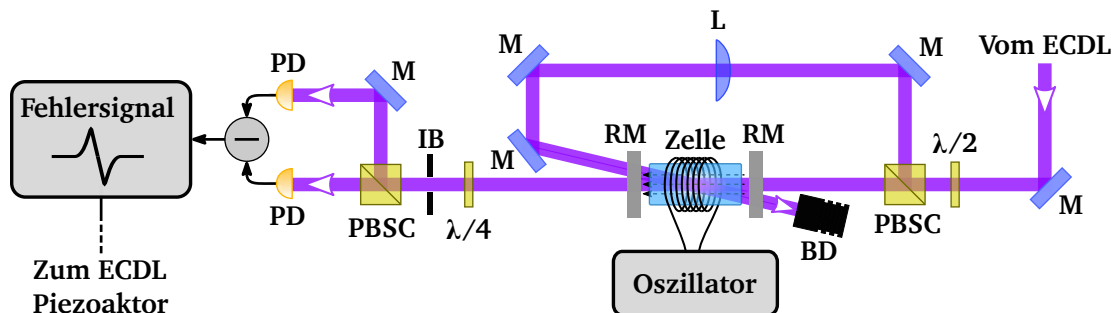


Abbildung 3.27: Aufbau der dichroitischen Spektroskopie bei 404,7 nm für die Frequenzstabilisierung. M: Spiegel, L: Linse, $\lambda/2$ u. $\lambda/4$: Verzögerungsplatte, PBS: Polarisationsstrahlteilerwürfel, BD: Strahlfalle, PD: Photodiode, IB: Irisblende, RM: Ringmagnete

während das untere, langlebige 6^3P_0 Niveau nicht aufspaltet. Hierdurch findet bei der Polarisationspektroskopie keine Umverteilung der Besetzung des unteren Niveaus statt. Das hat zur Folge, dass die induzierte Doppelbrechung allein auf der Sättigung des Pumpstrahls basiert. Im Falle des 404,7 nm Übergangs ergibt sich deshalb nur ein kaum messbares Signal [127].

Die dichroitische Spektroskopie basiert hingegen auf der Verschiebung der Zeeman-Unterniveaus durch ein äußeres Magnetfeld und erzeugt auch für den 404,7 nm Übergang ein sauberes Fehlersignal.

Der Aufbau der dichroitischen Spektroskopie ist in Abb. 3.27 dargestellt und gleicht im Wesentlichen dem bereits in Abschnitt 3.2.2 vorgestellten Aufbau. Über die Kombination einer $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte und eines Polarisationsstrahlteilerwürfels kann das Verhältnis der Leistung zwischen Pump- und Probenstrahl variiert werden. Eine Linse passt den Durchmesser des Pumpstrahls für eine gute Überlagerung mit dem Probenstrahl innerhalb der Quecksilberzelle an. Das Magnetfeld wird durch zwei Ringmagnete erzeugt, durch deren Mitten die beiden Laserstrahlen geführt werden. Die Magnete sind symmetrisch um die Zelle in einem Abstand von 130 mm zueinander positioniert. Dies führt im Bereich der Zelle zu einem weitgehend homogenen Magnetfeld in Richtung des Probenstrahls, mit einer Magnetfeldstärke von ca. 1,2 mT.

Der untere Zustand des 404,7 nm Übergangs ist metastabil und besitzt eine Lebensdauer im Bereich von Sekunden [56]. Entsprechend der Niveaustruktur von Quecksilber ist dieser bei Raumtemperatur nicht bevölkert, weshalb wieder eine rf-Entladung in der Zelle gezündet wird. Die Oszillatorschaltung ist dabei identisch mit der in Abschnitt 3.4.3 vorgestellten Schaltung. Allerdings muss im Falle des 404,7 nm Übergangs die Entladung stärker sein, da nur ca. 17% der Besetzung des oberen 7^3S_1 Niveaus in das 6^3P_0 Niveau zerfallen [128]. Entsprechend ist auch die Intensität der 404,7 nm Linie bei Quecksilber Niederdrucklampen geringer als bei den konkurrierenden 435,8 nm und 546,1 nm Linien [129]. Eine stärkere Entladung führt bei der Oszillatorschaltung allerdings zu einer 50 Hz-Modulation der Entladungsstärke, was besonders gut im Fehlersignal während der Stabilisierung zu erkennen ist

(siehe Abb. 3.30). Dies ist aber für den hier vorgestellten Rückpumpplaser vertretbar. Die Quecksilberdampfzelle ist identisch mit der in Abschnitt 3.4.3 beschriebenen Zelle. Entsprechend ist sie auch zusätzlich mit 0,5 mbar Argon als Zündhilfe für die rf-Entladung befüllt.

Die $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte nach der Zelle wird so eingestellt, dass die links- und rechts-zirkularen Polarisationskomponenten des Probenstrahls nach deren Durchlaufen auf zwei senkrecht zueinander stehende linearen Polarisierungen projiziert werden. Eine Irisblende dient dazu unerwünschte Reflexe zu blockieren, so dass nur Licht des Probenstrahls zu dem Polarisationsstrahlteilerwürfel, der als Analysator dient, gelangt. Die beiden Polarisationskomponenten werden von zwei Photodioden³⁴ detektiert. Die Differenz der Photodiodensignale erzeugt direkt das Fehlersignal der dichroitischen Spektroskopie.

Der Probenstrahl weist vor der Zelle eine optische Leistung von $495 \mu\text{W}$ auf, bei einem Strahldurchmesser von ca. $525 \mu\text{m}$. Das entspricht einer Leistungsdichte von $229 \text{ mW}/\text{cm}^2$. Nach der Zelle, bei ausgeschalteter Entladung, ist jedoch nur noch eine Leistung von $30 \mu\text{W}$ zu messen. Dies ist wiederum auf den bereits beschriebenen Effekt der Ablagerung von Quecksilber auf den Zellenfenstern zurückzuführen. Auf die Bestimmung der genauen Leistungsdichte innerhalb der Zelle wurde auch hier verzichtet, da es nur auf ein verwendbares Fehlersignal ankommt. Der Pumpstrahl besitzt vor Eintritt in die Zelle eine Leistung von $2,3 \text{ mW}$ bei einem Durchmesser von ca. $800 \mu\text{m}$, was zu einer Leistungsdichte von $458 \text{ mW}/\text{cm}^2$ führt. Der verbleibende Winkel Θ zwischen Pump- und Probenstrahl beträgt ca. 21 mrad und führt bei einer Dopplerbreite in der Entladung von ca. 684 MHz nach [116] zu einer verbleibenden Dopplerverbreiterung von $\gamma_{\text{geom.}} = 10 \text{ MHz}$.

Abbildung 3.28 zeigt einen Scan des ECDLs über die mittleren vier Quecksilberisotope und das daraus resultierende Signal der dichroitischen Spektroskopie für drei verschiedene Konfigurationen. Die Frequenzachse wurde über das Signal des Fabry-Pérot Resonator mit seinem FSR von $1,00 \pm 0,01 \text{ GHz}$ kalibriert und der Nullpunkt auf den Übergang des ^{202}Hg Isotops gelegt.

Das obere Signal wurde ohne den Pumpstrahl aufgenommen. Folglich ist ein gewöhnliches dopplerverbreitertes DAVLL-Spektrum zu sehen. Dieses kann durch die Flanken schon für eine Stabilisierung des ECDLs verwendet werden. Durch die große Dopplerbreite der einzelnen Übergänge und deren relative Abstände zueinander von ca. 850 MHz ist es im verbreiterten Signal jedoch nicht direkt ersichtlich, wo die genauen Übergänge liegen. Wird der Pumpstrahl genutzt, entsteht durch dessen Sättigung ein dopplergefreies DAVLL-Spektrum. Die zusätzliche Flanke mit invertierter Steigung, entstanden durch die Lamb-Dips, zeigt die genaue Position der Übergänge. Durch die zusätzliche größere Steigung ist mit dem dopplergefreien Signal eine präzisere Stabilisierung möglich.

Da die Vergrößerung der Linienbreite durch eine Modulation des Laserdiodenstroms geschieht, ist auch das Spektroskopiesignal davon betroffen. Die Auswirkung ist im unteren Signalverlauf zu erkennen. Hier wurde der Strom mit weißem Rauschen moduliert, was bei

³⁴FDS100, Thorlabs GmbH

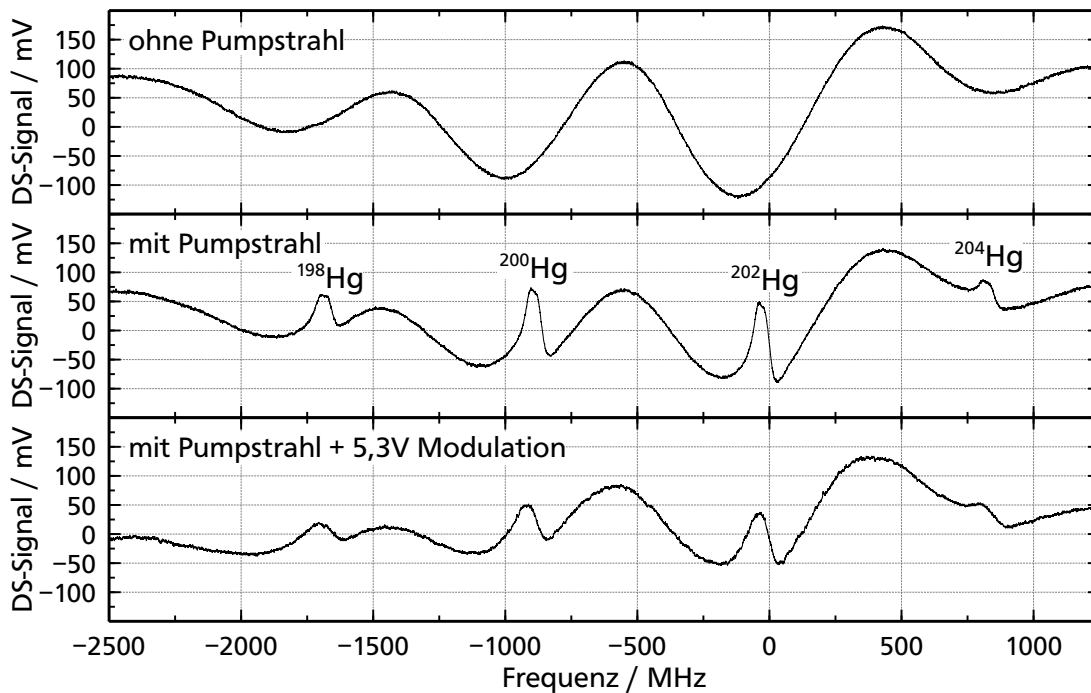


Abbildung 3.28: Dichroitische Spektroskopie der mittleren vier Quecksilberisotope ^{198}Hg , ^{200}Hg , ^{202}Hg und ^{204}Hg .

Oben: Dopplerverbreitertes Spektroskopiesignal ohne Pumpstrahl. Mitte: Dopplerfreies Spektroskopiesignal mit Pumpstrahl. Die zusätzliche Flanke entsteht durch die Lamb-Dips und zeigt die genaue Position des Übergangs. Unten: Dopplerfreies Spektroskopiesignal mit inkohärent verbreitertem Laser durch Modulation mit weißem Rauschen mit 5,3 V Amplitude (Linienbreite ca. 52 MHz).

einer Amplitude von 5,3 V zu einer Linienbreite der Laserstrahlung von 52 MHz führt. Als Folge nimmt insbesondere die Amplitude und die Steigung der dopplerfreien Strukturen ab. Die Flanken sind aber noch so stark ausgeprägt, dass eine Stabilisierung weiterhin möglich ist.

Eine vergrößerte Darstellung des ^{202}Hg Fehlersignals bei einer ECDL Linienbreite von 52 MHz ist in Abbildung 3.29 zu sehen. Auf der Signalflanke lässt sich der Stabilisierungspunkt um ca. 36 MHz verschieben. Wird der Regelkreis über den Piezoaktor des ECDLs geschlossen, ergibt sich die über einen Zeitraum von 100 s dargestellte Regelabweichung in rot.

Durch die Anpassung einer Geraden an die Flanke des Fehlersignals lässt sich die Spannungsfuktuation in eine Frequenzabweichung umrechnen. Für die Anpassung ergibt sich eine Steigung von 1,8 mV/MHz.

Damit ergibt sich die in Abbildung 3.30 gezeigte Frequenzabweichung. Die Frequenzstabi-

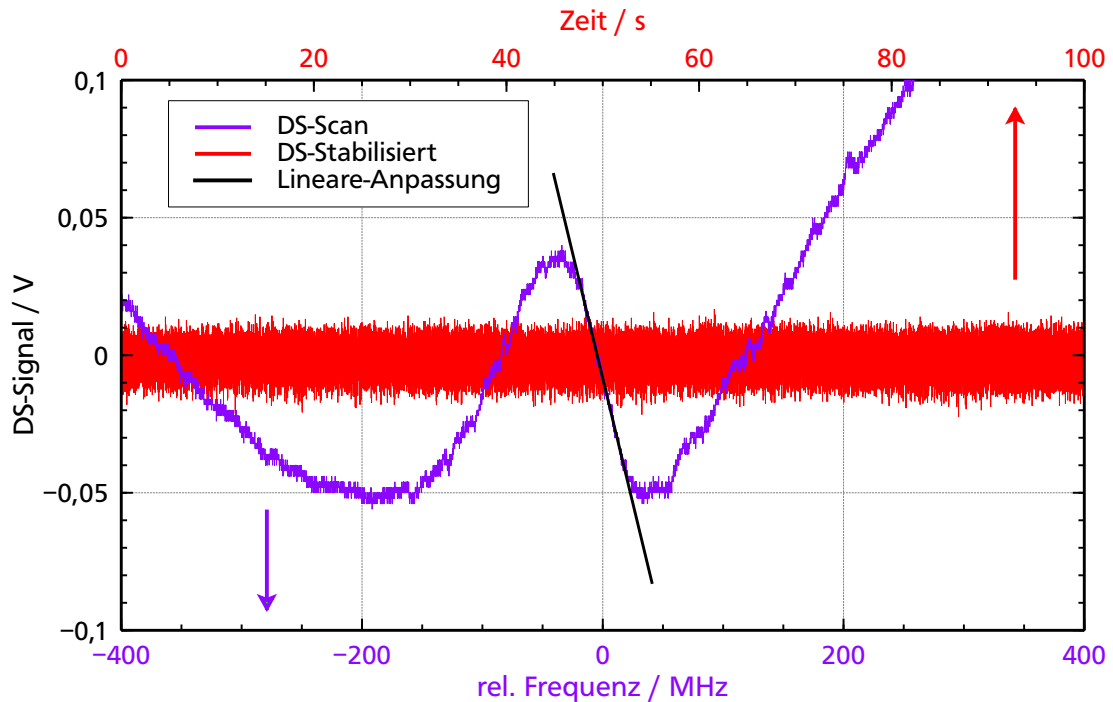


Abbildung 3.29: Vergrößerte Darstellung des Fehlersignals für einen Scan über das ^{202}Hg Isotop in violett und das Fehlersignal beim schließen des Regelkreises in rot. Die schwarze Gerade ist eine lineare Anpassung an die Steigung des ^{202}Hg Fehlersignals.

lität für die 100 s Messung im linken Teil weist eine Standardabweichung von 3 MHz bei einer Spitze-zu-Spitze Abweichung von 24 MHz auf. Im rechten Teil der Abbildung ist ein zeitlicher Ausschnitt von 100 ms gezeigt. In diesem ist deutlich eine Modulation mit einer Frequenz von 50 Hz zu sehen, die auf eine instabile Entladung durch die Oszillatorschaltung zurückzuführen ist. Durch die Schwankung der Intensität verschiebt sich der Nullpunkt des Fehlersignals und somit auch die Frequenz des Lasers.

Die große Linienbreite des 404,7 nm ECDL und der Einsatz als Rückpumpplaser machen die verbleibende Frequenzabweichung bei geschlossenem Regelkreis tolerierbar.

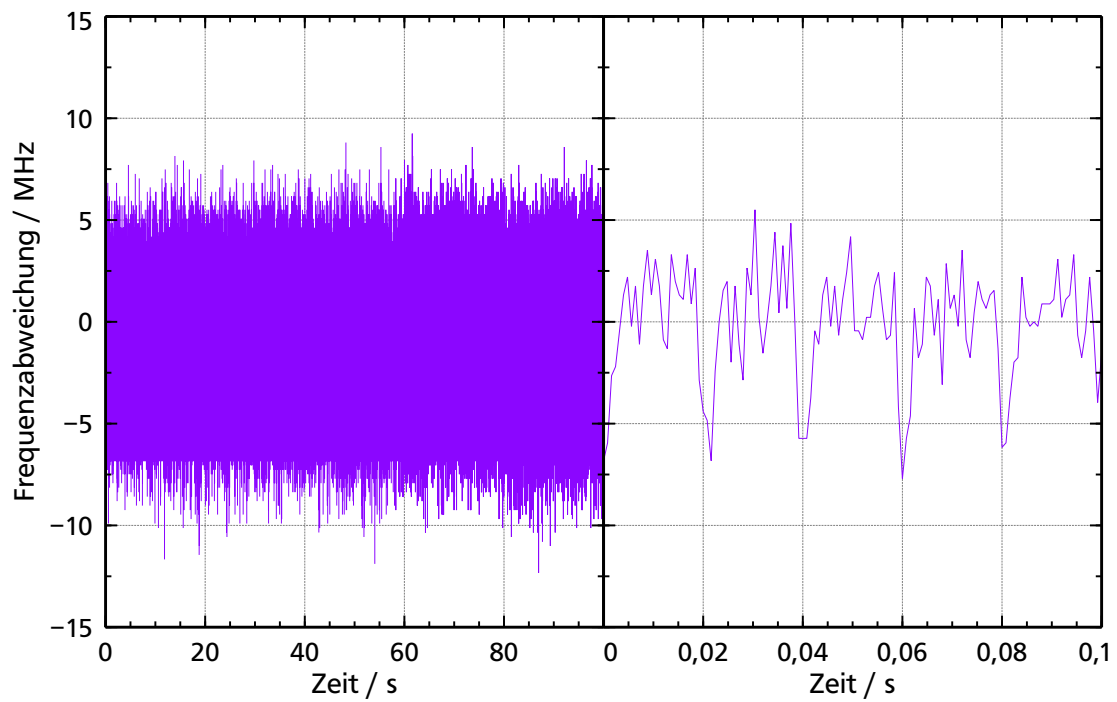


Abbildung 3.30: Links: Verbleibende Frequenzschwingung beim schließen des Regelkreises.
Rechts: Ausschnitt der ersten 100 ms. Es ist deutlich eine 50 Hz Schwingung zu erkennen.

3.6 Das 253,7 nm Lasersystem

Das UV-Lasersystem bei 253,7 nm war ursprünglich nur für die ersten spektroskopischen Messungen des Quecksilbergrundzustandes und die Verifizierung des theoretischen Modells angedacht. Es steht jedoch nach dem aktuellen Stand im Fokus erster Messungen von AWI (*amplification without inversion*) in Quecksilber, da es die Möglichkeit bietet, sowohl den Probenstrahl als auch die inkohärente Pumpe zur Verfügung zu stellen (siehe Abschnitt 3.7). Aufgrund der ursprünglichen Überlegung und der zusätzlichen Komplexität wurde darauf verzichtet, ein eigenständiges UV-Lasersystem aufzubauen. Statt dessen werden Teile bereits vorhandener Lasersysteme genutzt. Dazu gehören ein ECDL, Faserverstärker und eine Verdopplungsstufe eines Systems, das für das Fangen und Kühlen von Quecksilber in einer magneto-optischen Falle verwendet wird [59, 60, 130], sowie die zweite Verdopplungsstufe eines Systems, welches für das Kühlen von Ionenstrahlen eingesetzt wird [61, 131]. Das komplette UV-System wird im Folgenden nur grob vorgestellt. Für eine detaillierte Beschreibung der einzelnen Komponenten sei auf die jeweiligen genannten Veröffentlichungen verwiesen.

Eine stark vereinfachte Darstellung des UV-Systems ist Abb. 3.31 zu entnehmen. Die ersten drei Komponenten befinden sich auf einem benachbarten optischen Tisch. Ein Interferenzfilter stabilisierter ECDL [132] liefert die Seed-Strahlung bei 1014,8 nm für einen anschließenden Ytterbium-Faserverstärker. Da die Absorption von Ytterbium im Wellenlängenbereich um 1014 nm bei Raumtemperatur stark zunimmt ist es notwendig, die Faser auf ca. $-55\text{ }^{\circ}\text{C}$ zu kühlen. Die polarisationserhaltende Yb-Faser wird rückwärts bei 976 nm mit einer maximalen Leistung von 9,5 W gepumpt. Als Seedleistung stehen bis zu 30 mW vor der Verstärkerfaser zur Verfügung. Nach dem Faserverstärker stehen bis zu 2,9 W bei 1014,8 nm für die folgende Frequenzverdopplung zur Verfügung.

Für die erste Frequenzverdopplung wird ein Lithiumniobat-Kristall (LBO) verwendet, der im fokussierten Ast eines *bow-tie* förmigen Resonators für die Leistungsüberhöhung sitzt, ähnlich wie in den bereits vorgestellten Systemen in Abschnitt 3.3.2 und 3.4.2. Die Phasenanpassung erfolgt nicht-kritisch bei einer Temperatur von $205,78\text{ }^{\circ}\text{C}$. Der Resonator wird über das Pound-Drever-Hall Verfahren auf die Fundamentalwellenlänge stabilisiert, die notwendige Frequenzmodulation wird dem Laserdiodenstrom direkt aufgeprägt.

Eine Messung der erzeugten Leistung bei 507,4 nm und die daraus resultierende Konversionseffizienz ist in Abbildung 3.32 links aufgetragen. Die Fundamentalleistung wurde dabei direkt vor dem Einkoppelspiegel des Resonators gemessen. Es konnten bis zu 940 mW Grünleistung bei einer Fundamentalleistung von 2,56 W erreicht werden. Dies entspricht einer Konversionseffizienz von 36,7 %.

Das Licht bei 507,4 nm wird über eine polarisationserhaltende Einmodenfaser auf den optischen Tisch des LWI-Experiments geführt und dort in die zweite Verdopplungsstufe gelenkt. Die zweite Frequenzverdopplung findet in einem Bariumborat-Kristall (BBO) statt. Dieser sitzt wiederum in einem *bow-tie* förmigen Resonator. Die Phasenanpassung erfolgt kritisch über den Kristallwinkel. Da der Kristall für die Verdopplung bei einer Wellenlänge von 514 nm vorgesehen ist, beträgt der Schnittwinkel $\Theta = 50,2^{\circ}$. Für die Wellenlänge von

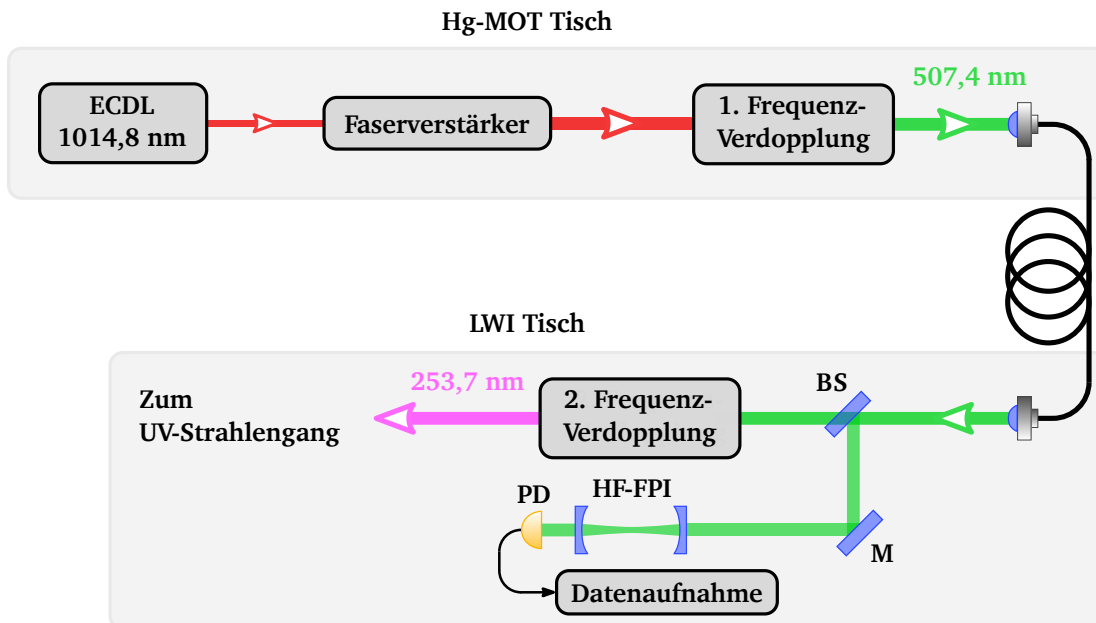


Abbildung 3.31: Schematischer Aufbau des 253,7 nm Lasersystems. Fundamentallaser, Faserverstärker und die erste Frequenzverdopplungseinheit befinden sich auf einem benachbarten optischen Tisch. Das Licht bei 507,4 nm wird über eine polarisationserhaltende Einmodenfaserverbindung auf den Tisch des LWI-Experiments geführt. Ein Fabry-Pérot Resonator mit hoher Finesse (HF-FPI) dient zur Frequenzkalibrierung beim scannen der 507,4 nm Strahlung.

507 nm wird jedoch ein Winkel $\Theta = 51,2^\circ$ für eine optimale Phasenanpassung benötigt. Durch die planparallel geschliffen und antirefektiv beschichteten Endflächen des Kristalls lässt sich die Winkeldifferenz ohne nennenswerte Konversionsverluste durch eine Justage ausgleichen.

Für die Pound-Drever-Hall Stabilisierung des Resonators wird ein elektro-optischer Modulator verwendet, um die notwendigen Seitenbänder auf das grüne Licht zu modulieren.

In Abbildung 3.32 rechts ist eine Messung der erreichten UV-Leistung über der Fundamentalleistung bei 507,4 nm, sowie der daraus resultierenden Konversionseffizienz zu sehen. Bei einer Grünleistung von 340 mW vor dem Resonator wird eine UV-Leistung von 28,1 mW erzeugt. Dies entspricht einer Konversionseffizienz von 8,3 %. Nach eingehender Optimierung der ersten Verdopplungsstufe konnten bis zu 800 mW an Grünleistung vor dem zweiten Resonator und bis zu 75 mW an UV-Leistung erreicht werden. Ab einer UV-Leistung > 30 mW beginnt diese zu degradieren. Ein Grund hierfür ist, dass auch die Grünleistung über die Zeit degradiert da die Strahlage nach dem Faserverstärker bei hohen Leistungen durch thermische Effekte nicht stabil ist. Ein weiterer Grund liegt im BBO-Kristall selbst. Ein Degradieren

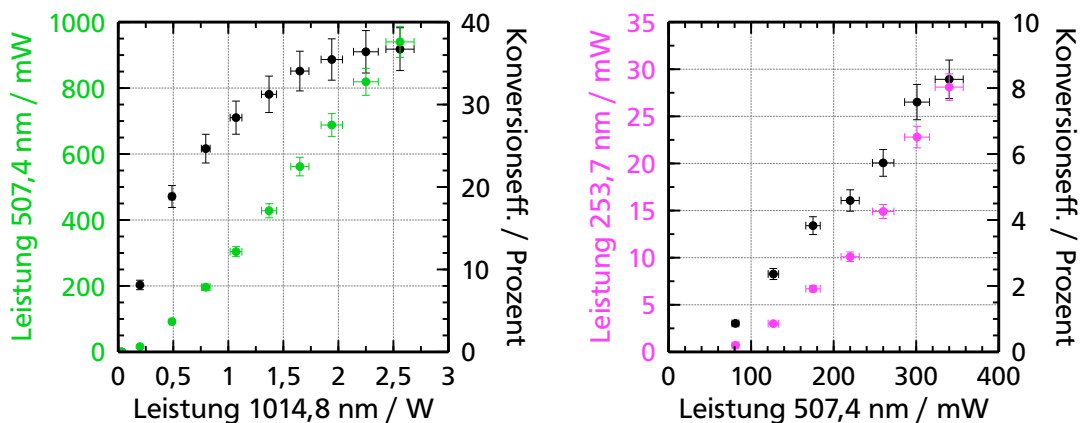


Abbildung 3.32: Links: Konversionseffizienz der Frequenzverdopplung von 1014,8 nm und die daraus resultierende Leistung bei 507,4 nm, aufgetragen über die opt. Leistung des Fundamentallasers. Rechts: Konversionseffizienz der Frequenzverdopplung von 507,4 nm und die daraus resultierende Leistung bei 253,7 nm, aufgetragen über die opt. Leistung des Fundamentallasers.

der UV-Leistung ist ein bekannter Effekt dessen Ausmaß unter anderem stark vom jeweiligen BBO-Kristall selbst abhängig ist [133, 134] und für den in dieser Arbeit verwendeten Kristall schon bei geringen Leistungen < 100 mW auftritt.

Über einen Strahlteiler wird ein kleiner Teil des Lichts bei 507,4 nm vor dem zweiten Verdopplungsresonator abgezweigt und in einen konfokalen Fabry-Pérot Resonator³⁵ mit einem freien Spektralbereich von $1,00 \pm 0,01$ GHz und einer Finesse > 290 gekoppelt. Das Signal der Airy-Peaks wird für die Frequenzkalibration beim Scannen der 507,4 nm Strahlung verwendet.

Die Linienbreite des Interferenzfilter stabilisierten ECDL wurde durch eine verzögerte selbstheterodyne Messung, wie in Kapitel 5 beschrieben, bestimmt. Für eine Verzögerungsstrecke mit einer zeitlichen Verzögerung von $1,74 \mu\text{s}$ ergibt sich eine Linienbreite von ca. 26 kHz. Die Linienbreite der UV-Strahlung konnte nicht vermessen werden, da zum Zeitpunkt dieser Arbeit keine Verzögerungsstrecke für diese Wellenlänge verfügbar war.

³⁵FPI 100, TOPTICA Photonics AG

3.7 Der 253,7 nm Strahlengang und die Überlagerungszone

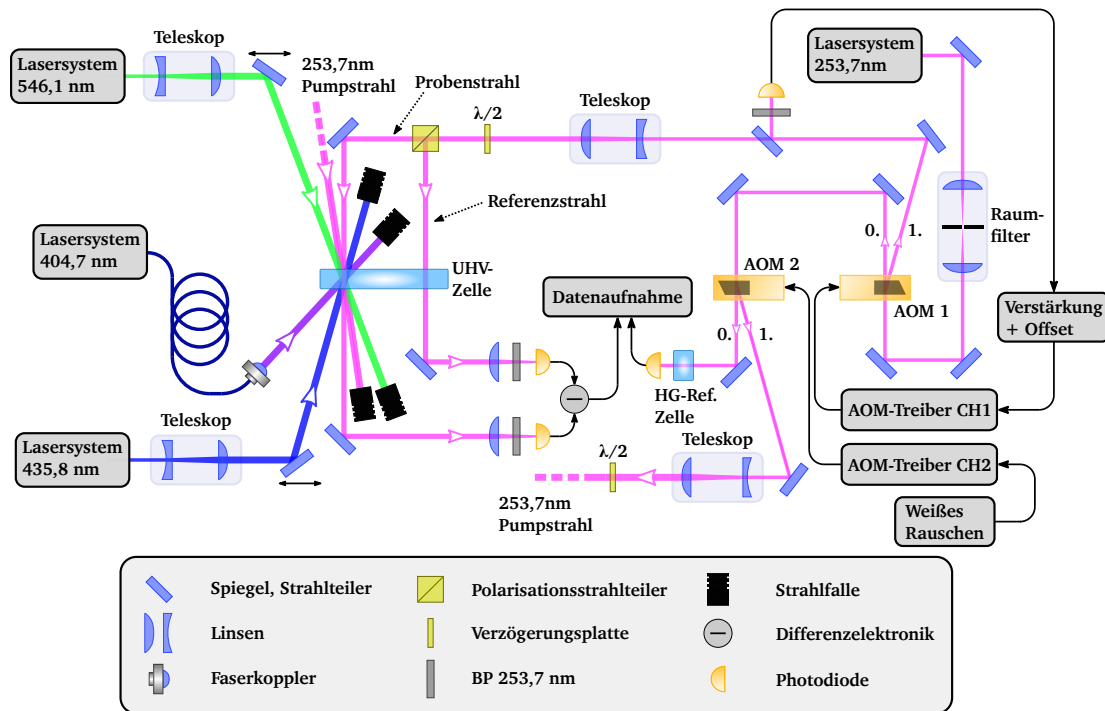


Abbildung 3.33: Der UV-Strahlengang und die Überlagerung aller Laserstrahlen in der UHV-Zelle.

3.7 Der 253,7 nm Strahlengang und die Überlagerungszone

Das UV-Licht aus dem zweiten Verdopplungsresonator kann nicht direkt für die Spektroskopie der Überlagerungszone in der UHV-Zelle verwendet werden. Zum einen ist eine Strahlformung notwendig, da nach dem Überhöhungsresonator kein gaußförmiges Strahlprofil vorhanden ist. Zum anderen soll der UV-Strahl auch gleichzeitig als inkohärente Pumpe des 253,7 nm Übergangs dienen. Im Folgenden wird die Aufteilung und Präparation des UV-Strahls erläutert und die Überlagerungszone vorgestellt.

Eine detaillierte Darstellung des UV-Strahlengangs und der Überlagerung aller Laserstrahlen ist in Abbildung 3.33 zu sehen. Die vier Laserstrahlen werden durch die vier in den vorhergehenden Abschnitten im Detail vorgestellten Lasersysteme zur Verfügung gestellt.

Das Strahlprofil des UV-Strahls weist nach der Frequenzverdopplung im BBO-Kristall ein deutliches Interferenzmuster auf wie in Abb. 3.34 links zu sehen ist. Dieses entsteht durch den recht großen Kristallwinkel von $\Theta = 51,2^\circ$ für die kritische Phasen Anpassung und dem daraus resultierenden *walk-off* der verdoppelten Laserstrahlung. An verschiedenen Stellen im Kristall konvertiertes Licht interferiert und erzeugt so das abgebildete Strahlprofil [135]. In dieser Form kann es nicht für die Überlagerung bzw. die AWI-Messungen verwendet werden. Um ein gaußförmiges Profil zu erhalten kommt deshalb ein Raumfilter mit einem

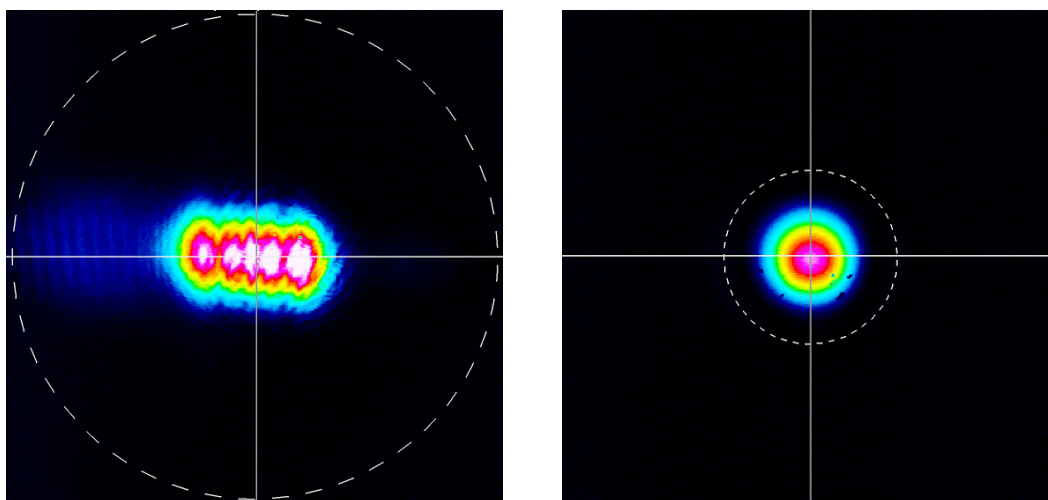


Abbildung 3.34: Links: Strahlprofil des 253,7 nm Lichts, gemessen 20 cm nach dem Überhöhungsresonator. Das Interferenzmuster entsteht durch den großen *walk-off* Winkel des BBO-Kristalls. Rechts: Durch den Raumfilter bereinigtes, gaußförmiges Strahlprofil, gemessen vor der UHV-Zelle.

Pinhole mit 150 μm Durchmesser zum Einsatz. Dieser transferiert das Interferenzmuster in ein sauberes, gaußförmiges Strahlprofil, wie es in Abb. 3.34 rechts zu sehen ist und vor der UHV-Zelle gemessen wurde. Der Leistungsverlust in die höheren Raummoden beträgt dabei ca. 45 %.

Das UV-Licht besitzt durch den ECDL als Fundamentallaser eine ähnlich schmale Linienbreite wie die beiden Kopplungslaser bei 436,8 nm und 546,1 nm. Dies ist für die ersten AWI-Messungen auch wünschenswert, für den Einsatz als inkohärente Pumpe allerdings nicht geeignet. Eine Verbreiterung des ECDL, wie bei dem 404,7 nm System angewendet, scheidet aus, da danach kein schmalbandiger Anteil zur Verfügung stehen würde. Aus diesem Grund wird ein akusto-optischer Modulator (AOM) verwendet, um die Frequenzbreite des als Pumpstrahl verwendeten UV-Anteils zu vergrößern [23, 136].

Der hierfür eingesetzte AOM³⁶ ist in Abb. 3.33 mit AOM 2 bezeichnet und besitzt eine Modulationsfrequenz von 200 MHz und eine rf-Bandbreite von 60 MHz und bei einem Strahldurchmesser von 200 μm eine Video-Bandbreite von 15 MHz. Eine Modulation der Trägerfrequenz von 200 MHz mit weißem Rauschen bewirkt für den in die erste Beugungsordnung abgelenkten Strahl eine der Trägerfrequenz entsprechende Frequenzverschiebung und zusätzlich eine Vergrößerung der Linienbreite.

Aufgrund der Frequenzverschiebung des Pumpstrahls um 200 MHz muss auch der Probenstrahl um die gleiche Frequenz verschoben werden, damit beide Strahlen in der Frequenz-

³⁶M1212-aQ200-0.8, Isomet Corporation

domäne überlappen. Dafür wird ein identischer AOM, in Abb. 3.33 mit AOM 1 bezeichnet, verwendet. So ist es möglich zusätzlich eine Leistungsstabilisierung des Probenstrahls zu implementieren. Dafür wird die erste Beugungsordnung von AOM 1 als Probenstrahl verwendet und über einen Strahlteiler ein kleiner Teil des Lichts auf eine Photodiode geleitet. Das Signal der Photodiode wird verstärkt und kann mit einer Offset-Spannung verschoben und an den AOM-Treiber³⁷ gegeben werden. Dieser FPGA basierte Treiber verfügt über zwei getrennt ansteuerbare Verstärkerstufen mit bis zu 4 W Ausgangsleistung. Wichtig für seinen Einsatzzweck sind analoge Modulationseingänge mit 10 MHz Bandbreite, über die das weiße Rauschen auf die Trägerfrequenz des AOM 2 addiert wird. Weiterhin verfügt der Treiber über einen digitalen PID-Regler, der durch das Offset-verschobene Signal der Photodiode als *noise-eater* zur Leistungsstabilisierung des Probenstrahls fungiert. Typische Werte für die UV-Leistung vor AOM 1 sind mehrere mW, von denen weniger als 100 μ W in die erste Beugungsordnung abgelenkt werden.

Die Beugungseffizienz der AOMs beträgt ca. 84 %. Somit verbleibt in der nullten Ordnung von AOM 2 noch genügend Leistung für eine einfache Absorptionsspektroskopie einer Quecksilberdampfzelle. Da die nullte Ordnung im Vergleich zu Pump- und Probenstrahl durch die AOMs nicht verschoben wurde, ist es möglich durch das Absorptionssignal eine alternative Frequenzkalibration, zum im Abschnitt 3.6 beschriebenen Fabry-Pérot Resonator, vorzunehmen.

Wie in Abschnitt 6.1 gezeigt wird sind für die Spektroskopie der drei-Photonen Resonanz durch den 253,7 nm Probenstrahl sehr schmale und kleine Strukturen zu erwarten. Für ein besseres Signal-zu-Rausch Verhältnis wird der Probenstrahl durch eine $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte und einen Polarisationsstrahlteiler³⁸ in zwei Strahlen gleicher Intensität aufgeteilt. Ein Strahl, genannt Probenstrahl, passiert in der UHV-Zelle die Überlagerungszone, der zweite Strahl, genannt Referenzstrahl, passiert die Zelle 10 mm unterhalb der Überlagerungszone (siehe auch Abb. 4.1) und erfährt eine normale, nicht modifizierte Absorption. Dabei wird besonders darauf geachtet, dass beide Strahlen die gleiche Wegstrecke in der Zelle zurücklegen. Anschließend werden beide Strahlen von zwei UV-Photodioden³⁹ mit einer Wellenlängenempfindlichkeit im Bereich von 210 nm bis 380 nm und einer Fläche von 2 mm \times 2 mm detektiert. Vor den Photodioden ist ein Tubus mit jeweils einer Irisblende und einem Bandpassfilter⁴⁰ mit einer Zentralwellenlänge von 250 nm und einer Bandbreite von 15 nm montiert, damit kein Streulicht der anderen Laser bzw. des Deckenlichts (das durch die Leuchtstoffröhren auch einen erheblichen UV-Anteil aufweist) auf die Photodioden gelangen kann. Durch eine Reihenschaltung der Photodioden kann direkt das Differenzsignal gebildet und verstärkt werden. Zusätzlich ist es möglich auch das Signal der Photodioden getrennt voneinander aufzunehmen. Die Schaltung wurde in Anlehnung an die in [59] vorgestellte Differenzelektronik selbst gebaut und modifiziert. Der Schaltplan wird in Anhang C vorgestellt.

³⁷Agile RF synthesizer XRF421, MOG Laboratories Pty Ltd.

³⁸Dünnschichtpolarisator TFP-248-PP1025SQ1, Laser Components GmbH

³⁹JEC4, LASER COMPONENTS GmbH

⁴⁰Hg01-254-25, Semrock Inc.

Die dopplerfreie Konfiguration der drei-Photonen Resonanz kann nur funktionieren wenn die Winkel des UV-Probenstrahls, sowie der beiden Kopplungslaser exakt ausgerichtet sind. Die Justage erfolgt durch eine Schablone, auf der pro Strahl vier Blenden ausgerichtet werden können, um den Winkel möglichst genau einzustellen. Die letzten Spiegel der Kopplungslaser vor der UHV-Zelle können zusätzlich linear verschoben werden. So ist es möglich die Überlagerung unter Beibehaltung der Winkel zu optimieren.

Der Pumpstrahl bei 253,7 nm wird unter einem möglichst geringen Winkel von ca. 5° in gleicher Propagationsrichtung zum Probenstrahl durch die Überlagerungszone geschickt.

Der Winkel des 404,7 nm Rückpump lasers ist unkritisch. Die Kollimation des Strahls durch ein Mikroskopobjektiv nach der Auskopplung aus der Transportfaser ermöglicht ein leichtes Verstellen des Strahldurchmessers, so dass dieser für eine optimale Überlagerung angepasst werden kann.

4 UHV-Zelle mit Vakuumsystem und Quecksilberreservoir

In diesem Kapitel wird die Ultrahochvakuum-Zelle (UHV-Zelle) mit der Quecksilberatmosphäre, sowie der angeschlossene Vakuumaufbau mit Quecksilberreservoir vorgestellt. Gegenüber herkömmlichen, geschlossenen Glaszellen bietet eine UHV-Zelle einige Vorteile. Ein in das Vakuumsystem integriertes und temperaturstabilisiertes Quecksilberreservoir (Hg-Reservoir) ermöglicht eine Veränderung des Dampfdrucks und somit der Absorption bei gegebener Wegstrecke innerhalb der Zelle. Durch die räumliche Trennung der Zelle und des Reservoirs kann an den Zellenfenstern bei niedrigen Reservoirtemperaturen unterhalb des Taupunktes kein Wasser kondensieren.

Im Hinblick auf *lasing without inversion* ist eine Antireflexbeschichtung der Zellenfenster an Innen- und Außenseite erforderlich, um die Verluste durch Reflektionen kleiner als die Verstärkung zu halten. Bei konventionellen Dampfzellen werden die Zellenfenster unter hoher Temperatur von 970 °C an den Glaskörper geschmolzen [137]. Bis auf wenige, extrem teure Ausnahmen [138], kann eine Antireflexbeschichtung diesen Temperaturen nicht standhalten. So können nachträglich nur die Außenseiten der Zellenfenster beschichtet werden. Bei der verwendeten UHV-Zelle sind sowohl Innen- als auch Außenseiten antirefektiv beschichtet.

4.1 Die UHV-Zelle und das Vakuumsystem

Die UHV-Zelle wurde von der Firma Japan Cell Co. gefertigt. Wie in Abbildung 4.1 (links) dargestellt ist, besitzt die Zelle eine keilförmige Geometrie. Diese erlaubt es durch ein Verschieben der Zelle die Absorptionsstrecke bzw. Länge der Überlagerungszone der Laserstrahlen zu verändern. Darüber hinaus verhindert die Keilform einen Etalonneffekt durch die Zellenfenster. Die Höhe der Zellenfenster von 20 mm erlaubt es zwei Strahlen vertikal versetzt durch die Zelle zu führen, so dass beide Strahlen die gleiche Absorptionsstrecke in der Zelle durchlaufen. Dies entspricht der in Kapitel 6 vorgestellten Geometrie, die zu einer besseren Visualisierung in Abbildung 4.1 (rechts) als 3D-Ansicht dargestellt ist. Diese Ansicht ist maßstabsgetreu, mit der exakten dopplerfreien Winkelgeometrie und Strahldurchmessern von 2 mm.

Die Zellenfenster sind auf der Innen- und Außenseite mit einer Antireflexbeschichtung für alle vier verwendeten Wellenlängen von 253,7 nm, 404,7 nm, 435,8 nm und 546,1 nm versehen. Dies ist möglich, da die einzelnen Teile der Zelle verklebt werden und kein Aufheizen notwendig ist. Die Transmission durch die gesamte Zelle kann somit für alle vier Wellenlängen auf > 97% erhöht werden.

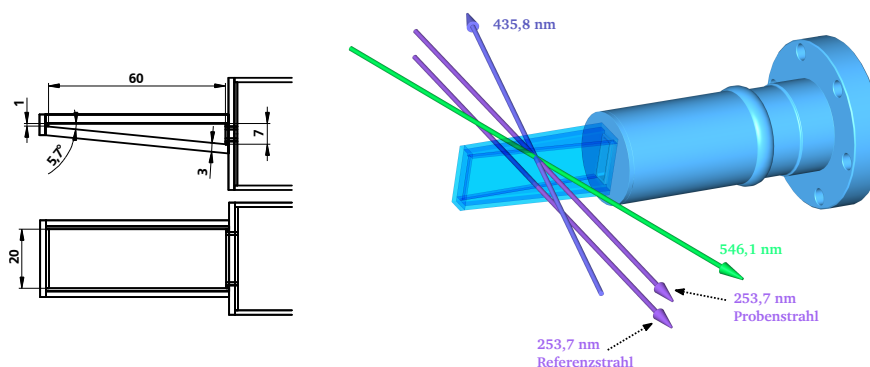


Abbildung 4.1: Links: Abmessungen der keilförmigen UHV-Zelle; Rechts: 3D-Ansicht der UHV-Zelle. Proben- und Referenzstrahl verlaufen vertikal versetzt durch die Zelle, so dass die Absorptionsstrecke für beide Strahlen identisch ist.

Die UHV-Zelle besitzt einen CF-40 Flansch als Verbindung zum Vakuumsystem, dass in Abbildung 4.2 dargestellt ist. Innerhalb der Vakuumkammer befindet sich ein Edeltstahlöpfchen mit einem Tropfen Quecksilber⁴¹ mit natürlicher Isotopenzusammensetzung, welches als Reservoir dient. Das Töpfchen ist auf den Kupferstab einer Vakuum-Stromdurchführung⁴² geschraubt. Der Durchmesser der Kupferdurchführung beträgt 9,5 mm und bietet dadurch eine große Kontaktfläche. Auf der Atmosphärenseite ist die Kupferdurchführung mit einem dreistufigen Peltierelement⁴³ verbunden, das es ermöglicht die Temperatur des Hg-Reservoirs zu regeln. Durch die Temperaturabhängigkeit des Dampfdrucks kann so auch die Teilchendichte des Quecksilbers in der UHV-Zelle eingestellt werden. Das Reservoir kann dabei auf eine Temperatur von bis zu -40 °C gekühlt werden. Ein Ventil ermöglicht es das Reservoir von der restlichen Kammer abzutrennen.

Ein zweites Ventil führt über einen flexiblen DN 40 ISO-KF Wellschlauch zum Vakuumpumpstand⁴⁴. Der Pumpstand besteht aus einer Turbopumpe und einer Membranpumpe als Vorpumpe. Der Wellschlauch erlaubt es den gesamten Vakuumaufbau aus Abb. 4.2, unabhängig vom Pumpstand zu verschieben. Über ein zweites Ventil kann der Pumpstand von der Vakuumkammer getrennt werden, so dass der Dampfdruck in der Vakuumkammer von der Temperatur des Hg-Reservoirs bestimmt wird.

Durch einen Drucksensor⁴⁵ wird der Druck im System gemessen. Bei geschlossenem Ventil zum Hg-Reservoir liegt der erreichbare Druck im Bereich von $2 \cdot 10^{-7}$ mbar, hauptsächlich limitiert durch die verwendeten ISO-KF Flansche.

Zur Kompensation des Erdmagnetfeldes wurden drei Helmholtz-Spulenpaare um die UHV-Zelle installiert, wobei das Magnetfeld eines Spulenpaares parallel zum 253,7 nm Laserstrahl ausgerichtet ist. Die zwei anderen Spulenpaare sind entlang der verbleibenden Raumrich-

⁴¹Suprapur Quecksilber 99,9999%, Merck KGaA

⁴²17099-06-CF, CeramTec GmbH

⁴³9530/228/060 B, Ferrotec Europe GmbH

⁴⁴HiCube 80 Eco, Pfeiffer Vacuum GmbH

⁴⁵PKR 251, Pfeiffer Vacuum GmbH

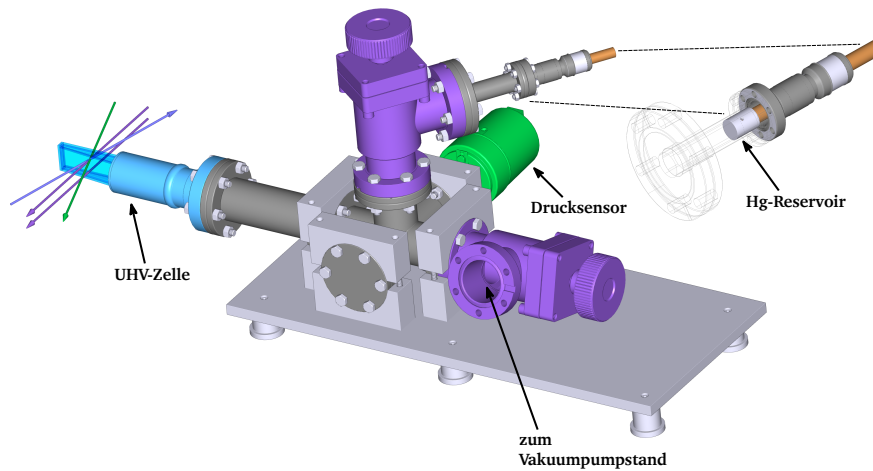


Abbildung 4.2: Ansicht des gesamten Vakuumsystems. Die vergrößerte Darstellung der Vakuum-Stromdurchführung zeigt das, innerhalb der Kammer liegende, Hg-Reservoir.

tungen ausgerichtet. Die Ringspulen haben einen Durchmesser von 90 mm und jeweils 30 Wicklungen. Durch die runde Geometrie der Spulen besitzt nur das Spulenpaar entlang der UV-Strahlrichtung den idealen Abstand von $l = 45$ mm. Die Abstände der anderen Helmholtz-Spulenpaare ist mit 76 mm und 92 mm größer und das Magnetfeld entlang der jeweiligen Raumachse zwischen den Spulen nicht mehr gänzlich homogen. Da die Überlagerungszone der Laser aus Kapitel 6 mit 2 mm klein gegenüber den Spulendurchmessern ist, sollte die Homogenität des Feldes in diesem Bereich jedoch ausreichend sein.

Die drei Spulenpaare werden separat über eine stabile vier-Kanal Stromquelle⁴⁶ angesteuert. Das bei einem Strom von 3 A erreichbare Magnetfeld liegt bei 1,70 mT in Richtung des UV-Strahls und 0,96 mT bzw. 0,70 mT für die anderen beiden Raumrichtungen.

4.2 Spektroskopische Eigenschaften der UHV-Zelle

Anhand der einstellbaren Temperatur des Hg-Reservoirs kann der Dampfdruck und somit die Teilchendichte des Quecksilberdampfes in der Vakuumkammer verändert werden. Mit der Teilchendichte verändert sich auch die Stärke der Absorption des 253,7 nm Laserstrahls, wenn dieser über den atomaren Übergang eines der Hg-Isotope verstimmt wird.

Zur Messung der Absorptionsprofile wird der 253,7 nm Laserstrahl, wie in Abschnitt 3.7 beschrieben, wieder zu gleichen Teilen in einen Proben- und Referenzstrahl aufgeteilt. Die Detektion erfolgt jedoch nicht über die Differenzphotodiode, sondern durch zwei separate UV-Photodioden. Eine Photodiode detektiert den Probenstrahl nach dem Durchlaufen der UHV-Zelle. Die andere Photodiode detektiert den Referenzstrahl vor der UHV-Zelle und dient

⁴⁶HM 7044, HAMEG Instruments GmbH

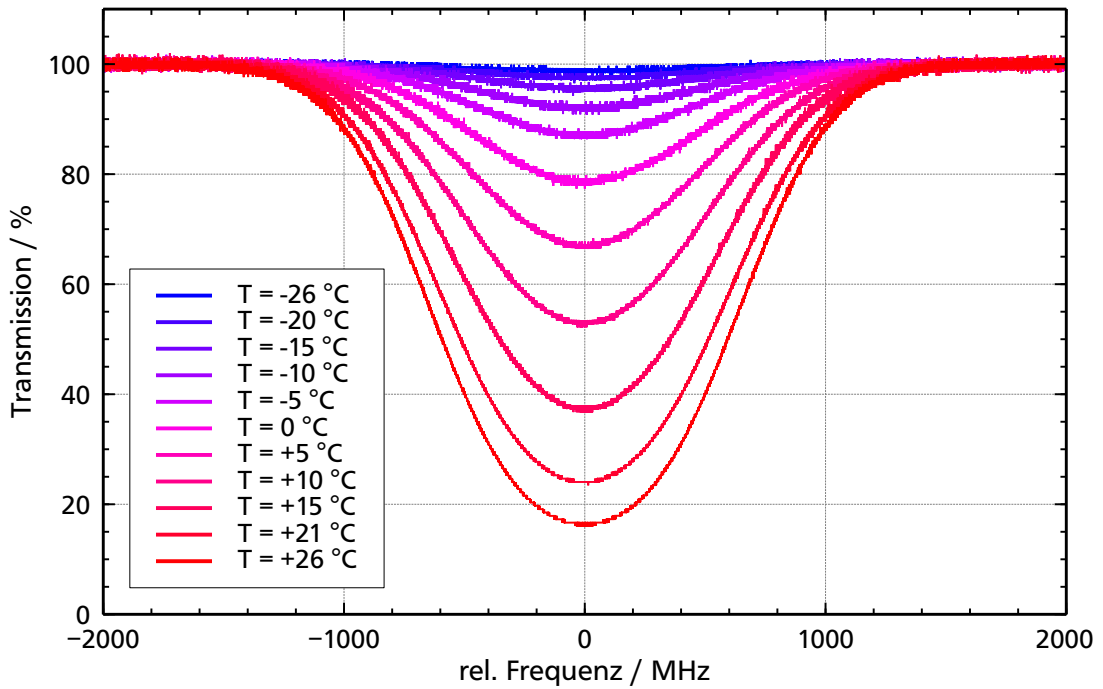


Abbildung 4.3: Normierte Absorptionsspektren für verschiedenen Hg-Reservoir Temperaturen. Die Frequenz des 253,7 nm Lasers wurde relativ zur atomaren Linie des ^{202}Hg -Isotops verstimmt.

nur zur Kontrolle der 253,7 nm Leistung. Damit der Dampfdruck nur durch das Quecksilber bestimmt wird, muss der Pumpstand durch das Ventil von der Vakuumkammer getrennt werden.

In Abbildung 4.3 sind normierte Absorptionsspektren für einen Temperaturbereich von -26 °C bis $+26\text{ °C}$ dargestellt. Die Frequenz des 253,7 nm Lasers wurde dafür über die Linie des ^{202}Hg -Isotops verstimmt. Die Absorptionsstrecke durch die UHV-Zelle beträgt 2 mm. Der Probenstrahl besitzt eine Leistung von $30\text{ }\mu\text{W}$. Bei einem Strahldurchmesser von $840\text{ }\mu\text{m}$ ergibt sich daraus eine Intensität von $54\text{ }\mu\text{W}/\text{mm}^2$ und ein Sättigungsparameter von $S_0 = 0,53$. Die Aufbereitung der Rohdaten für die abgebildeten Spektren ist in Anhang F beschrieben.

Mit den Messungen aus Abb. 4.3 kann die minimale Transmission und die Dopplerbreite in Abhängigkeit von der Temperatur des Hg-Reservoirs bestimmt werden. Dafür wurde an die Spektren eine Gauß-Funktion unter Berücksichtigung der Absorptionsstrecke durch das Lambert-Beer'sche Gesetz angepasst. Die entsprechende Fit-Funktion $F_{abs}(\nu)$ hat die Form

$$F_{abs}(\nu) = \exp(-G(\nu) \cdot l) \quad (4.1)$$

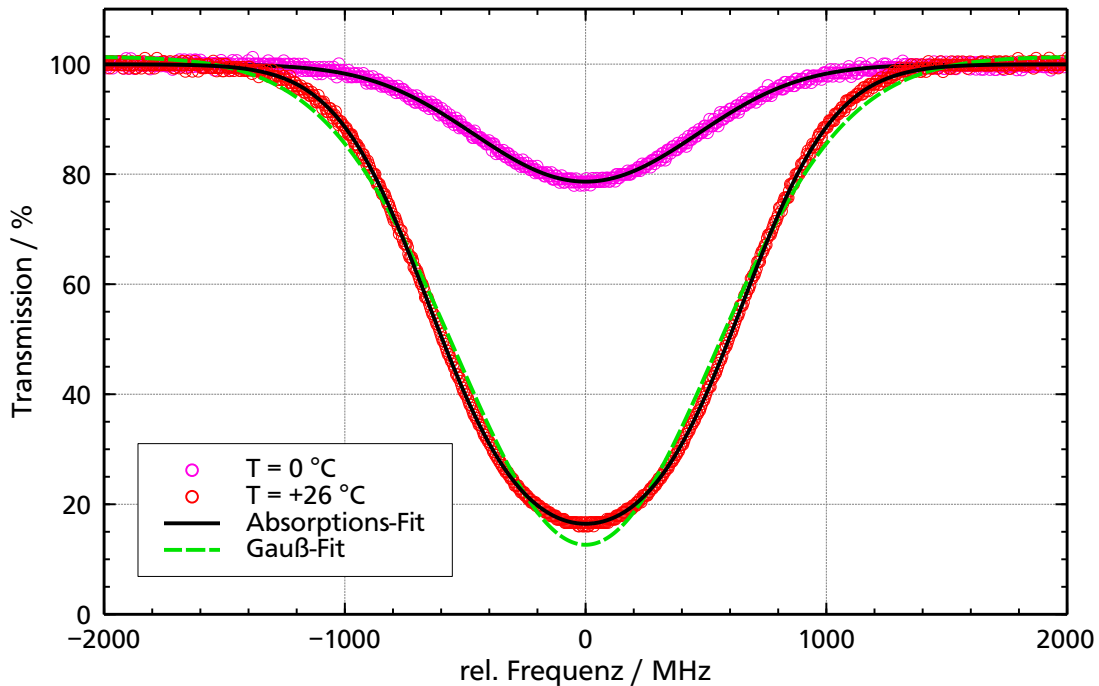


Abbildung 4.4: Anpassung der Fit-Funktion $F_{abs}(\nu)$ nach Gleichung 4.1 an die Absorptionsspektren bei 0 °C und +26 °C, eingezeichnet als schwarze Kurve. Zum Vergleich ist die Anpassung einer Gauß-Funktion als grüne Kurve gezeigt.

mit der Absorptionsstrecke durch die UHV-Zelle $l = 2 \text{ mm}$ und einer Gauß-Funktion $G(\nu)$. Zwei beispielhafte Anpassungen der Funktion $F_{abs}(\nu)$, sind in Abb. 4.4 als schwarze Kurven für die Spektren bei 0 °C und +26 °C gezeigt. Ebenfalls dargestellt ist die Anpassung einer Gauß-Funktion $G(\nu)$ an das Spektrum für +26 °C, als grüne Kurve. Hierbei ist der Abweichung zum Absorptionsspektrum zu sehen, die sich durch die Absorptionsstrecke von 2 mm in der UHV-Zelle ergibt.

Abb. 4.5 zeigt die minimale Transmission und die Halbwertsbreite der Absorptionsspektren in Abhängigkeit von der Temperatur des Hg-Reservoirs, bestimmt durch die Anpassung der Funktion 4.1. Zusätzlich sind die theoretisch erwarteten Werte eingezeichnet. Hierfür wurde der Imaginäranteil der linearen Suszeptibilität $\chi''(\nu, T)$ in Abhängigkeit der Verstimmung ν und der Temperatur der Quecksilberatome T berechnet und aus diesem, unter Berücksichtigung der für Quecksilber relevanten Parameter für das ^{202}Hg -Isotop, der Absorptionskoeffizient $\alpha(\nu, T)$ bestimmt [139, 140]. Für die minimale Transmission bei $\alpha(0 \text{ Hz}, T)$ wurde die Wegstrecke von 2 mm durch die UHV-Zelle wie in Gleichung 4.1, durch das Lambert-Beer'sche Gesetz berücksichtigt. Der Sättigungsparameter des Probenstrahls ist

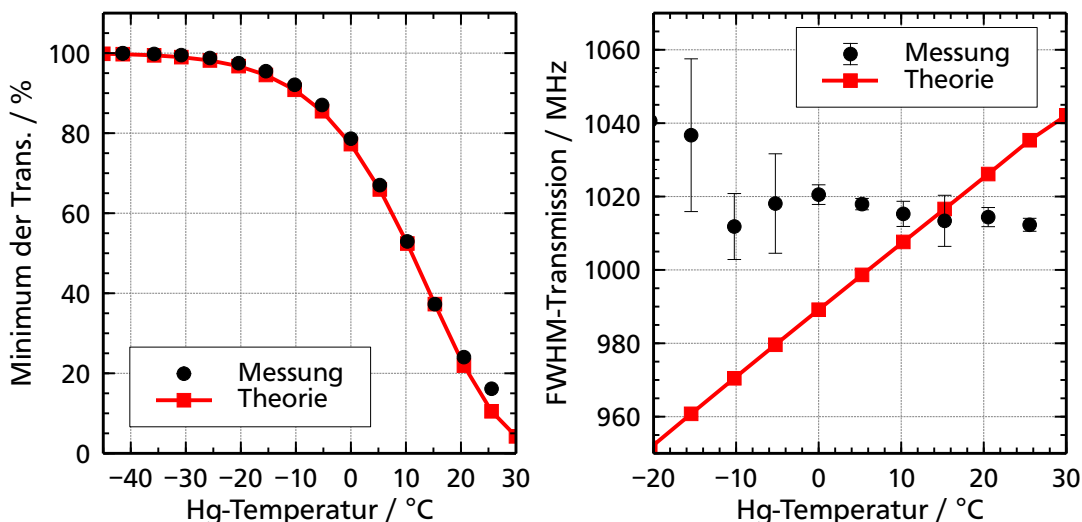


Abbildung 4.5: Minimale Transmission durch die UHV-Zelle und Halbwertsbreite des Absorptionsspektrums in Abhängigkeit von der Temperatur des Hg-Reservoirs. Die theoretisch erwarteten Werte sind als rote Punkte eingetragen. Die Verbindungslinie dient zur Führung der Augen.

ebenfalls in die Berechnung integriert. Dafür wird der Absorptionskoeffizient im Zentrum der Absorption mit $\alpha_{sat} = \alpha^{(0)}/(1+S_0)$ berechnet.

Die Dopplerbreite kann aus der Halbwertsbreite des für die Suszeptibilität $\chi''(\nu, T)$ berechneten Verlaufs bestimmt werden. Ein Vergleich der hierdurch gewonnenen Werte für die Halbwertsbreite mit der nach [4] Gleichung (3.25b) berechneten Dopplerbreite weist nur eine Abweichung im Bereich von 0,1% auf.

Ab einer Temperatur von ca. +20°C liegt die gemessene minimale Transmission über der theoretisch erwarteten. Da nur die Temperatur des Hg-Reservoirs verändert wird, entspricht die Temperatur der Vakuumkammer der Raumtemperatur von ca. 21°C. Steigt nun die Temperatur des Reservoirs über die Raumtemperatur, kann Quecksilber auf den Wänden der Kammer kondensieren. Entsprechend sinkt der Dampfdruck und auch die Absorption.

Die gemessene Dopplerbreite verändert sich im Temperaturbereich von -15°C bis +25°C im Gegensatz zum theoretischen Verlauf kaum und liegt bei einem Wert von ca. 1010 MHz. Diese Breite entspricht einer Temperatur der Quecksilberatome von ca. 16°C. Eine mögliche Ursache der konstanten Dopplerbreite kann in der räumlichen Entfernung des Hg-Reservoirs von der UHV-Zelle liegen. Bis die Quecksilberatome die Zelle erreichen finden zahlreiche Stöße mit den Wänden der Vakuumkammer statt. Dies führt zu einer Thermalisierung des Quecksilberdampfs mit der Temperatur der Wände [141] und somit zu einer von der Reservoirtemperatur weitgehend unabhängigen Dopplerbreite.

5 Linienbreiten der Lasersysteme

In Kapitel 2 wurde bereits verdeutlicht, wie groß der Einfluss der Laserlinienbreite für kohärente Anregungen im Allgemeinen und vor allem für das LWI-System in Quecksilber im Speziellen ist. Eine kleine Linienbreite der Lasersysteme ist entscheidend für die Sichtbarkeit der drei-Photonen Kohärenz und für die anschließende Realisierung von AWI. Eine genaue Kenntnis der Linienbreite, insbesondere die der 435,8 nm und 546,1 nm Lasersysteme, ist hilfreich um die in Kapitel 6 vorgestellten Spektren der drei-Photonen Kohärenz zu interpretieren.

Da alle verwendeten Lasersysteme nur ein Mal aufgebaut wurden und keine anderen Systeme mit bekannter Linienbreite existieren, die für eine heterodyne Messung verwendet werden könnten, wurde auf eine verzögerte selbst-heterodyne Messmethode (delayed self-heterodyne detection, kurz DSH) [142] zurückgegriffen. Während für die Fundamentallaser Verzögerungsstrecken von bis zu 14 km vorhanden waren, konnten die verdoppelten Wellenlängen nur mit einer 410 m langen Faser verzögert werden. Die daraus resultierende Verzögerungszeit liegt deutlich unterhalb der Kohärenzzeit t_K der Laserstrahlung. Somit kann die Linienbreite der Laser nicht mehr direkt aus der Halbwertsbreite des DSH-Spektrums abgelesen werden. Durch das Anpassen eines Modells ist es jedoch möglich auch für kurze Verzögerungszeiten, die Linienbreite zu bestimmen. Darüber hinaus ist es möglich die Anteile der Rauschkomponenten für weißes und $1/f$ -Rauschen (rosa Rauschen) zu bestimmen.

Als Kohärenzzeit wird im Allgemeinen der Zeitunterschied zwischen zwei Komponenten des gleichen optischen Feldes bezeichnet, für den beide gerade noch interferieren können [143]. Für einen Laser ist es sinnvoll, die Kohärenzzeit mit seiner Linienbreite in Verbindung zu bringen. So ist diese für ein Lorentz-förmiges Laserspektrum mit dessen Halbwertsbreite (angegeben in der Einheit Hertz) durch $\text{FWHM} = 1/\pi t_K$ verknüpft [143]. Dies ist jedoch nur gültig, falls die Linienverbreiterung durch einen Rauschprozess mit einer konstanten spektralen Intensität (weißes Rauschen) hervorgeht. Insbesondere bei Laserdioden müssen aber auch weitere Rauschprozesse berücksichtigt werden, weshalb die Definition der Kohärenzzeit in der Literatur nicht immer konsistent ist. In dieser Arbeit wird die Kohärenzzeit der besseren Vergleichbarkeit wegen als die inverse Halbwertsbreite des Laserspektrums definiert.

Der erste Teil dieses Kapitels erläutert die Grundlagen der Linienbreitenbestimmung von Laserdioden, insbesondere durch die Methode der DSH-Messung. Dabei wird ein von Herrn Thorsten Führer [68] entwickeltes C-Programm zur Berechnung der DSH-Spektren nach Mercer [144] verwendet und die Simulation auf die Berechnung des Laserspektrums erweitert. Anschließend werden die Ergebnisse der Linienbreitenmessungen für die verwendeten Lasersysteme vorgestellt. Hierbei ist besonders der Vergleich der Breiten des Fundamentallasers mit seiner frequenzverdoppelten Strahlung interessant.

5.1 Grundlagen zur Linienbreitenmessung

In den folgenden Abschnitten werden die Grundlagen der Linienbreitenmessung vorgestellt. Hierbei wird zuerst das Emissionsspektrum von Laserdioden theoretisch beschrieben. Anschließend wird das selbst-heterodyne Messverfahren zur Bestimmung der Linienbreite vorgestellt und insbesondere der Einfluss der Verzögerungsstrecke auf das Messergebnis diskutiert. Abschließend wird erläutert wie aus den Messergebnissen, in Abhängigkeit der Verzögerungsstrecke, die Linienbreite des Lasers bestimmt werden kann.

5.1.1 Das Spektrum von Laserdioden

Das optische Feld eines Lasers, im Einmodenbetrieb und weit über der Laserschwelle, kann als elektrisches Feld modelliert werden:

$$E_L(t) = E_0 \cdot \exp[i(\omega_0 t + \phi(t))] \quad (5.1)$$

mit der Feldamplitude E_0 , der Laserfrequenz ω_0 und dem Phasenrauschen $\phi(t)$, das als stochastischer Prozess angenommen wird [143, 145]. Die Linienbreite des Lasers ist durch die Halbwertsbreite des Laserspektrums $S_L(\omega)$ im Frequenzraum definiert. Dieses ist durch das Wiener-Chintschin-Theorem über eine Fouriertransformation mit der Autokorrelationsfunktion $G_E^{(1)}(\tau)$ des elektrischen Feldes verbunden [144]

$$S_L(\omega) = \mathcal{F} \left(G_E^{(1)}(\tau) \right) = \mathcal{F} \left(\langle E_L^*(t) E_L(t + \tau) \rangle \right). \quad (5.2)$$

Die Klammern $\langle \dots \rangle$ stellen hierbei eine zeitliche Mittelung dar. Da insbesondere bei Laserdioden das Intensitätsrauschen gegenüber dem Phasenrauschen vernachlässigt werden kann, wird von einer zeitlich konstanten Feldamplitude E_0 ausgegangen [146]. Bei einer festen Laserfrequenz ist somit das Phasenrauschen $\phi(t)$ für die Verbreiterung des Laserspektrums $S_L(\omega)$ verantwortlich. Für die Autokorrelationsfunktion des Laserfeldes ergibt sich hierdurch mit Gleichung (5.1)

$$\langle E_L^*(t) E_L(t + \tau) \rangle = \langle \exp[i\Delta\phi(t, \tau)] \rangle \cdot \exp[i\omega_0 \tau] \quad (5.3)$$

mit der Phasenfluktuation $\Delta\phi(t, \tau) = \phi(t + \tau) - \phi(t)$. Unter der Annahme, dass die Phasenfluktuation einem stationären gaußschen Prozess mit einer mittleren Abweichung von Null unterliegt, lässt sich die Identität

$$\langle \exp[i\Delta\phi(t, \tau)] \rangle = \exp \left[-\frac{1}{2} \langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle \right] \quad (5.4)$$

verwenden [144, 145].

Die mittlere quadratische Abweichung der Phase $\langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle$ ist wiederum mit dem Spektrum des Frequenzrauschens $S_{\dot{\phi}}$ verbunden [144]

$$\langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle = \frac{2}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \sin^2\left(\frac{\omega\tau}{2}\right) S_{\dot{\phi}}(\omega) \frac{d\omega}{\omega^2}. \quad (5.5)$$

Für Laserdioden setzt sich $S_{\dot{\phi}}(\omega)$ vor allem aus weißem und rosa ($1/f$) Rauschen zusammen [143, 144, 146]

$$S_{\dot{\phi}}(\omega) = \underbrace{s_0}_{\text{weißes Rauschen}} + \underbrace{\frac{k}{|\omega|}}_{1/f\text{Rauschen}}. \quad (5.6)$$

Der Ursprung des weißen Rauschens liegt in der spontanen Emission im Lasermedium [147]. Es besitzt eine konstante und frequenzunabhängige spektrale Intensität. Die daraus resultierende Linienbreitenlimitierung wurde bereits 1958 von Schawlow und Townes berechnet und ist als Shawlow-Townes-Limit bekannt [148]. Dieses besagt auch, dass die Linienbreite invers mit der optischen Ausgangsleistung des Lasers skaliert.

Das $1/f$ -Rauschen wird auch als technisches Rauschen bezeichnet und entspringt den intrinsischen Eigenschaften der elektronischen Komponenten, wie z. B. dem Rauschen der Stromsteuerung, aber auch thermischen Einflüssen [146, 149, 150]. Die spektrale Intensität ist invers proportional zur Frequenz. Dies hat zur Folge, dass die Linienbreite des Lasers von der Beobachtungsdauer abhängig ist, was in späteren Berechnungen verdeutlicht wird.

Zunächst soll aber ein Laser mit reinem weißem Rauschen ($S_{\dot{\phi}}(\omega) = s_0$) betrachtet werden, da in diesem vereinfachten Fall eine analytische Lösung für das Laserspektrum $S_L(\omega)$ möglich ist. Für reines weißes Rauschen nimmt das Integral für die mittlere quadratische Abweichung der Phase, Gleichung (5.5), die Form

$$\begin{aligned} \langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle_{\text{weiß}} &= s_0 \cdot \frac{2}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \sin^2\left(\frac{\omega\tau}{2}\right) \frac{d\omega}{\omega^2} \\ &= s_0 \cdot |\tau| \end{aligned} \quad (5.7)$$

an. Somit ergibt sich für das Laserspektrum nach Gleichung (5.2) mit

$$\begin{aligned} S_{L,\text{weiß}}(\omega) &= \mathcal{F}\left(\exp\left[-\frac{1}{2} \cdot s_0 \cdot |\tau|\right] \cdot \exp[i\omega_0\tau]\right) \\ &= \frac{4 \cdot s_0}{s_0^2 + 4 \cdot (\omega - \omega_0)^2} \end{aligned} \quad (5.8)$$

ein Lorentz-förmiger Verlauf. Dieses Spektrum besitzt die Halbwertsbreite (*full width at half maximum*, kurz FWHM) s_0 mit der Einheit $1/s$ bzw. umgerechnet in Hertz

$$\text{FWHM}_{\text{weiß}} = \frac{s_0}{2\pi} \quad (5.9)$$

und ist zentriert um die optische Kreisfrequenz des Laserlichts ω_0 .

Für reines $1/f$ -Rauschen ($S_{\dot{\phi}}(\omega) = k/|\omega|$) muss ebenso wie für reines weißes Rauschen, zuerst die mittlere quadratische Abweichung der Phase bestimmt werden. Für diese ergibt sich demnach

$$\begin{aligned} \langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle_{1/f} &= k \cdot \frac{2}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \sin^2\left(\frac{\omega\tau}{2}\right) \frac{d\omega}{|\omega^3|} \\ &= k \cdot \frac{4}{\pi} \int_0^{\infty} \sin^2\left(\frac{\omega\tau}{2}\right) \frac{d\omega}{|\omega^3|} \end{aligned} \quad (5.10)$$

wobei im zweiten Schritt die Symmetrie des Frequenzrauschens $S_{\dot{\phi}}(\omega) = S_{\dot{\phi}}(-\omega)$ ausgenutzt wurde [143]. Dieses Integral ist aufgrund des $1/f$ -Charakters und der Grenzen des Integrals von 0 bis ∞ divergent und führt hierdurch zu einem unendlich breiten Laserspektrum $S_L(\omega)$.

Macht man sich bewusst, dass die untere Integrationsgrenze bei einer Bestimmung der Linienbreite mit der zur Verfügung stehenden Bandbreite ω_{BW} der Messung korrespondiert, kann die Integrationsgrenze entsprechend angepasst werden [143]:

$$\langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle_{1/f} = k \cdot \frac{4}{\pi} \int_{\omega_{\text{BW}}}^{\infty} \sin^2\left(\frac{\omega\tau}{2}\right) \frac{d\omega}{|\omega^3|}. \quad (5.11)$$

Das Laserspektrum lässt sich wieder nach Gleichung (5.2) zu

$$S_{L,1/f}(\omega) = \mathcal{F} \left(\exp \left[-\frac{1}{2} \cdot \langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle_{1/f} \right] \cdot \exp [i\omega_0\tau] \right) \quad (5.12)$$

berechnen. Für die Fouriertransformation existiert im Falle des $1/f$ -Rauschens keine analytische Lösung. Die Berechnung der Spektren erfolgt deshalb numerisch, ebenso wie in [68]. Hierfür wurde ein Teil des Quelltextes angepasst, diese Änderung ist in Anhang E beschrieben.

Ein wichtiger Faktor bei der Berechnung des Laserspektrums ist die Wahl der Bandbreite ω_{BW} in Gleichung (5.11). Diese beeinflusst zwar nicht den qualitativen Verlauf des $1/f$ -Spektrums, aber dessen Halbwertsbreite $\text{FWHM}_{1/f}$. Deshalb ist es an dieser Stelle sinnvoll, auf die Bestimmung des Laserspektrums mittels der DSH-Methode aus Abschnitt 5.1.2 vorzugreifen, da zwischen Laserspektrum und DSH-Spektrum ein direkter Zusammenhang besteht. Beide Spektren lassen sich in ihrem Zentrum durch eine Gauß-Funktion approximieren, wie es auch in Abb. 5.1 beispielhaft für das Laserspektrum zu sehen ist. Durch diese Approximation

ist die Halbwertsbreite des DSH-Spektrums nach Gleichung (5.28) durch einen Faktor $\sqrt{2}$ mit der Halbwertsbreite des Laserspektrums gekoppelt.

Um das der DSH-Messung zugrunde liegende Laserspektrum berechnen zu können, muss die Bandbreite der Messung ω_{BW} bekannt sein. Diese ist im Falle der DSH-Methode direkt mit der Verzögerungszeit τ_0 verbunden, die auch als Messdauer angesehen werden kann und wie ein Hochpassfilter wirkt, da nur Frequenzfluktuationen innerhalb dieser Zeitspanne detektiert werden können. Ein einfacher und intuitiver Zusammenhang zwischen Bandbreite und Verzögerungszeit ergibt sich zu

$$\omega_{\text{BW}} = \frac{2\pi}{a \cdot \tau_0}, \quad (5.13)$$

mit einem Skalierungsfaktor a . Dieser muss entsprechend bestimmt werden, damit das Verhältnis der Halbwertsbreiten von DSH-Spektrum und Laserspektrum bei gleicher Verzögerungszeit (Messdauer) τ_0 dem Faktor $\sqrt{2}$ entspricht und somit eine Konsistenz der theoretischen Beschreibung beider Spektren gewahrt bleibt. Es wurde empirisch ermittelt, dass der Skalierungsfaktor a gleich dem Konvertierungsfaktor $(2\pi)^2/2$ aus [144] gesetzt werden muss, wodurch sich für die Bandbreite $\omega_{\text{BW}} = 1/\pi\tau_0$ ergibt. Für das Integral der mittleren quadratischen Abweichung der Phase nach Gleichung (5.11) ergibt sich nun

$$\langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle_{1/f} = \frac{1}{\pi} k \cdot \left[(\pi\tau_0)^2 + \pi\tau_0\tau \cdot \sin\left(\frac{\tau}{\pi\tau_0}\right) - (\pi\tau_0)^2 \cdot \cos\left(\frac{\tau}{\pi\tau_0}\right) - \tau^2 \cdot \text{Ci}\left(\frac{\tau}{\pi\tau_0}\right) \right] \quad (5.14)$$

mit dem Integralkosinus⁴⁷ $\text{Ci}(x)$. Dies entspricht auch der im Quelltext in Anhang E eingefügten Gleichung für $\langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle_{1/f}$.

In Abbildung 5.1 sind normierte Laserspektren für reines weißes Rauschen mit $s_0 = 0,81/\text{s}$ und $1/f$ -Rauschen mit $k = 0,1 \cdot 10^{12} (\text{rad/s})^3/\text{Hz}$ für eine Messdauer $\tau_0 = 20 \mu\text{s}$ abgebildet. Die Werte wurden so gewählt, dass beide Spektren ca. die gleiche Halbwertsbreite von ungefähr 127 kHz aufweisen. Weiterhin wurde an den zentralen Teil des $1/f$ -Spektrums eine Gauß-Funktion angepasst. Es ist deutlich zu sehen, wie sich das $1/f$ -Spektrum von dem Lorentz-förmigen Verlauf des weißen Rauschens und der gaußschen Anpassung unterscheidet.

Es ist wichtig zu beachten, dass durch die Beschränkung der unteren Grenze in Gleichung (5.11) die Halbwertsbreite des Laserspektrums für $1/f$ -Rauschen von der Messdauer τ_0 abhängig ist. Anschaulich ist dies in Abbildung 5.2 für ein festes $k = 0,1 \cdot 10^{12} (\text{rad/s})^3/\text{Hz}$ zu sehen. Mit größerer Messdauer τ_0 steigt auch die Halbwertsbreite des Laserspektrums.

⁴⁷Der Integralkosinus ist definiert als $\text{Ci}(x) = -\int_x^\infty \frac{\cos(t)}{t} dt$.

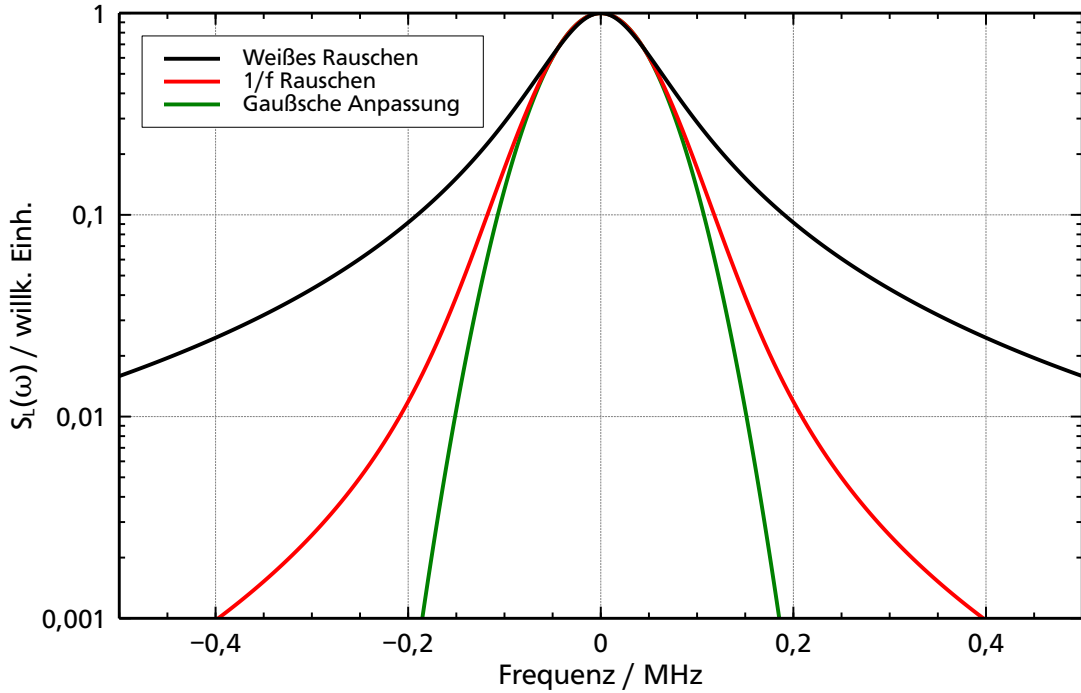


Abbildung 5.1: Normierte Laserspektren für reines weißes Rauschen mit $s_0 = 0,8 \text{ 1/s}$ und $1/f$ -Rauschen mit $k = 0,1 \cdot 10^{12} \text{ (rad/s)}^3/\text{Hz}$ für eine Messdauer $\tau_0 = 20 \mu\text{s}$. An das $1/f$ -Spektrum wurde zusätzlich eine Gauß-Funktion mit gleicher Halbwertsbreite angepasst.

Sind sowohl weißes als auch $1/f$ -Rauschen im Spektrum vertreten, wie es bei einer realen Laserdiode der Fall ist, so ist es sinnvoll die mittlere quadratische Abweichung der Phase $\langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle$ als eine Summe aus weißem und $1/f$ -Rauschen darzustellen:

$$\langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle = \langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle_{\text{weiß}} + \langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle_{1/f}. \quad (5.15)$$

Dementsprechend setzt sich auch die Autokorrelationsfunktion aus den zwei Komponenten zusammen, so dass sich für das Laserspektrum

$$S_L(\omega) = \mathcal{F} \left(G_{E,\text{weiß}}^{(1)}(\tau) \cdot G_{E,1/f}^{(1)}(\tau) \right) \quad (5.16)$$

ergibt. Nach dem Faltungstheorem⁴⁸ setzt sich das Laserspektrum somit aus einer Faltung des weißen und des $1/f$ -Laserspektrums zusammen. An dieser Stelle wird die Abweichung des $1/f$ -Spektrums von einem gaußschen Verlauf besonders relevant. Das Spektrum von Laserdioden wird im Allgemeinen als Voigt-Profil, also einer Faltung aus Lorentz- und Gauß-förmigem

⁴⁸Das Faltungstheorem besagt unter anderem, dass eine Faltung im Frequenzraum einer Multiplikation in der Zeitdomäne entspricht: $\mathcal{F}(H_1(\tau)) * \mathcal{F}(H_2(\tau)) = \mathcal{F}(H_1(\tau) \cdot H_2(\tau))$

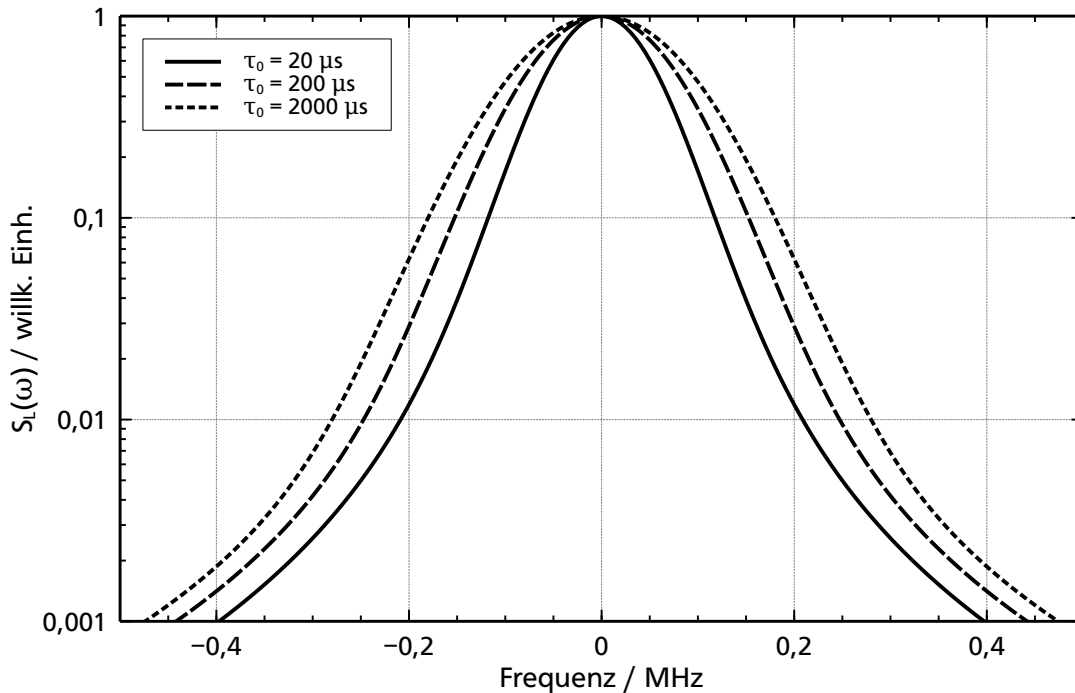


Abbildung 5.2: Laserspektren für reines $1/f$ -Rauschen mit $k = 0,1 \cdot 10^{12} \text{ (rad/s)}^3/\text{Hz}$ für drei verschiedene Messdauern τ_0 .

Spektrum, angenommen [143, 144, 146, 151, 152]. Diese Approximation ist jedoch nur hinreichend genau, wenn das weiße Rauschen dominiert. Sobald das $1/f$ -Rauschen überwiegt, gewinnen dessen Flanken an Bedeutung und überlagern den Lorentz-Anteil so stark, dass die Anpassung eines Voigt-Profiles nicht mehr funktioniert. Dies ist insbesondere bei Laserdioden mit externer Rückkopplung relevant, da bei diesen, wie auch die Messungen in Abschnitt 5.2 zeigen, das $1/f$ -Rauschen bei typischen DSH-Verzögerungstrecken dominiert. Eine genauere Quantifizierung des Verhältnisses und die Auswirkung auf eine Voigt-Anpassung ist in Abschnitt 5.1.3 zu finden.

Die Auswirkungen des $1/f$ -Verlaufs auf die Linienbreitenbestimmung mittels der selbst-heterodynen Methode werden im nächsten Abschnitt ersichtlich.

5.1.2 Selbst-heterodynes Messverfahren

Das im vorhergehenden Abschnitt beschriebene Laserspektrum ist aufgrund der optischen Trägerfrequenz ω_0 experimentell nicht direkt zugänglich. Allerdings kann für die Bestimmung der Linienbreite das Phasenrauschen durch heterodyne Messmethoden in ein Intensitätsrauschen überführt werden [145, 153], welches durch eine Zentralfrequenz im rf-Bereich experimentell zugänglich ist.

In der vorliegenden Arbeit wurde die Linienbreite mit der verzögerten selbst-heterodynen

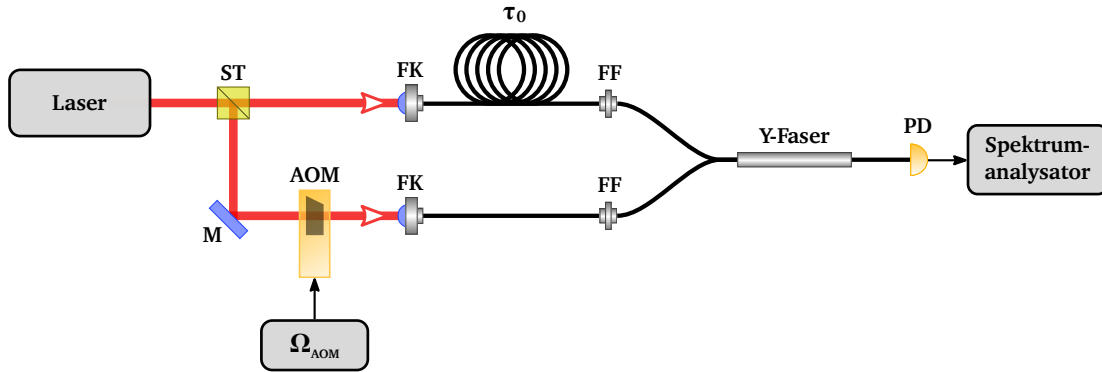


Abbildung 5.3: Schematischer Aufbau für eine verzögerte selbst-heterodyne Messung. Die Überlagerung der beiden Teilstrahlen erfolgt in einer Y-Faser. ST: 50:50-Strahlteiler, M: Spiegel, FK: Faserkoppler, FF: Faser-auf-Faser Koppelung, PD: schnelle Photodiode, τ_0 : optische Verzögerungsstrecke

Messmethode bestimmt. Dieses Verfahren wurde bereits 1980 von Okoshi *et al.* [142] eingeführt und hat sich als eine Standardmessmethode etabliert, die eine hohe Auflösung bietet und für viele Wellenlängenbereiche einsetzbar ist. Die größte Beschränkung liegt in der Verfügbarkeit einer entsprechenden Verzögerungsstrecke, angepasst an die Wellenlänge des zu untersuchenden Lasers.

Der schematische Aufbau der DSH-Methode ist in Abbildung 5.3 dargestellt. Das zu untersuchende Licht wird in zwei Zweige aufgeteilt. Ein Teil wird durch einen AOM um einen festen Wert Ω_{AOM} in der Frequenz verschoben. Der andere Teil erfährt eine zeitliche Verzögerung τ_0 , die durch eine Faser als Verzögerungsstrecke realisiert wird. Beide Teilstrahlen werden anschließend durch eine Y-Faser überlagert und mit einer schnellen Photodiode detektiert. Das Spektrum des Photodiodenstroms wird mit einem elektrischen Spektrumanalysator (ESA) gemessen. Daher ist auch die Frequenzverschiebung durch den AOM notwendig, da normale Spektrumanalysatoren nicht im DC-Bereich messen können. Folglich wird auch die Überlagerung mit dem Gleichstromanteil der Photodiode umgangen.

Eine theoretische Betrachtung des so gewonnenen DSH-Spektrums zeigt, wie von diesem auf das Laserspektrum zurück geschlossen werden kann. Ausgangspunkt ist das elektrische Feld $E(t)_{\text{DSH}}$, welches von der Photodiode detektiert wird. Dieses besteht aus einer frequenzverschobenen und einer zeitlich verzögerten Version des ursprünglichen Laserfeldes $E_L(t)$ (vergleiche Gleichung (5.1))

$$E_{\text{DSH}}(t) = E_L(t) \cdot \exp(i\Omega_{\text{AOM}}t) + \alpha E_L(t + \tau_0) \quad (5.17)$$

mit der Trägerfrequenz des akusto-optischen Modulators Ω_{AOM} , der Verzögerungszeit τ_0 und dem Amplitudenverhältnis der beiden Zweige α [144]. Dieses elektrische Feld wird von einer Photodiode detektiert und erzeugt in dieser einen Stromfluss $I_{\text{PD}}(t)$. Die Autokorrelationsfunktion $R_{I_{\text{PD}}}(\tau)$ dieses Photodiodenstroms lässt sich durch die Intensitäts-

autokorrelationsfunktion $G_{E,DSH}^{(2)}(\tau)$ des detektierten elektrischen Feldes ausdrücken [144, 145]

$$R_{IPD}(\tau) = e \cdot \eta \cdot G_{E,DSH}^{(2)}(0) \cdot \delta(t) + \eta^2 \cdot G_{E,DSH}^{(2)}(\tau), \quad (5.18)$$

mit der elektrischen Ladung e , der Detektionseffizienz η und der Deltafunktion $\delta(t)$. Der erste Term in Gleichung (5.18) wird dem sogenannten Schrotrauschen zugeordnet und entspricht dem Gleichstromanteil der Photodiode. Er spielt für die weitere Betrachtung keine Rolle. Entscheidend ist der zweite Term mit $G_{E,DSH}^{(2)}(\tau)$, welcher die Umwandlung des Phasenrauschens in ein Intensitätsrauschen enthält. Für die Intensitätsautokorrelationsfunktion ergibt sich mit dem elektrischen Feld aus Gleichung (5.17) und der Identität aus Gleichung (5.4)

$$G_{E,DSH}^{(2)}(\tau) = \langle E_{DSH}(t)E_{DSH}^*(t)E_{DSH}(t+\tau)E_{DSH}^*(t+\tau) \rangle \quad (5.19)$$

$$= E_0^4 \left[(1 + \alpha^2)^2 + 2\alpha^2 \cos(\Omega_{AOM}\tau) \cdot \exp[\Delta\phi_{\text{Summe}}] \right], \quad (5.20)$$

mit

$$\Delta\phi_{\text{Summe}} = \frac{1}{2} \langle \Delta\phi^2(\tau - \tau_0) \rangle + \frac{1}{2} \langle \Delta\phi^2(\tau + \tau_0) \rangle - \langle \Delta\phi^2(\tau_0) \rangle - \langle \Delta\phi^2(\tau) \rangle \quad (5.21)$$

Hierbei wurde berücksichtigt, dass alle Terme mit einer expliziten Zeitabhängigkeit im zeitlichen Mittel verschwinden [145]. Die mittlere quadratische Abweichung der Phase kann analog wie in Gleichung (5.5) durch das Spektrum des Frequenzrauschens $S_{\dot{\phi}}(\omega)$, Gleichung (5.6), ausgedrückt werden. Somit ergibt sich für die Summe der mittleren quadratischen Abweichung der Phase

$$\Delta\phi_{\text{Summe}} = -\frac{8}{\pi} \int_0^\infty \sin^2\left(\frac{\omega\tau}{2}\right) \sin^2\left(\frac{\omega\tau_0}{2}\right) S_{\dot{\phi}}(\omega) \frac{d\omega}{\omega^2}. \quad (5.22)$$

Wobei auch hier die untere Grenze des Integrals auf Grund der Symmetrie von $S_{\dot{\phi}}(\omega)$ auf Null gesetzt werden kann. Dieses Integral entspricht im wesentlichen Gleichung (5.5), allerdings ist im Falle der DSH-Messung die Messdauer τ_0 in einem zweiten Sinus-Term vertreten. Setzt sich $S_{\dot{\phi}}(\omega)$ aus weißem und $1/f$ -Rauschen zusammen, lässt sich das Integral wieder in eine Summe aus diesen beiden Rauschanteilen zerlegen, so dass sich die Autokorrelationsfunktion zu

$$G_{E,DSH}^{(2)}(\tau) = E_0^4 \left[(1 + \alpha^2)^2 + 2\alpha^2 \cos(\Omega_{AOM}\tau) \cdot \Gamma_{\text{weiß}} \cdot \Gamma_{1/f} \right] \quad (5.23)$$

umschreiben lässt. $\Gamma_{\text{weiß}}$ und $\Gamma_{1/f}$ können als Autokorrelationsfunktionen für reines weißes und $1/f$ -Rauschen angesehen werden, deren Auswertung z. B. in [68, 144] zu finden ist.

Das gemessene DSH-Spektrum $S_{\text{DSH}}(\omega)$ ist über das Wiener-Chintschin-Theorem durch eine Fouriertransformation mit der Autokorrelationsfunktion verbunden

$$S_{\text{DSH}}(\omega) = \mathcal{F} \left(G_{E,\text{DSH}}^{(2)}(\tau) \right) \quad (5.24)$$

und entspricht, wie schon das Laserspektrum, einer Faltung der DSH-Spektren für reines weißes und $1/f$ -Rauschen. Das DSH-Spektrum soll für ein besseres Verständnis im Folgenden wieder getrennt für die einzelnen Rauschanteile betrachtet werden.

Für reines weißes Rauschen ($S_{\phi}(\omega) = s_0$) und große τ_0 ergibt sich wieder ein Lorentzförmiger Verlauf wie in Abbildung 5.4 für $s_0 = 0,8 \text{ 1/s}$, $\tau_0 = 40 \mu\text{s}$ sowie $\Omega_{\text{AOM}} = 80 \text{ MHz}$ zu sehen ist. Wird τ_0 weiter vergrößert, bleibt das Spektrum konstant. Durch die Überlagerung des ursprünglichen Laserfeldes mit seiner zeitlich verzögerten Variante kann dies als Faltung der beiden Felder interpretiert werden. Ist die Verzögerungszeit sehr viel größer als die Kohärenzzeit t_K des Lasers, sind beide Felder unkorreliert und das DSH-Spektrum besitzt die doppelte Halbwertsbreite des Laserspektrums. Somit lässt sich die DSH-Breite mit der Gleichung

$$\text{FWHM}_{\text{DSH,weiß}} = \frac{s_0}{\pi} \quad (5.25)$$

berechnen.

Nimmt die Verzögerungszeit Werte im Bereich der Kohärenzzeit an, so wird die Leistung im DSH-Spektrum in einen Delta-Peak verschoben, wie in Abb. 5.4 für Verzögerungszeiten von $1 \mu\text{s}$ und $0,5 \mu\text{s}$ dargestellt. Die Basis beginnt sich zu verbreitern und die Flanken weisen eine Modulation auf, deren Periode zu kürzeren Verzögerungszeiten hin zunimmt. Somit ist es nicht mehr möglich die Linienbreite des Lasers direkt aus dem DSH-Spektrum abzulesen.

Das DSH-Spektrum im Falle von reinem $1/f$ -Rauschen und Verzögerungszeiten $\tau_0 \gg t_K$ ist in Abbildung 5.5 für $k = 0,1 \cdot 10^{12} (\text{rad/s})^3/\text{Hz}$, $\tau_0 = 20 \mu\text{s}$ und $\Omega_{\text{AOM}} = 80 \text{ MHz}$ dargestellt. Es ähnelt dem Laserspektrum für reines $1/f$ -Rauschen und wie bei diesem kann der zentrale Teil des DSH-Spektrums durch eine Gauß-Funktion approximiert werden, wenn

$$\frac{k \cdot \tau_0^2}{\pi} \gg 1 \quad (5.26)$$

erfüllt ist. Diese Bedingung wurde von Mercer [144] aufgestellt und wird im Folgenden als Mercer-Kriterium bezeichnet. Durch eine gaußsche Approximation der Autokorrelationsfunktion $\Gamma_{1/f}$, aus der sich wiederum ein gaußförmiges DSH-Spektrum ergibt, ist es nun möglich dessen Halbwertsbreite mit den Werten von τ_0 und k aus $S_{\phi}(\omega)$ zu verknüpfen [144]:

$$\text{FWHM}_{\text{DSH},1/f} = \frac{1}{\pi} \sqrt{\frac{2k \ln(2)}{\pi} \left(4,3 + \ln \left(\frac{4,3k \tau_0^{2,1}}{\pi} \right) \right)}. \quad (5.27)$$

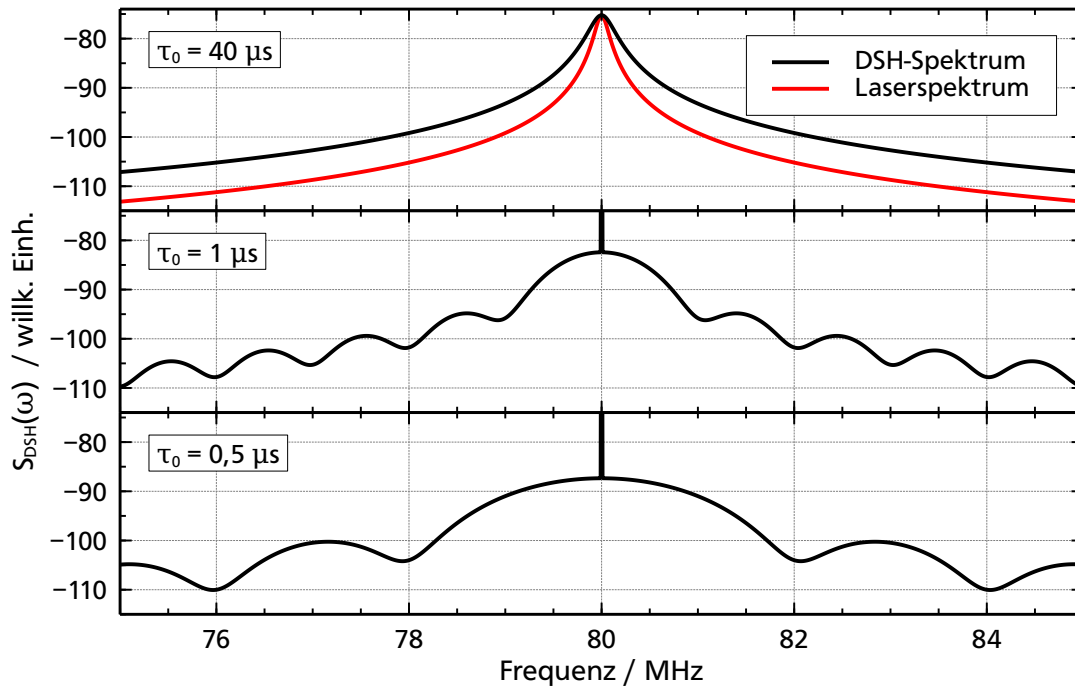


Abbildung 5.4: DSH-Spektren für reines weißes Rauschen mit $s_0 = 0,81/s$, $\Omega_{\text{AOM}} = 80 \text{ MHz}$ und drei verschiedenen Verzögerungszeiten τ_0 . Zum Vergleich ist das Laserspektrum, ebenfalls mit $s_0 = 0,81/s$, eingezeichnet, welches die halbe Halbwertsbreite aufweist.

Wird das DSH-Spektrum wieder als Faltung des Laserspektrums mit sich selbst interpretiert, so ergibt sich durch die gaußsche Näherung für die Halbwertsbreiten von DSH- und Laserspektrum der Zusammenhang

$$\text{FWHM}_{1/f} = \text{FWHM}_{\text{DSH},1/f} \cdot \frac{1}{\sqrt{2}}, \quad (5.28)$$

wie bereits in Abschnitt 5.1.1 angedeutet. Die Verzögerungsstrecke und die damit verbundene Verzögerungszeit τ_0 im DSH-Aufbau können aus der Perspektive des Laserspektrums als Mess- bzw. Beobachtungsdauer interpretiert werden und wirken wie ein Hochpassfilter für das $1/f$ -Rauschen. Der Wert des Mercer-Kriteriums für $\tau_0 = 20 \mu\text{s}$ in Abb. 5.5 beträgt 12,7 und würde somit eine gaußsche Approximation im Zentrum erlauben.

Nähert sich die Verzögerungszeit der Kohärenzzeit des Lasers an, wie in Abb. 5.5 für $\tau_0 = 7 \mu\text{s}$, entsteht nicht direkt ein Delta-Peak wie im Falle des weißen Rauschens. Der zentrale Teil des Spektrums beginnt sich zu verengen und die Flanken weisen eine Modulation auf. Das Mercer-Kriterium liegt mit einem Wert von 1,56 in einem Bereich der keine gaußsche Approximation des DSH-Spektrums mehr erlaubt. Wird die Verzögerungszeit weiter verringert

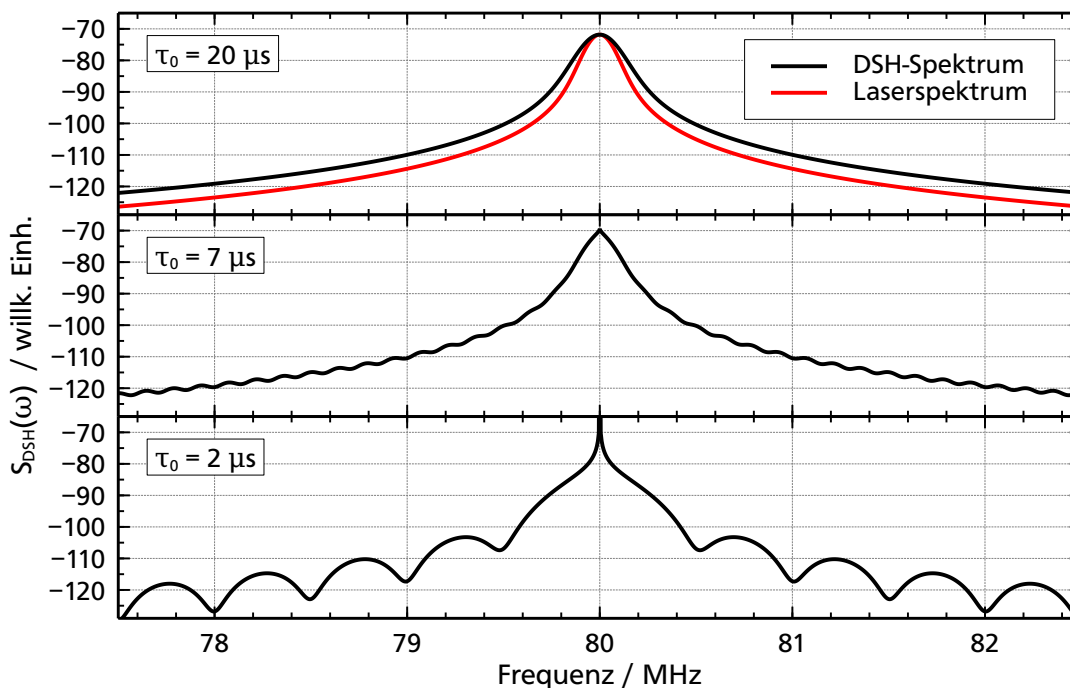


Abbildung 5.5: DSH-Spektren für reines $1/f$ -Rauschen mit $k = 0,1 \cdot 10^{12} (\text{rad/s})^3/\text{Hz}$, $\Omega_{\text{AOM}} = 80 \text{ MHz}$ und drei verschiedenen Verzögerungszeiten τ_0 . Zum Vergleich ist das Laserspektrum, ebenfalls mit $k = 0,1 \cdot 10^{12} (\text{rad/s})^3/\text{Hz}$ und $\tau_0 = 20 \mu\text{s}$, eingezeichnet. Dieses besitzt eine um den Faktor $\sqrt{2}$ geringere Halbwertsbreite. Die Werte des Mercer-Kriteriums der jeweiligen Spektren sind 12,7 für $\tau_0 = 20 \mu\text{s}$, 1,56 für $\tau_0 = 7 \mu\text{s}$ und 0,13 für $\tau_0 = 2 \mu\text{s}$.

($\tau_0 = 2 \mu\text{s}$ in Abb. 5.5) bildet sich ein Delta-Peak aus, die Amplitude der Modulation an den Flanken wird ausgeprägter und deren Periode größer. In beiden Fällen kann die Linienbreite des Lasers nicht mehr aus der Halbwertsbreite des DSH-Spektrums bestimmt werden.

5.1.3 Bestimmung der Linienbreite

Anpassung eines Voigt-Profiles

Ist die Verzögerungszeit der DSH-Messung sehr viel größer als die Kohärenzzeit des Lasers, so dass beide Felder unkorreliert auf die schnelle Photodiode treffen, kann die Halbwertsbreite des DSH-Spektrums für die Linienbreitenbestimmung verwendet werden. Wie im vorhergehenden Kapitel gezeigt, ist es jedoch erforderlich die einzelnen Rauschanteile zu kennen. Für weißes Rauschen ist der Zusammenhang zwischen den Halbwertsbreiten von DSH-Spektrum zu Laserspektrum durch einen Faktor 2 gegeben, während für $1/f$ -Rauschen

Tabelle 5.1: Parameter der berechneten DSH-Spektren aus Abbildung 5.6 und Ergebnisse der Voigt-Anpassung. Die Verzögerungszeit τ_0 beträgt $50 \mu\text{s}$.

	oberes Spektrum	unteres Spektrum
s_0 in $1/s$	0,1	0,1
k in $(\text{rad/s})^3/\text{Hz}$	$0,5 \cdot 10^{10}$	$0,2 \cdot 10^{12}$
$\text{FWHM}_{\text{DSH,weiß}}$	31,8 kHz	31,8 kHz
$\text{FWHM}_{\text{DSH},1/f}$	37,1 kHz	297 kHz
$\text{FWHM}_{\text{Voigt,Lorentz}}$	32,4 kHz	42,6 kHz
$\text{FWHM}_{\text{Voigt,Gauß}}$	40,8 kHz	322 kHz

ein Faktor $\sqrt{2}$ angenommen werden kann. Eine Möglichkeit diese Anteile zu bestimmen, ist die Anpassung eines Voigt-Profiles⁴⁹ an das DSH-Spektrum [144]. Dabei korrespondiert die Halbwertsbreite des Lorentz-Anteils mit dem weißen Rauschen und der Gauß-Anteil mit dem $1/f$ -Rauschanteil. Aufgrund des speziellen Linienprofils durch das $1/f$ -Rauschen kann diese Methode nur eingesetzt werden, wenn der Anteil des $1/f$ -Rauschens im Verhältnis zum weißen Rauschen nicht zu groß ist. Als untere Grenze lässt sich ein Verhältnis von 3:1 von $1/f$ -Rauschen zu weißem Rauschen abschätzen, ab dem die Voigt-Anpassung zunehmend größere Abweichungen aufweist.

Anschaulich ist dies in Abbildung 5.6 illustriert. Beide DSH-Spektren sind für dieselbe Verzögerungszeit $\tau_0 = 50 \mu\text{s}$ berechnet und weisen den gleichen Anteil für weißes Rauschen auf. Im oberen Spektrum ist das Verhältnis der Rauschanteile fast ausgeglichen, im unteren Spektrum überwiegt das $1/f$ -Rauschen mit einem Verhältnis von 9:1 deutlich. In Tabelle 5.1 sind die Parameter der berechneten DSH-Spektren, sowie die Ergebnisse der jeweiligen Voigt-Anpassung aufgetragen.

Während die Anpassung für das obere Spektrum sehr gut gelingt und die sich daraus ergebenden Halbwertsbreiten des Voigt-Profiles gut mit den theoretischen Werten des berechneten DSH-Spektrums übereinstimmen, sind die Abweichungen für das untere Spektrum schon deutlich sichtbar. Hier wird der Anteil des weißen Rauschens, durch den Einfluss des $1/f$ -Spektrums in den Flanken, zu groß abgeschätzt. Die Anpassung des Voigt-Profiles zur Bestimmung der Linienbreite ist für diesen Fall nicht mehr hinreichend genau.

Anpassung des berechneten DSH-Spektrums

Da es möglich ist die DSH-Spektren numerisch zu berechnen, stellt deren direkte Anpassung an die DSH-Messungen eine universellere Methode zur Linienbreitenbestimmung dar. Wei-

⁴⁹Die Anpassung erfolgt durch ein in LabVIEW 2013 geschriebenes Programm. Dieses berechnet das Voigt-Profil mittels numerischer Faltung einer Lorentz- und Gauß-Funktion und passt dieses durch einen Levenberg-Marquardt Algorithmus an.

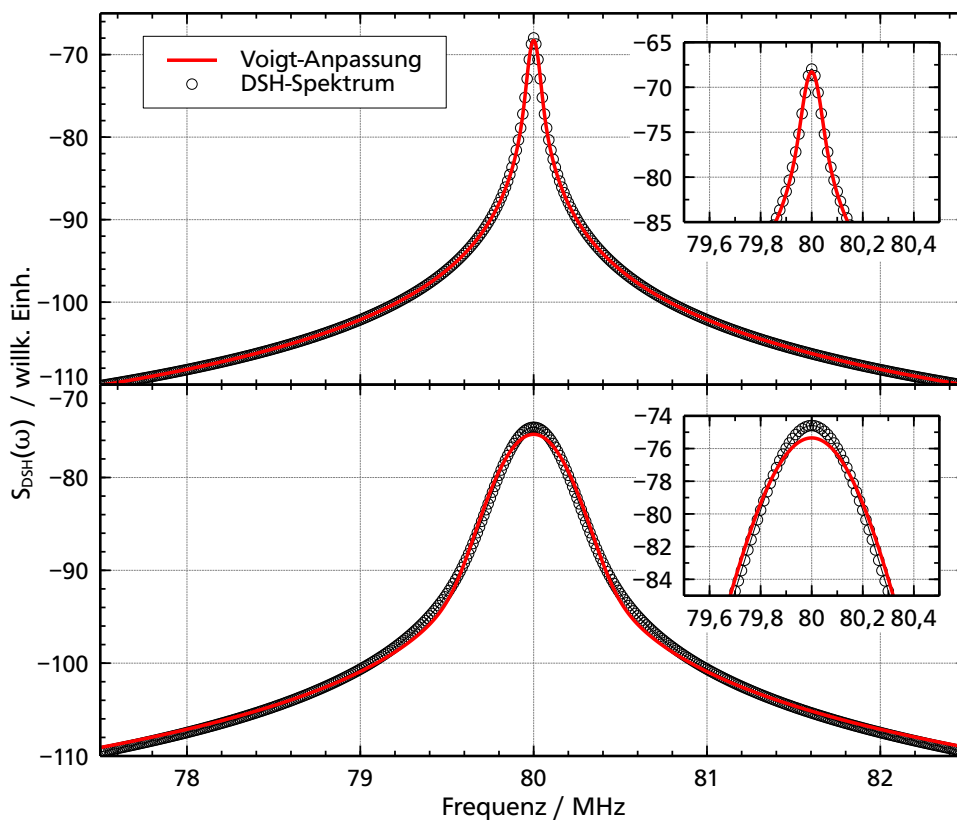


Abbildung 5.6: Berechnete DSH-Spektren und zugehörige Anpassungen eines Voigt-Profiles. Die entsprechenden Parameter sind Tabelle 5.1 zu entnehmen. Im oberen Spektrum liegen die Rauschanteile in der gleichen Größenordnung, während im unteren Spektrum das $1/f$ -Rauschen deutlich überwiegt. Die Vergrößerung zeigt für das untere Spektrum auch im zentralen Teil eine deutliche Abweichung der Voigt-Anpassung.

terhin lässt sich das Spektrum sogar für Verzögerungszeiten τ_0 unterhalb der Kohärenzzeit bestimmen, so dass der Einsatz kurzer Verzögerungsfasern möglich ist. Dies ist vor allem für Laser im unteren sichtbaren Wellenlängenbereich von Vorteil, da die Abschwächung des Lichtes im Kern optischer Fasern in diesem Bereich stark zunimmt.

Zum Anpassen der DSH-Spektren wird ein von Herrn Thorsten Führer [68] entwickeltes Programm verwendet und leicht modifiziert. Es wird entsprechend der theoretischen Beschreibung in Abschnitt 5.1.2 nur weißes und $1/f$ -Rauschen angenommen. Messungen an verschiedenen Lasersystemen während dieser Arbeit zeigten, dass die Anpassung der DSH-Spektren trotz der Beschränkung auf nur zwei Rauschanteile in den meisten Fällen hinreichend präzise Ergebnisse lieferten. Im Falle des 546,1 nm Lasersystems zeigen sich jedoch Abweichungen. Hier ist ein Ergänzen des Modells durch weitere Rauschanteile

wie $1/f^n$ -Rauschen höherer Ordnungen n oder diskreten Rauschfrequenzen, wie sie z. B. durch mechanische Resonanzen entstehen [154], notwendig. Weiterhin wurde die Auflösungsbeschränkung durch die RBW (*resolution bandwidth*), des zur Messung der Spektren verwendeten ESAs, berücksichtigt. Die RBW ergibt sich durch eine im ESA verwendete gaußförmige Filterfunktion [155]. Diese führt zu einer Verbreiterung des Delta-Peaks und schränkt dessen Amplitude ein. Um dies in die Berechnung zu integrieren wird das berechnete DSH-Spektrum mit einer Gauß-Funktion gefaltet, deren Halbwertsbreite der RBW entspricht.

Mittels der Anpassung des DSH-Spektrums können die Werte für die Parameter s_0 und k bestimmt werden. Aus diesen lassen sich wiederum die Halbwertsbreiten des Laserspektrums für die jeweilige Rauschkomponente berechnen. Da für weißes Rauschen ein analytischer Zusammenhang existiert, ist die Halbwertsbreite unabhängig von der Verzögerungszeit τ_0 und somit auch für kurze Verzögerungsstrecken durch Gleichung (5.9) gegeben.

Die Halbwertsbreite des Laserspektrums lässt sich für die $1/f$ -Komponente durch Gleichung (5.28) berechnen. Für diese muss jedoch das Mercer-Kriterium erfüllt sein, da das DSH-Spektrum für die Rauschkomponente durch Gleichung (5.27) angenähert wird. Ausschlaggebend für die Einführung des Mercer-Kriteriums ist die Verzerrung des DSH-Spektrums wenn sich τ_0 im Bereich von t_K oder darunter befindet. Das zugrundeliegende Laserspektrum sollte hiervon allerdings nicht betroffen sein. Zur Verifikation des Gültigkeitsbereiches von Gleichung (5.28) wurde die Halbwertsbreite von den nach Gleichung (5.12) berechneten Laserspektren für reines $1/f$ -Rauschen mit der Anpassung einer Gauß-Funktion an das Zentrum bestimmt und den Werten aus Gleichung (5.28) gegenübergestellt.

Das Ergebnis ist in Abbildung 5.7 für vier k -Werte dargestellt. Die roten Punkte geben die durch eine gaußsche Anpassung an die Laserspektren gewonnenen Halbwertsbreiten wieder, während die schwarzen Linien nach Gleichung (5.28) berechnet wurden. Das Mercer-Kriterium liegt für die kürzesten Verzögerungszeiten für alle k -Werte im Bereich von 4 und für die längsten Zeiten bei über $1 \cdot 10^6$. Die Berechnung von Laserspektren für kleinere Werte von τ_0 ist durch auftretende numerische Instabilitäten im verwendeten Programm nicht möglich. Je größer τ_0 und dementsprechend größeren Werten des Mercer-Kriteriums, desto besser ist die Übereinstimmung. Zu kleineren Verzögerungszeiten hin treten Abweichungen von bis zu 10% auf. Weiterhin gibt es durch den Logarithmus in Gleichung (5.27) eine minimale Verzögerungszeit, bei der die Halbwertsbreite gegen Null läuft. Dem Gegenüber steht der asymptotische Verlauf der spektralen Leistungsdichte von $1/f$ -Rauschen. Für sehr hohe Frequenzen (entsprechend kleine τ_0) geht die Leistungsdichte gegen Null. Dieser Verlauf lässt eine ähnliche Annäherung der Halbwertsbreite für kleine Werte von τ_0 gegen Null erwarten. Hier zeigt sich die Grenze des Modells für $1/f$ -Rauschen, das für sehr kleine Werte des Mercer-Kriteriums nicht mehr anwendbar ist. Als untere Grenze lässt sich für typische k -Werte kleiner $1 \cdot 10^{14} \text{ (rad/s)}^3/\text{Hz}$ in etwa ein Mercer-Kriterium von 0,02 festlegen, unterhalb dessen die Halbwertsbreite nach Gleichung (5.28) auf Null sinkt.

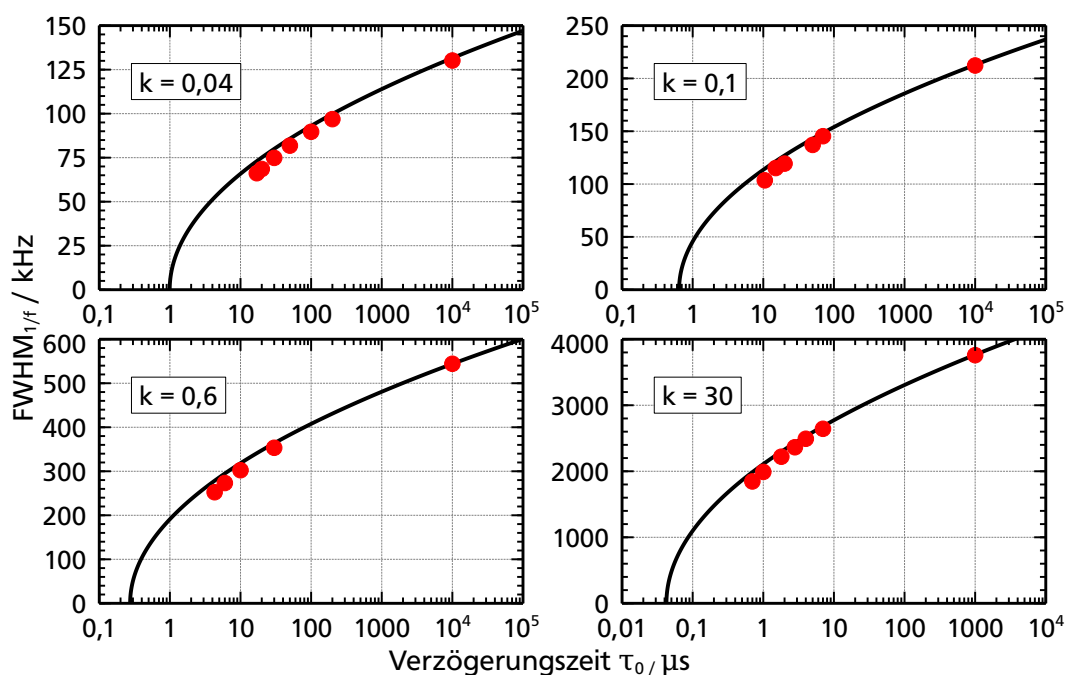


Abbildung 5.7: Rote Punkte repräsentieren durch eine gaußsche Anpassung an die für die jeweiligen k -Werte berechneten Laserspektren gewonnene Halbwertsbreiten. Die schwarzen Linien geben den Verlauf der nach Gleichung (5.28) berechneten Halbwertsbreite wieder. k -Werte sind in $10^{12} (\text{rad/s})^3/\text{Hz}$ angegeben.

5.2 Linienbreiten der verwendeten Lasersysteme

Die Linienbreiten der kohärenten Kopplungslaser wurden mit der im vorhergehenden Abschnitt vorgestellten DSH-Methode bestimmt. Hierfür standen drei verschieden lange optische Fasern für die Fundamentallaser zur Verfügung, die Verzögerungszeiten τ_0 von $1,71 \mu\text{s}$ ⁵⁰, $20 \mu\text{s}$ ⁵¹, $51 \mu\text{s}$ ⁵² und durch eine Kombination der beiden langen Fasern $71 \mu\text{s}$ ermöglichen. Bei der optischen Faser des Herstellers Alcatel-Lucent handelt es sich um eine Multi-Moden Faser. Vergleichsmessungen bei $871,6 \text{ nm}$ mit einer Einzel- und Multi-Moden Faser gleicher Länge zeigte allerdings keine Unterschiede zwischen den DSH-Spektren. Die Multimodigkeit der Faser sollte somit keinen Einfluss auf die Messung haben. Für den sichtbaren Wellenlängenbereich stand nur eine opt. Faser zur Verfügung welche um $2,06 \mu\text{s}$ ⁵³ verzögert.

⁵⁰871,6 nm: SM800-5.6-125, Thorlabs GmbH; 1092,2 nm: Multimode Fiber 62.5/125, Alcatel-Lucent

⁵¹Multimode Fiber 62.5/125, Alcatel-Lucent

⁵²Multimode Fiber 62.5/125, Alcatel-Lucent

⁵³S405-XP, Thorlabs GmbH

Der verwendete AOM⁵⁴ bietet für alle vermessenen Wellenlängen eine ausreichend starke Ablenkung der ersten Beugungsordnung. Aufgrund des großen Wellenlängenbereichs der untersuchten Lasersysteme wurden zwei unterschiedliche Photodioden⁵⁵ eingesetzt. Der für die Datenaufzeichnung verwendete elektrische Spektrumanalysator⁵⁶ (ESA) liefert 631 Messpunkte pro Spektrum.

Die DSH-Messungen der Frequenzverdoppelten und der vier Verzögerungszeiten des Fundamentallasers wurden in einer Messreihe in einem möglichst kurzen Zeitraum durchgeführt um die Vergleichbarkeit der Daten zu wahren.

5.2.1 435,8 nm Lasersystem

Durch die vier verfügbaren Verzögerungszeiten für die Fundamentallaser kann der Einfluss der ECDL- und Frequenzstabilisierungsverfahren genauer untersucht werden. Zu diesem Zweck wurden drei Messreihen mit unterschiedlichen Einstellungen der Stabilisierungen aufgenommen:

Messreihe 1: Optimierte Einstellungen für alle Stabilisierungen wie sie auch für die Messungen in Kapitel 6 verwendet wurden.

Messreihe 2: Frequenzstabilisierung ohne den schnellen P-Anteil über den Laserdiodenstrom (siehe Kapitel 3.3.3).

Messreihe 3: Nicht optimaler Stabilisierungspunkt der ECDL-Stabilisierung, sonst wie Messreihe 1.

Besonders interessant ist die Auswirkung der Frequenzstabilisierung, da es hier bei falscher Wahl der Stabilisierungsparameter zu einer Verbreiterung der Linienbreite kommen kann. In Abbildung 5.8 sind beispielhaft die DSH-Spektren aus Messreihe 1 für den Fundamentallaser bei 871,6 nm zu sehen. Das Spektrum für $\tau_0 = 1,71 \mu\text{s}$ besteht aus der Mittelung von 10 Einzelspektren, die mit einer RBW von 1 kHz aufgenommen wurden. Für die drei anderen Verzögerungszeiten wurden 100 Spektren gemittelt und die RBW betrug 3 kHz. Die in rot eingezeichnete Anpassung des Modells aus Abschnitt 5.2 gibt den Verlauf der mit dem Spektrumanalysator aufgenommen Daten für die vier Verzögerungszeiten sehr gut wieder. Die durch die Modellanpassung gewonnenen Laserlinienbreiten aller drei Messreihen sind für den Fundamentallaser in Abbildung 5.9 aufgetragen. Das weiße Rauschen bleibt wie erwartet für alle Verzögerungszeiten beinahe unverändert und liegt für die Messreihen 1 und 2 in einem Bereich von 5 bis 6 kHz. Durch die Wahl eines anderen, nicht optimalen, Stabilisierungspunktes der ECDL-Stabilisierung in Messreihe 3 ist das weiße Rauschen hier mit Werten um 20 kHz deutlich stärker und unterliegt größeren Schwankungen. Die ECDL-Stabilisierung legt die Güte der Überlappung der Moden von äußerem und innerem ECDL-Resonator fest. Dies wiederum hat direkten Einfluss auf die Linienbreite des ECDL [156]. Entsprechend

⁵⁴MT80-B30A1-IR, AA Opto Electronic

⁵⁵bis 871,6 nm: 1601FS-AC, Newport Corporation; 1092,2 nm: 1592NF, Newport Corporation

⁵⁶FSC6, Rohde & Schwarz USA, Inc.

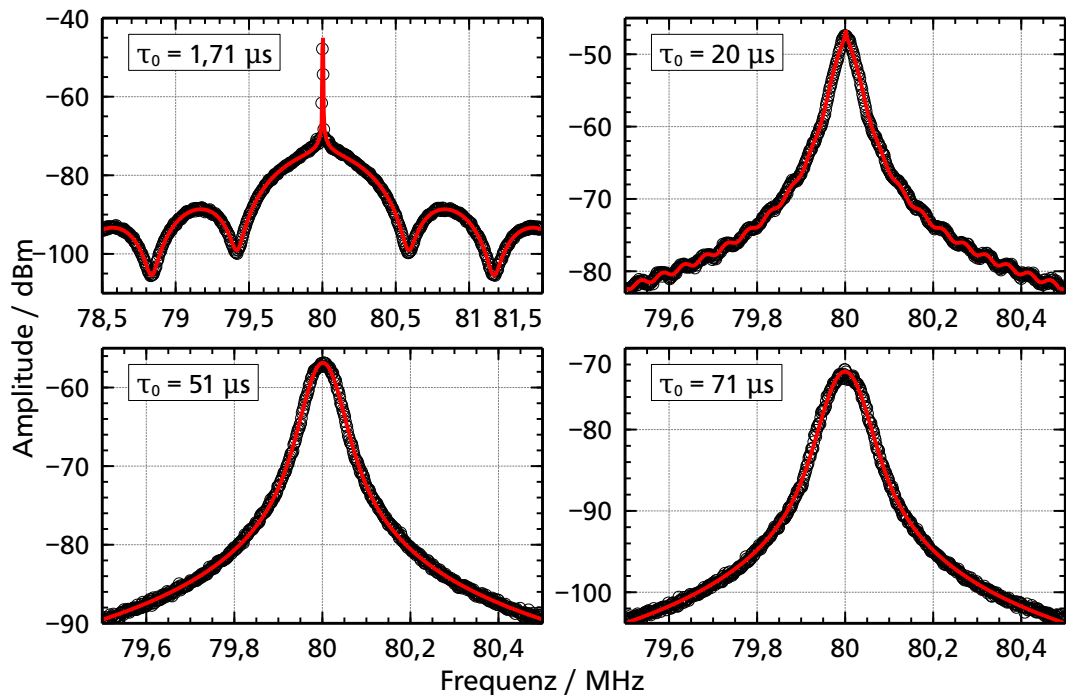


Abbildung 5.8: DSH-Spektren des Fundamentallaser bei 871,6 nm für Messreihe 1. Die schwarzen Punkte entsprechen den ESA-Daten, die rote Linie gibt die Anpassung des Modells wieder.

muss bei der Einstellung der ECDL-Stabilisierung hierauf geachtet werden.

Das $1/f$ -Rauschen hingegen wird maßgeblich durch die Einstellung der Frequenzstabilisierung beeinflusst und ist ohne deren schnellen P-Anteil in Messreihe 2 wesentlich größer, da für die hier gewählten Parameter eine leichte Schwingung auftritt. Es zeigt sich, dass die k -Werte für die Messreihen 1 und 3 für alle τ_0 in einem konstanten Bereich liegen und sich die Linienbreite nur auf Grund der Verzögerungszeit vergrößert. Dieses Verhalten wird entsprechend den Grundlagen aus Abschnitt 5.1.1 für ein ideales System erwartet. Für Messreihe 2 hingegen steigt der Anteil des $1/f$ -Rauschens mit der Verzögerungszeit stark an. Hier macht sich die Tiefpass-Charakteristik der eingesetzten Elektronik bemerkbar, wodurch sich der Einfluss der schwingenden Frequenzstabilisierung bei längeren Beobachtungszeiten vergrößert. Aufgrund des geringen $1/f$ -Rauschens und den damit sehr kleinen k -Werten ist es für die Verzögerungszeit von $1,71 \mu\text{s}$ nicht mehr möglich die korrespondierende Linienbreite zu berechnen.

Die Gesamtliniensbreite wird durch das $1/f$ -Rauschen dominiert und steigt durch dessen Abhängigkeit von τ_0 ebenfalls mit der Verzögerungszeit an.

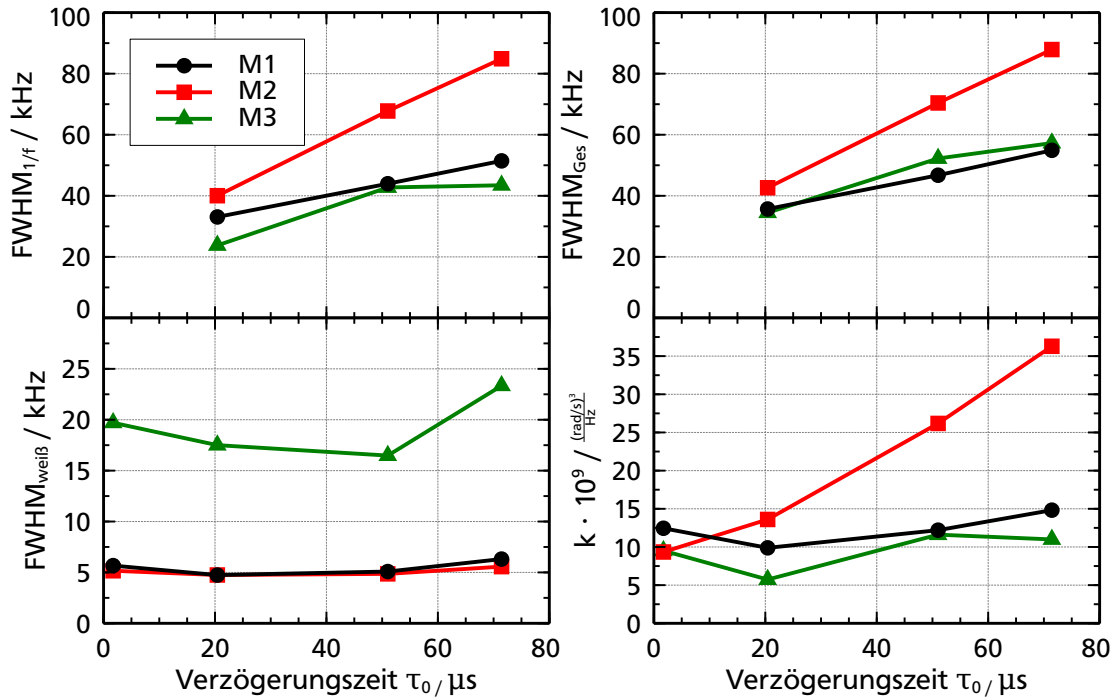


Abbildung 5.9: Laserlinienbreiten des Fundamentallasers bei 871,6 nm für die Messreihen M1 bis M3. Neben den durch die Modellanpassung gewonnenen Rauschkomponenten sind die Gesamtlinienbreite und der k -Wert des $1/f$ -Rauschens für die vier Verzögerungszeiten aufgetragen.

In Abbildung 5.10 sind die DSH-Spektren und die Modellanpassung für die verdoppelte Strahlung bei 435,8 nm für die Messreihen 1 und 3 aufgetragen. Die Veränderung des ECDL-Stabilisierungspunkts ist auch in den Spektren deutlich zu sehen.

Die Laserlinienbreiten für $\tau_0 = 2,06 \mu\text{s}$ sind für die drei Messreihen in Tabelle 5.2 aufgetragen. Zusätzlich sind die Werte des Fundamentallasers für $\tau_0 = 1,71 \mu\text{s}$ aufgeführt, um die Auswirkung der Frequenzverdopplung auf die Linienbreite zu analysieren. Wird die Linienbreite der Frequenzverdoppelten als Faltung des Laserspektrums der Fundamentalen mit sich selbst angesehen, ergibt sich für weißes Rauschen eine Verdopplung der Breite und für $1/f$ -Rauschen eine Vergrößerung um den Faktor $\sqrt{2}$. Als obere Grenze könnte somit, wie z. B. in [157], von einer Verdopplung der Linienbreite ausgegangen werden. Die gemessenen Faktoren unterscheiden sich jedoch erheblich von dieser Annahme. Das weiße Rauschen steigt bei der Frequenzverdopplung um bis zu einen Faktor von 4,81 an. Für das $1/f$ -Rauschen wird die Wurzel des Verhältnisses der k -Werte betrachtet, da die resultierende Laserlinienbreite nach Gleichung (5.28) bzw. (5.27) für gleiche Beobachtungszeiten zirka zu \sqrt{k} proportional ist [144]. Hier zeigt sich eine Vergrößerung um bis zu einen Faktor 2,22. Eine mögliche Ursache für die gemessenen Faktoren könnte in dem hohen nicht-linearen

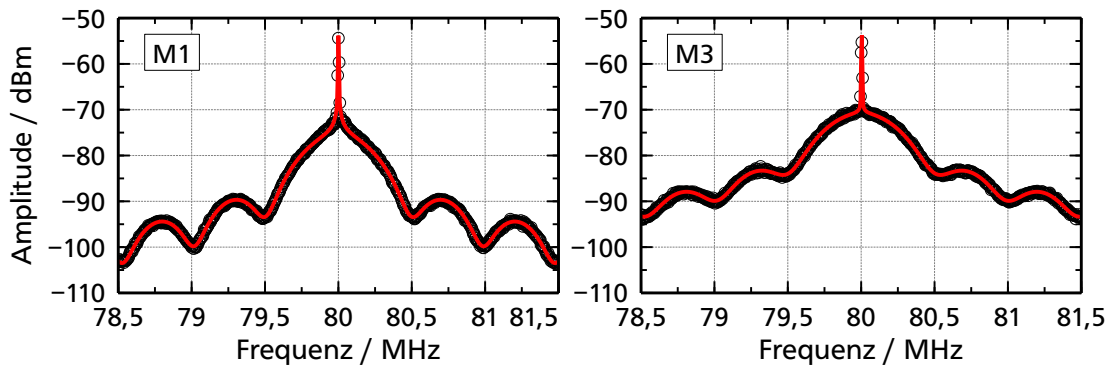


Abbildung 5.10: DSH-Spektren bei 435,8 nm für Messreihe 1 (links) und 3 (rechts). Die schwarzen Punkte entsprechen den ESA-Daten, die rote Linie gibt die Anpassung des Modells wieder.

Koeffizienten des verwendeten KNbO_3 -Kristalls liegen. Hierdurch kann mittels Frequenzverdopplung amplituden-gequetschtes Licht erzeugt werden [158–160], somit verstärken sich die Frequenzfluktuationen bzw. vergrößert sich die Linienbreite. Ein weiteres Material das hierfür Verwendung findet ist LiNbO_3 [161] das im 546,1 nm Lasersystem eingesetzt wird. Wie im folgenden Abschnitt 5.2.2 zu sehen wurde auch hier ein deutlich größerer Anstieg der Linienbreite gemessen. Das $1/f$ -Rauschen kann sich durch Fluktuationen der Länge des Verdopplungsresonators erhöhen, da dessen Stabilisierung eine Bandbreite im kHz-Bereich besitzt und schnellere Veränderungen nicht kompensiert werden können.

Für die genaue Bestimmung der Ursache sind weitere Messungen notwendig, die außerhalb des Rahmens dieser Arbeit liegen.

5.2.2 546,1 nm Lasersystem

Es wird zunächst wieder der Einfluss der Stabilisierungsverfahren auf die Linienbreite des Fundamentallasers bei 1092,2 nm mit den vier verfügbaren Verzögerungszeiten untersucht. Hierfür wurden vier Messreihen mit unterschiedlichen Einstellungen der Stabilisierungen durchgeführt:

Messreihe 1: Optimierte Einstellungen für alle Stabilisierungen wie sie auch für die Messungen in Kapitel 6 verwendet wurden.

Messreihe 2: Frequenzstabilisierung deaktiviert.

Messreihe 3: Nicht optimaler Stabilisierungspunkt der ECDL-Stabilisierung, sonst wie Messreihe 1.

Messreihe 4: ECDL-Stabilisierungspunkt wie in Messreihe 3 und zusätzlich Frequenzstabilisierung deaktiviert.

Tabelle 5.2: Gegenüberstellung der Linienbreiten bei 435,8 nm, gemessen für $\tau_0 = 2,06 \mu\text{s}$ und 871,6 nm, gemessen für $\tau_0 = 1,71 \mu\text{s}$, für die Messreihen M1 bis M3. Der k -Wert dient dem Vergleich des $1/f$ -Rauschanteils, unabhängig von τ_0 .

		435,8 nm	871,6 nm	$435,8 \text{ nm}/871,6 \text{ nm}$
M1	FWHM _{weiß}	20,7 kHz	5,67 kHz	3,65
	FWHM _{1/f}	47,9 kHz	-	-
	FWHM _{ges}	59,9 kHz	-	-
	k in $(\text{rad/s})^3/\text{Hz}$	$5,5 \cdot 10^{10}$	$1,2 \cdot 10^{10}$	$\sqrt{4,44} = 2,11$
M2	FWHM _{weiß}	24,8 kHz	5,16 kHz	4,81
	FWHM _{1/f}	41,6 kHz	-	-
	FWHM _{ges}	56,4 kHz	-	-
	k in $(\text{rad/s})^3/\text{Hz}$	$4,6 \cdot 10^{10}$	$9,3 \cdot 10^9$	$\sqrt{4,95} = 2,22$
M3	FWHM _{weiß}	67,6 kHz	19,7 kHz	3,43
	FWHM _{1/f}	21,5 kHz	-	-
	FWHM _{ges}	74,2 kHz	-	-
	k in $(\text{rad/s})^3/\text{Hz}$	$2,2 \cdot 10^{10}$	$9,5 \cdot 10^9$	$\sqrt{2,32} = 1,52$

Die DSH-Spektren des Fundamentallasers für Messreihe 1 sind in Abbildung 5.11 dargestellt. Jedes Spektrum besteht aus der Mittelung von 10 Einzelmessungen, die mit einer RBW von 1 kHz aufgenommen wurden. Die Anpassung des Modells weist in allen Spektren leichte Abweichungen auf. Für $\tau_0 = 1,71 \mu\text{s}$ kann der Bereich um den Delta-Peak nicht exakt wiedergegeben werden. In den drei weiteren Spektren sind Abweichungen im Verlauf der Flanken und des zentralen Maximums zu erkennen. Diese Abweichungen lassen auf einen weiteren Rauschtypus schließen, der durch die Modellrechnung nicht wiedergegeben werden kann. Als Folge werden die Halbwertsbreiten durch das Modell nicht exakt wiedergegeben und überschätzt.

Dies ist auch in Abbildung 5.12 zu erkennen, in der die Linienbreiten der Modellanpassungen für die vier Messreihen aufgetragen sind. Der Anteil des weißen Rauschens liegt für die Messreihen 1 und 2 in einem konstanten Bereich um 4 kHz. Nach der Verschiebung des ECDL-Stabilisierungspunktes in den Messreihen 3 und 4 liegt das weiße Rauschen in einem ähnlichen Bereich, weist jedoch stärkere Schwankungen auf. Im Gegensatz zum 871,6 nm Laser ergibt sich eine deutliche Vergrößerung des $1/f$ -Rauschens, welches sich mehr als verdoppelt. Die zugehörigen k -Werte fallen zudem bei steigenden Verzögerungszeiten ab. Dieses Verhalten ist der schlechteren Modellanpassung geschuldet. Der Trend einer steigenden Halbwertsbreite des $1/f$ -Rauschens mit zunehmender Beobachtungszeit wird hierdurch

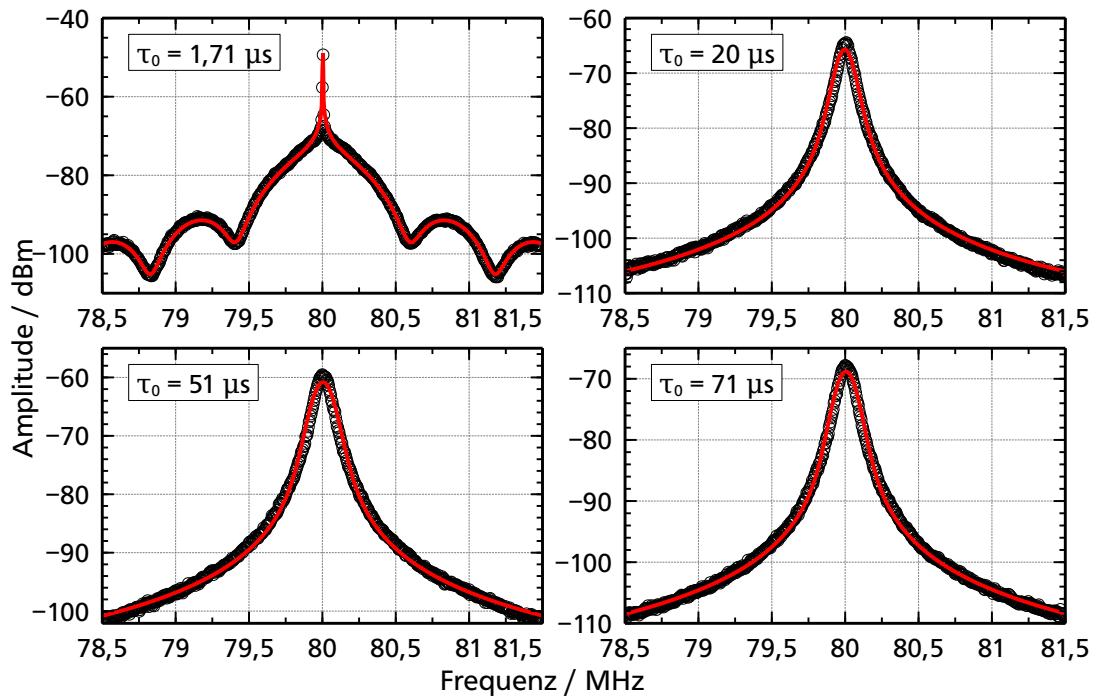


Abbildung 5.11: DSH-Spektren des Fundamentallaser bei 1092,2 nm für Messreihe 1. Die schwarzen Punkte entsprechen den ESA-Daten, die rote Linie gibt die Anpassung des Modells wieder.

überlagert. Weiterhin ist zu erkennen, dass die Frequenzstabilisierung innerhalb der zugänglichen Beobachtungszeiten keinen Einfluss auf die Linienbreiten ausübt.

Die Modellanpassung an das DSH-Spektrum bei 546,1 nm zeigt ähnliche Abweichungen wie sie in Abb. 5.13 für die Messreihen 1 und 3 zu sehen sind. Für das Spektrum aus Messreihe 3 ist die Diskrepanz besonders deutlich zu erkennen. Das $1/f$ -Rauschen ist in der Anpassung so stark überhöht, dass der Delta-Peak fast gänzlich verschwindet.

Das Ergebnis der Modellanpassung an die DSH-Spektren für $\tau_0 = 2,06 \mu\text{s}$ und der Vergleich mit den Werten des Fundamentallasers für $\tau_0 = 1,71 \mu\text{s}$ sind in Tabelle 5.3 aufgetragen. Der Vergleich zeigt, dass sich das weiße Rauschen auch bei diesem Lasersystem mehr als verdoppelt, jedoch nicht so stark wie für das 435,8 nm System. Auch hier kann die Erzeugung von amplituden-gequetschtem Licht eine mögliche Ursache darstellen. Durch den deutlich geringeren nicht-linearen Koeffizienten von LiNbO_3 allerdings weit weniger ausgeprägt. Der Anstieg des technischen $1/f$ -Rauschens bewegt sich in einem ähnlichen Niveau im Vergleich zum 435,8 nm Lasersystem und damit über dem erwarteten Wert von $\sqrt{2}$. Der Grund hierfür kann wieder in den Längenfluktuationen des Verdopplungsresonators liegen. Für diese Vermutung spricht, dass die Resonatoren beider Lasersysteme ähnlich aufgebaut

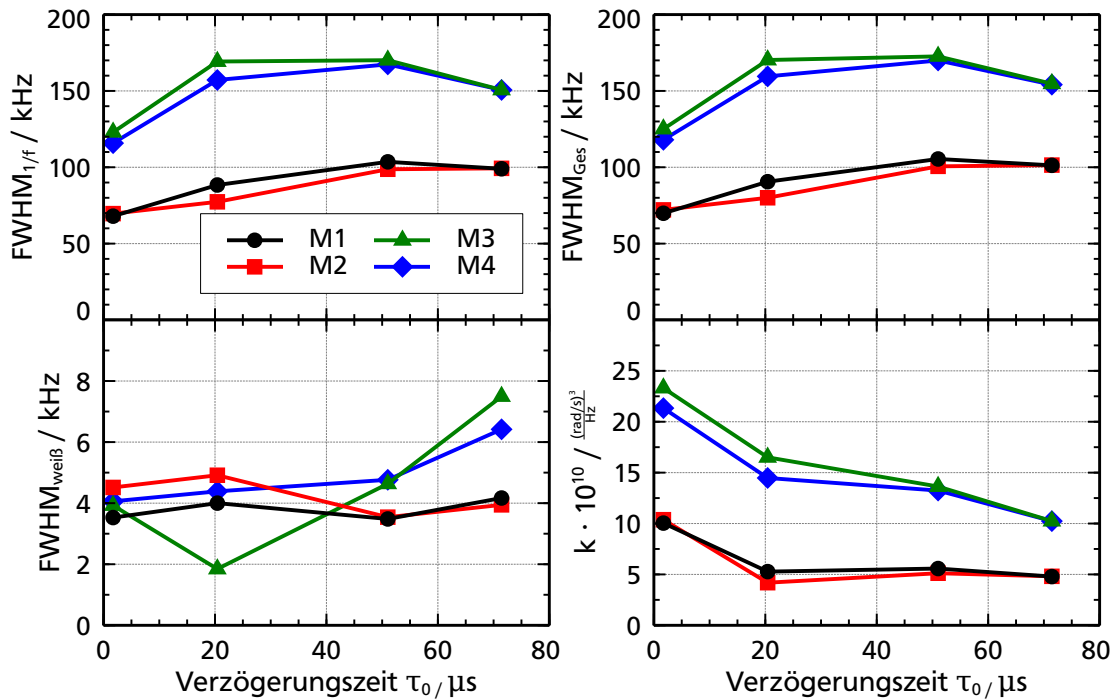


Abbildung 5.12: Laserlinienbreiten des Fundamentallasers bei 1092,2 nm für die Messreihen M1 bis M4. Neben den durch die Modellanpassung gewonnenen Rauschkomponenten sind die Gesamlinienbreite und der k -Wert des $1/f$ -Rauschens für die vier Verzögerungszeiten aufgetragen.

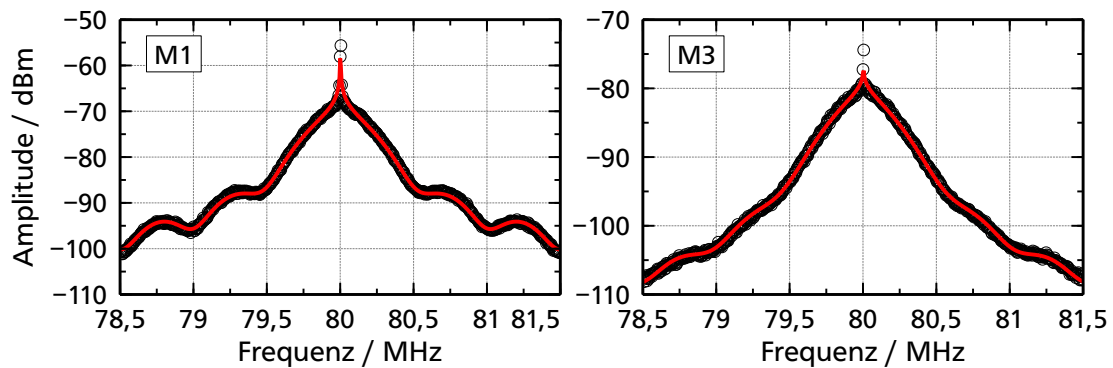


Abbildung 5.13: DSH-Spektren bei 546,1 nm für Messreihe 1 (links) und 3 (rechts). Die schwarzen Punkte entsprechen den ESA-Daten, die rote Linie gibt die Anpassung des Modells wieder.

Tabelle 5.3: Gegenüberstellung der Linienbreiten bei 546,1 nm, gemessen für $\tau_0 = 2,06 \mu\text{s}$ und 1092,2 nm, gemessen für $\tau_0 = 1,71 \mu\text{s}$, für die Messreihen M1 bis M3. Der k -Wert dient dem Vergleich des $1/f$ -Rauschanteils, unabhängig von τ_0 .

		546,1 nm	1092,2 nm	$546,1 \text{ nm}/1092,2 \text{ nm}$
M1	$\text{FWHM}_{\text{weiß}}$	9,53 kHz	3,53 kHz	2,70
	$\text{FWHM}_{1/f}$	178 kHz	68,0 kHz	-
	FWHM_{ges}	183 kHz	69,9 kHz	-
	k in $(\text{rad/s})^3/\text{Hz}$	$3,77 \cdot 10^{11}$	$1,00 \cdot 10^{11}$	$\sqrt{3,77} = 1,94$
M2	$\text{FWHM}_{\text{weiß}}$	10,6 kHz	4,51 kHz	2,35
	$\text{FWHM}_{1/f}$	175 kHz	69,6 kHz	-
	FWHM_{ges}	181 kHz	72,1 kHz	-
	k in $(\text{rad/s})^3/\text{Hz}$	$3,67 \cdot 10^{11}$	$1,04 \cdot 10^{11}$	$\sqrt{3,53} = 1,88$
M3	$\text{FWHM}_{\text{weiß}}$	9,43 kHz	4,06 kHz	2,32
	$\text{FWHM}_{1/f}$	296 kHz	116 kHz	-
	FWHM_{ges}	301 kHz	118 kHz	-
	k in $(\text{rad/s})^3/\text{Hz}$	$8,55 \cdot 10^{11}$	$2,13 \cdot 10^{11}$	$\sqrt{4,01} = 2,00$
M4	$\text{FWHM}_{\text{weiß}}$	13,0 kHz	3,92 kHz	3,32
	$\text{FWHM}_{1/f}$	296 kHz	116 kHz	-
	FWHM_{ges}	303 kHz	118 kHz	-
	k in $(\text{rad/s})^3/\text{Hz}$	$8,54 \cdot 10^{11}$	$2,33 \cdot 10^{11}$	$\sqrt{3,67} = 1,92$

sind und sich auch die Faktoren stark ähneln.

Insgesamt ist festzustellen, dass die Linienbreite des 546,1 nm Lasers aufgrund des stärkeren $1/f$ -Rauschens deutlich über der des 435,8 nm Lasers liegt.

6 Messung der kohärenten Anregung

In diesem Kapitel werden die ersten erfolgreichen Messungen einer dopplerfreien, kohärenten drei-Photonen Anregung in Quecksilberdampf nahe Raumtemperatur vorgestellt. Im ersten Teil wird die reine drei-Photonen Resonanz analysiert. Der Fokus liegt auf dem Einfluss der Laserparameter wie Linienbreite und Frequenzverstimmung. Durch die verwendeten Helmholtz-Spulen ist es zudem möglich ein starkes Magnetfeld anzulegen und den Einfluss der Zeemanaufspaltung zu untersuchen.

Anschließend wird das zentrale Experiment dieser Arbeit, die Implementierung eines AWI-Schemas in Quecksilber bei einer Wellenlänge von 253,7 nm, vorgestellt. Hierfür wird der $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Grundzustandsübergang mit einem künstlich verbreiterten Laser gepumpt. Durch einen Vergleich mit dem theoretischen Modell ist es möglich, die für AWI notwendigen Parameter abzuschätzen.

6.1 Drei-Photonen Resonanz

Für die Messung der drei-Photonen Resonanz der drei Übergänge $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$, $6^3P_1 \leftrightarrow 7^3S_1$ und $7^3S_1 \leftrightarrow 6^3P_2$ wurde die in [27] vorgestellte Winkelgeometrie zur Überlagerung des Probenstrahls bei 253,7 nm, sowie des starken und schwachen Kopplungslasers bei 435,8 nm respektive 546,1 nm verwendet. Bei der Justage wurde besonders darauf geachtet, die optimale Überlagerung innerhalb der UHV-Zelle zu erreichen. Die Strahldurchmesser der Kopplungslaser bei 435,8 nm und 546,1 nm dürfen dabei nicht zu groß gewählt werden, da ansonsten die Intensitäten und somit auch die erreichbaren Rabi-Frequenzen zu klein für eine stabile kohärente Anregung werden. Zu kleine Strahldurchmesser führen wiederum zu einer geometrisch stark eingeschränkten Überlagerungszone. Die Länge dieser Zone ist durch die Geometrie der UHV-Zelle vorgegeben und lässt sich von 1 mm bis 7 mm variieren. Mit Hilfe des theoretischen Modells aus [28] wurde ein Kompromiss aus möglichst großer Intensität und Wechselwirkungsstrecke gefunden. Die Strahldurchmesser der Kopplungslaser wurden zu 2 mm gewählt und der 253,7 nm Probenstrahl besitzt einen Durchmesser von 0,84 mm. Die sich daraus ergebende Überlagerungszone ist in Abbildung 6.1 dargestellt. Die Wechselwirkungsstrecke innerhalb der Zelle beträgt 2 mm und ermöglicht somit eine vollständige Überlagerung aller Strahlen in der Quecksilberatmosphäre. Der 404,7 nm Rückpumplaser besitzt einen Strahldurchmesser von 2,8 mm und wird in Richtung des 435,8 nm Lasers in einem leicht größeren Winkel von 23° zum Probenstrahl in die Zelle geführt und mit den anderen Lasern überlagert.

Die Polarisationsrichtungen der Laser folgen dem in [27] vorgestellten Schema und sind ebenfalls in Abb. 6.1 eingezeichnet. Die Polarisation des Probenlasers bei 253,7 nm ist parallel

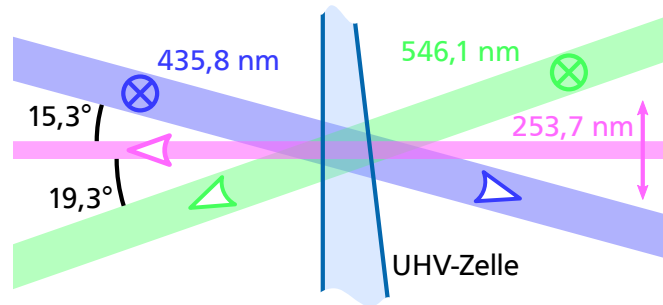


Abbildung 6.1: Überlagerungszone der beiden Kopplungslaser bei 435,8 nm und 546,1 nm sowie des Probenstrahls bei 253,7 nm in der keilförmigen UHV-Zelle. Der Strahldurchmesser der beiden Kopplungslaser beträgt jeweils 2 mm, der des Probenstrahls 0,84 mm. Die Länge der Überlagerungszone innerhalb der Zelle beträgt 2 mm, so dass alle drei Strahlen vollständig überlappen. Die Polarisationsrichtung der Laser folgt dem Schema in [27]. Die Kopplungslaser sind senkrecht zur Überlagerungsebene polarisiert, der Probenlaser parallel dazu. Die Winkel sind gemäß einer dopplerfreien Konfiguration so gewählt, dass sich die k -Vektoren der Laser zu Null addieren.

zur Überlagerungsebene ausgerichtet, während die Polarisation der beiden Kopplungslaser sowie, des Rückpumplasers senkrecht zur Ebene steht.

Drei Helmholtz-Spulenpaare ermöglichen es einen magnetfeldfreien Raum im Bereich der Überlagerungszone innerhalb der UHV-Zelle zu schaffen (siehe auch Abschnitt 4.1). Mit Hilfe einer Hall-Sonde zur Messung des Magnetfeldes wurden die Ströme durch die Helmholtz-Spulen so eingestellt, dass im Bereich der Überlagerungszone das Erdmagnetfeld kompensiert wird, um eine Zeemanaufspaltung der atomaren Niveaus zu verhindern. Dabei wurde festgestellt, dass die im Folgenden gezeigte drei-Photonen Resonanz sehr empfindlich auf kleinste Magnetfelder reagiert. Die Stärke des Erdmagnetfeldes von wenigen μT genügt, um die Resonanz so stark zu unterdrücken, dass sie nicht mehr gemessen werden konnte. In Abschnitt 6.1.3 ist die Auswirkung eines sehr starken Magnetfeldes von 1,42 mT zu sehen. Hier ergeben sich zwei unabhängige Anregungswege.

Die verwendeten Laserleistungen sind in Tabelle 6.1 zusammen mit den Strahldurchmessern aufgelistet und gelten für alle folgenden Messungen, soweit nicht anders angegeben. Die Leistung des 253,7 nm Probenlasers wurde ausreichend klein gewählt, um eine Sättigung des Übergangs zu vermeiden, jedoch noch groß genug, um mit den eingesetzten Photodioden ein gutes Signal-zu-Rausch Verhältnis zu erhalten. Der Referenzstrahl, der unterhalb des Probenstrahls durch die UHV-Zelle geführt wird (vergleiche Abschnitt 4.1), besitzt die gleiche Leistung wie der Probenstrahl und eine um 90° gedrehte Polarisation.

Tabelle 6.1: Laserparameter wie sie für die Messungen der drei-Photonen Resonanz verwendet wurden und die sich daraus ergebenden Rabifrequenzen und Sättigungsparameter der jeweiligen Übergänge.

Wellenlänge	Leistung	Strahl- durchmesser	Rabifrequenz $\Omega/2\pi$	Sättigungs- parameter S_0
253,7 nm	50 μ W	0,84 mm	0,21 MHz	0,88
435,8 nm	170 mW	2 mm	30,8 MHz	385
546,1 nm	3,95 mW	2 mm	6,17 MHz	20,2
404,7 nm	3,7 mW	2,8 mm	1,80 MHz	9,10

Die Rabifrequenzen Ω der Laser können nach [28] mit der Gleichung

$$\Omega/2\pi = \sqrt{2} \cdot \frac{\sqrt{S_{ij}}E}{\hbar \sqrt{2J_i + 1}} \quad (6.1)$$

berechnet werden, wobei S_{ij} der Linienstärke des Übergangs $i \leftrightarrow j$ entspricht (Werte sind z. B. in der NIST Datenbank [162] zu finden, bzw. in [28] aufgelistet), E der Amplitude des elektrischen Feldes und J_i dem Gesamtdrehimpuls des Zustandes i . Der Vorfaktor $\sqrt{2}$ ergibt sich aus der Betrachtung der zirkularen Polarisationskomponenten der Laserstrahlung.

Die vier Lasersysteme werden auf den Übergang des ^{202}Hg -Isotops stabilisiert. Der 253,7 nm Probenstrahl wird für die Messung bis zu 7 GHz weit über die Resonanz des ^{202}Hg -Isotops verstimmt. Dieses bosonische Isotop wurde gewählt, da es mit 29,65 % das größte natürliche Vorkommen aufweist [163].

Um den Probenlaser zu verstimmen, wird die Spannung des Piezoaktors des 1014,8 nm ECDL mit einem Dreiecksignal moduliert und so die Länge des externen Resonators verfahren. Die Periode des Dreiecksignals beträgt 18 s. Diese wurde so groß gewählt, damit die zwei Verdopplungsresonatoren der Verstimmung folgen können, ohne dass ihre Stabilität negativ beeinflusst wird. Der Offset des Dreiecksignals wurde so eingestellt, dass das Zentrum des $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergangs in der Rampenmitte liegt.

Für die Datenaufnahme wurde ein 4-Kanal Oszilloskop⁵⁷ mit einer Aufzeichnungslänge von 125k Datenpunkten verwendet. In jeder Messung werden vier aufeinanderfolgende Rampen des Dreiecksignals aufgenommen. Somit besteht jede Rampe aus 31k Datenpunkten. Für drei der vier Rampen wurde jeweils ein Laserstrahl blockiert, um den Einfluss der beteiligten Laser zu untersuchen. Damit ergeben sich effektiv die in Tabelle 6.2 aufgelisteten Laserkonfigurationen. Für Laserkonfiguration 1 wird der Probenstrahl weiterhin mit den 546,1 nm und 404,7 nm Lasern überlagert, aber durch die fehlende Kopplung auf dem $6^3P_1 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergang beeinflussen diese die Absorption des 253,7 nm Lasers nicht. Diese Konfigura-

⁵⁷DPO2014B, Tektronix, Inc.

Tabelle 6.2: Für jede Messung der drei-Photonen Resonanz werden vier aufeinanderfolgende Scans des Probenstrahls über den $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergang aufgenommen. Dabei wird für jeden Scan eine dieser vier Laserkonfigurationen eingestellt.

Laser-konfig.	253,7 nm Probenlaser	435,8 nm Kopplungslaser	546,1 nm Kopplungslaser	404,7 nm Rückpumpplaser
Nr. 1	✓			
Nr. 2	✓	✓		✓
Nr. 3	✓	✓	✓	
Nr. 4	✓	✓	✓	✓

tion stellt eine Dunkelmessung dar, in der die ungestörte Absorption des Probenstrahls mit der Absorption des Referenzstrahl verglichen werden kann. Mit den vier Kanälen des Oszilloskops werden zeitgleich das Photodiodensignal des Proben- und Referenzstrahls, sowie die daraus gebildete Differenz (wie in Abschnitt 3.7 beschrieben) aufgenommen. Am vierten Kanal liegt das Signal des 507,4 nm Fabry-Pérot Resonators (HF-FPI) an (siehe Abb. 3.31). Entsprechend der Scanweite von 7 GHz bei 253,7 nm können so pro Rampe drei freie Spektralbereiche und damit vier Airy-Peaks aufgenommen werden. Hierdurch ist es möglich, eine Frequenzkalibrierung der Zeitachse des Oszilloskops durchzuführen, wobei auch die nichtlineare Ausdehnung des Piezoaktors des 1014,8 nm ECDL berücksichtigt wird.

Aufgrund der verwendeten Polarisationskomponenten im UV-Strahlengang bei 253,7 nm ist der Leistung des Proben- und Referenzstrahls eine Überlagerung aus einer sinusförmigen Modulation und einem linearen Drift aufgeprägt. Durch die Aufteilung an einem Dünnschichtpolarisator und die dadurch um 90° verschobenen Polarisationen sind die Leistungsänderungen zwischen den Strahlen gerade entgegengesetzt und somit nicht nur in den Einzelsignalen der beiden Strahlen, sondern auch im Photodiodendifferenzsignal vorhanden. Diese Modulation lässt sich jedoch durch eine Anpassung einer geeigneten Funktion berücksichtigen und vom eigentlichen Spektrum subtrahieren. Ferner weisen Proben- und Referenzstrahl in der UHV-Zelle leicht unterschiedliche Strahldurchmesser auf. Dies beruht auf der Divergenz der Gaußstrahlen und der unterschiedlichen Weglängen beider Strahlen nach dem Dünnschichtpolarisator. In der Folge unterscheiden sich auch die Intensitäten beider Strahlen in der UHV-Zelle und entsprechend auch die Absorption. Außerdem muss berücksichtigt werden, dass die für die Detektion von Proben- und Referenzstrahl verwendeten Photodioden eine unterschiedliche Detektionseffizienz aufweisen können. Auch wurden die Transmissionen der nach der UHV-Zelle eingesetzten Linsen und Bandpassfilter im Proben- und Referenzstrahlengang nicht aufeinander abgestimmt. Diese Faktoren werden durch die Dunkelmessung (Laserkonfiguration 1, Tab. 6.2) berücksichtigt, um die Unterschiede der Absorption von Proben- und Referenzstrahl präzise bestimmen zu können. Die genaue

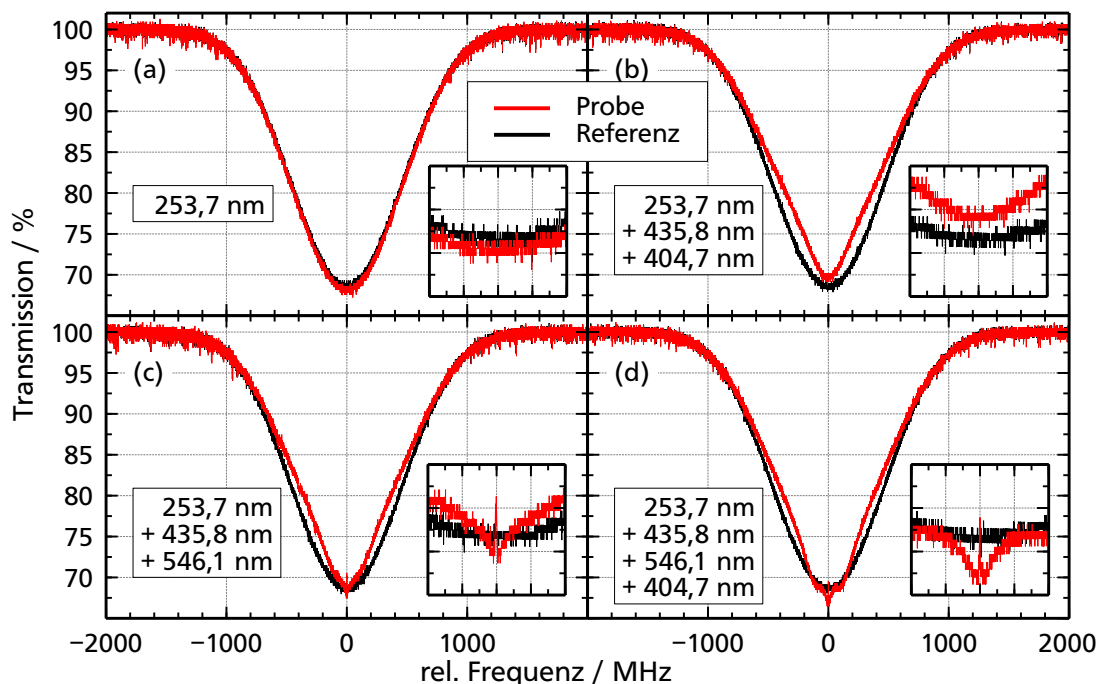


Abbildung 6.2: Normierte Transmissionsspektren von Probenstrahl in Rot und Referenzstrahl in Schwarz für die vier vorgestellten Laserkonfigurationen, aufgetragen über die relative Frequenzverstimmung zum Übergang des ^{202}Hg -Isotops. Die Vergrößerung zeigt jeweils einen Ausschnitt der Transmission zwischen 66 % und 72 % in einem Bereich von ± 100 MHz zentriert um den atomaren Übergang. Spektrum (a) entspricht Laserkonfiguration 1, (b) Laserkonfiguration 2, (c) Laserkonfiguration 3 und (d) Laserkonfiguration 4.

Vorgehensweise der Aufbereitung der Rohdaten wird in Anhang F vorgestellt. Alle in diesem Kapitel gezeigten Spektren wurden entsprechend aufbereitet.

In Abbildung 6.2 ist die Absorption des Proben- und Referenzstrahls für eine Messreihe mit den vier vorgestellten Laserkonfigurationen und Laserparametern aus Tabelle 6.1 dargestellt. Die Absorptionsspektren für Proben- und Referenzstrahl sind jeweils auf deren maximale Transmission normiert, wie in Anhang F gezeigt. Dies ermöglicht einen Einblick in die quantitative Änderung der Absorption. Die vergrößerte Darstellung zeigt einen Ausschnitt von ± 100 MHz um das Absorptionszentrum.

Abbildung 6.2 (a) entspricht Laserkonfiguration 1, in der sowohl Proben- als auch Referenzstrahl die ungestörte dopplerverbreiterte Absorption des $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Grundzustandübergangs erfahren. Die Halbwertsbreiten der gaußförmigen Absorption entsprechen jeweils

1068 ± 90 MHz. Unter Berücksichtigung der Absorptionsstrecke von 2 mm ergibt sich eine Dopplerverbreiterung von 1013 ± 84 MHz.

Wird, wie in Abb. 6.2 (b), der $6^3P_1 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergang durch den 435,8 nm Laser kohärent gekoppelt und zusätzlich der 404,7 nm Rückpumplaser eingestrahlt, ist eine Verminderung der Absorption des Probenstrahls zu erkennen. Dabei gelangt Besetzung über spontane Emission aus dem 7^3S_1 Niveau in das langlebige 6^3P_2 Niveau. Durch die kurze Lebensdauer des 7^3S_1 Niveaus von 8 ns und einer Wahrscheinlichkeit von 38,8 % [128] in das 6^3P_2 Niveau zu zerfallen, ist dieser Pumpeffekt deutlich sichtbar. Ein EIT-Effekt der kohärenten Kopplung des $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1 \leftrightarrow 7^3S_1$ Leitersystems wird durch die Dopplerverbreiterung ausgewaschen. Dabei kann die effektive Dopplerbreite $\Delta_{D,eff}$ dieser kohärenten zwei-Photonen Resonanz mittels

$$\Delta_{D,eff} = 2 \left| \frac{1}{\lambda_1} - \left(\cos(15,3^\circ) \cdot \frac{1}{\lambda_2} \right) \right| \cdot u \quad (6.2)$$

berechnet werden [4, 44], mit $\lambda_1 = 253,7$ nm und $\lambda_2 = 435,8$ nm, wobei hier zusätzlich der Winkel zwischen Proben- und Kopplungsstrahl von $15,3^\circ$ berücksichtigt wird. Der Faktor u berechnet sich zu

$$u = \sqrt{\frac{\ln 2 \cdot 2k_B T}{m}}, \quad (6.3)$$

mit der Temperatur des Quecksilberdampfes T in Kelvin, der Boltzmann-Konstante k_B und der Masse eines Atoms m . Daraus ergibt sich eine effektive Dopplerbreite der zwei-Photonen Resonanz von $\Delta_{D,eff} = 445$ MHz. Dem gegenüber steht eine Autler-Townes Aufspaltung in der Größe der Rabi-Frequenz des Kopplungslasers von 30,8 MHz. Diese Aufspaltung ist wesentlich kleiner als die effektive Dopplerbreite, wodurch kohärente Effekte wie EIT nicht beobachtet werden können [44, 51].

Erst wenn beide Kopplungslaser eingestrahlt werden, kann sich eine dopplerfreie drei-Photonen Resonanz ausbilden, wie in Abb. 6.2 (c) zu sehen ist. Die vergrößerte Darstellung zeigt einen schmalen Peak genau im Zentrum der Absorption. Dieser Peak stellt die gesuchte Resonanz durch kohärente Anregung mit dem Kopplungslaser dar. Durch den fehlenden Rückpumplaser kann sich jedoch Besetzung im langlebigen 6^3P_0 Niveau sammeln, wodurch sich die Absorption des Probenstrahls verringert.

In Abb. 6.2 (d) sind alle vier Laser aktiv. Wie sich zeigt, hat der Rückpumplaser keinen negativen Einfluss auf die drei-Photonen Resonanz. Die Absorption verschiebt sich zu größeren Werten hin, da sich keine Besetzung mehr im 6^3P_0 Zustand sammeln kann.

Die drei-Photonen Resonanz ist in Abb. 6.2 durch die Leistungsfluktuationen des UV-Lasers und dem daraus bedingten schlechten Signal-zu-Rausch Verhältnis nur unzureichend aufzulösen. Die Leistungsstabilisierung der UV-Strahlung kann aufgrund ihrer endlichen Bandbreite nur einen Teil der Leistungsfluktuationen kompensieren. Da aber Proben- und Referenzstrahl die gleiche Grundleistung aufweisen und die Fluktuationen polarisationsunabhängig sind, werden diese durch Differenzbildung der beiden Signale eliminiert. Darüber hinaus ist im

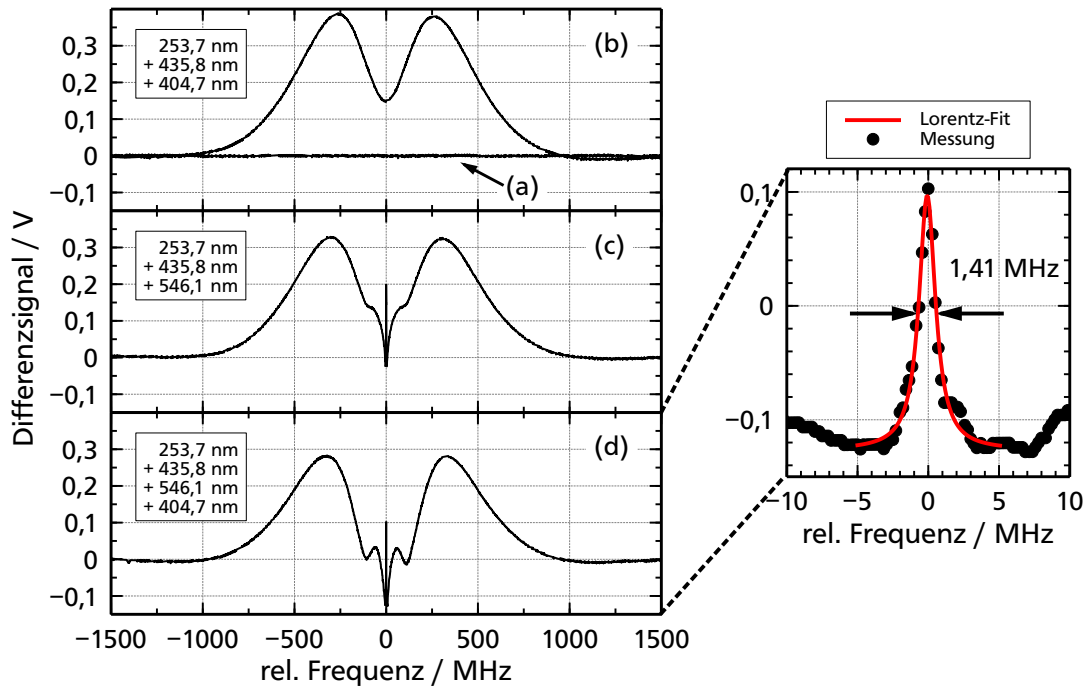


Abbildung 6.3: Differenzsignal der Differenzphotodiode für die vier Spektren aus Abbildung 6.2 mit identischer Bezeichnung der Spektren mit (a) bis (d). Ein positives Differenzsignal bedeutet eine im Vergleich zum Referenzstrahl verringerte Absorption des Probenstrahls, ein negatives Differenzsignal entsprechend eine verstärkte Absorption. Der vergrößerte Ausschnitt zeigt die drei-Photonen Resonanz für Laserkonfiguration 4, mit der Anpassung einer Lorentz-Funktion in Rot. Die Halbwertsbreite der Lorentz-Funktion beträgt 1,41 MHz.

Differenzsignal direkt zu erkennen, ob eine Verstärkung oder Verminderung der Absorption des Probenstrahls stattfindet, wobei ein positives Differenzsignal einer verringerten und ein negatives Signal einer erhöhten Absorption entspricht.

Das zur Messung von Abb. 6.2 zeitgleich aufgenommene Differenzsignal ist in Abbildung 6.3 aufgetragen. Das Rauschen ist in diesen Spektren fast vollständig unterdrückt. Die Bezeichnung der vier Laserkonfigurationen mit (a) bis (d) ist für beide Abbildungen identisch, wobei Laserkonfiguration 1 in der Differenz eine einfache Nulllinie darstellt und deshalb zusammen mit Laserkonfiguration 2 in Abb. 6.2 (b) dargestellt ist.

Das Differenzsignal in Abbildung 6.2 (b) sollte unter der Annahme eines einfachen optischen Pumpprozesses von Besetzung in das 6^3P_2 Niveau eine verringerte Absorption mit, aufgrund der Dopplerverbreiterung gaußförmigem Verlauf aufweisen. Ab einer relativen Frequenzabweichung von ca. ± 250 MHz vom Zentrum des Übergangs ist jedoch wieder

ein Anstieg der Absorption zu verzeichnen. Eine mögliche Ursache ist das Auftreten von zwei-Photonen Absorptionseffekten (*two-photon absorption*, kurz TPA). Die zwei-Photonen Absorption beinhaltet sowohl kohärente als auch inkohärente Anteile wie die zwei-Stufen Anregung (*two-step excitation*, kurz TSE) [164, 165]. Aufgrund der Dopplerverbreiterung kommt in dieser Konfiguration vor allem der inkohärente TSE Teil in Frage. In diesem TSE Prozess wird das Atom zuerst vom Probenstrahl in das 6^3P_1 Niveau und durch den Kopplungslaser in das 7^3S_1 Niveau transferiert. Dies führt zu einem zweiten Anregungsweg aus dem 6^1S_0 Grundzustand und damit zu dem beobachteten Anstieg der Absorption [164]. Wird der Probenstrahl wie in Abbildung 6.2 (c) mit beiden Kopplungslasern überlagert, bildet sich im Zentrum ein sehr schmaler Peak: die gesuchte dopplerfreie drei-Photonen Resonanz. Darüber hinaus wird die Absorption im Bereich von ± 50 MHz um das Zentrum weiter erhöht. Noch besser ist dies in 6.2 (d) zu erkennen, wenn zusätzlich der Rückpumplaser eingestrahlt wird. Dann tritt um das Zentrum der Resonanz eine gegenüber dem ungestörten System verstärkte Absorption auf, während die drei-Photonen Resonanz erhalten bleibt. Da der 6^1S_0 Grundzustand keine Zeemanunterniveaus oder Hyperfeinaufspaltung aufweist und bei Raumtemperatur alle Besetzung in diesem versammelt ist [166], kann die verstärkte Absorption nicht, wie z. B. in [167], durch einen Pumpprozess erklärt werden. Es ist jedoch, analog zu dem beschriebenen TSE Prozess, eine drei-Stufen Anregung (*three-step excitation*, kurz THSE) in den 6^3P_1 möglich und führt zu einem weiteren Anregungsweg aus dem Grundzustand. Der THSE Prozess tritt auch in 6.2 (c) auf, führt dort aber noch nicht zu einer verstärkten Absorption, da sich durch den fehlenden Rückpumplaser Besetzung im langlebigen 6^3P_0 Niveau sammeln kann.

Der Ausschnitt in Abb. 6.2 zeigt einen Bereich von ± 10 MHz um die drei-Photonen Resonanz mit einer angepassten Lorentz-Funktion [28, 53]. Die so bestimmte Halbwertsbreite beträgt 1,41 MHz und ist damit etwas größer als die natürliche Linienbreite von 1,27 MHz, aber kleiner als die erwartete Linienbreite unter Berücksichtigung des Sättigungsparameters mit $1,27 \text{ MHz} \cdot \sqrt{1 + 0,88} = 1,74 \text{ MHz}$. Dem gegenüber steht die mit dem theoretischen Modell [28], für die gegebenen Laserparameter, berechnete Halbwertsbreite von 704 kHz, die deutlich unter der gemessenen liegt (siehe auch Abschnitt 2.4).

Die wahrscheinlichste Ursache für die Verbreiterung der Resonanz liegt in verbleibenden Frequenzschwankungen der Kopplungslaser. Wie in Abschnitt 3.3.3 und 3.4.3 gezeigt wurde, liegen die maximal gemessenen Frequenzfluktuationen für beide Laser in einem Bereich von 500 kHz. Da die Laser unabhängig voneinander stabilisiert werden, beträgt die für die drei-Photonen Resonanz relevante Abweichung $\sqrt{2} \cdot 500 \text{ kHz} = 707 \text{ kHz}$, wenn ein gaußscher Prozess angenommen wird. Dies kann jedoch nicht die alleinige Ursache darstellen, da auch größere Breiten der drei-Photonen Resonanz bis in den Bereich von 4 MHz gemessen wurden. Die Messungen in Abschnitt 3.3.3 und 3.4.3 können jedoch nicht erfassen, wenn sich der Nulldurchgang des Fehlersignals verschiebt. Dies kann durch Polarisationsoptiken, wie z. B. die verwendeten Wellenlängenplättchen, deren Zentralwellenlängen von der Laserwellenlänge abweicht, ausgelöst werden. Dadurch können sich Leistungsschwankungen in eine Verschiebung des Fehlersignals nulldurchgangs übertragen, die wiederum zu Frequenzschwankungen führen. Da sich diese Schwankungen auf einer langsamen Zeitskala im ms-Bereich bewegen, stören diese zwar nicht die kohärente Anregung, führen aber zu einer Verschie-

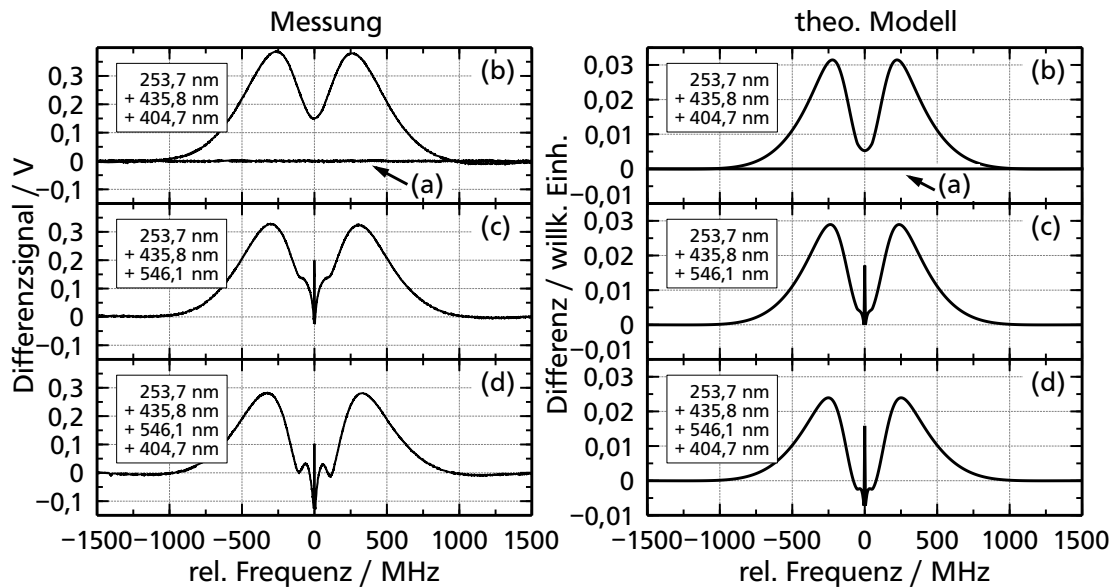


Abbildung 6.4: Vergleich der Differenzsignale aus Experiment (links) und theoretischem Modell (rechts). Die Spektren (a) entsprechen Laserkonfiguration 1, (b) Laserkonfiguration 2, (c) Laserkonfiguration 3 und (d) Laserkonfiguration 4.

bung der drei-Photonen Absorption wie sie auch in Abschnitt 6.1.2 beobachtet werden kann. Zusammen mit der langsamen Scangeschwindigkeit des Probenlasers führt dies zu einer Verbreiterung der gemessenen drei-Photonen Resonanz.

Abbildung 6.4 zeigt eine Gegenüberstellung der Differenzsignale aus Experiment und theoretischem Modell. Die gemessenen Daten sind aus Abb. 6.3 übernommen. Für die Differenzspektren des theoretischen Modells wurde die Differenz der Daten aus Proben- und Referenzstrahl aus Abb. B.1 gebildet, da für diese Modellberechnung zum Experiment äquivalente Parameter verwendet wurden. Entsprechend können die theoretisch berechneten Spektren aus Abbildung B.1 auch mit den gemessenen aus Abbildung 6.2 verglichen werden. Der Vergleich zeigt, dass das theoretischen Modell die gleichen Prozesse, wie z. B. die zwei-Photonen Absorption, wieder gibt, die bereits für die Messung diskutiert wurden. Die Ausprägung der Strukturen unterscheidet sich jedoch von den gemessenen Spektren. Ein weiterer Unterschied ist in der Breite der Strukturen bezüglich der Frequenzachse vorhanden. Hier sind die gemessenen Spektren gegenüber den berechneten verbreitert. Eine Ursache kann in den Strahlprofilen liegen, die im theoretischen Modell verwendet werden. Für diese wird eine gleichförmige Intensitätsverteilung angenommen. Daraus ergibt sich auch eine, bezüglich der wirkenden Rabi-Frequenzen, gleichförmige Überlagerungszone der Laserstrahlen. Die Überlagerungszone im Experiment weist jedoch, aufgrund der gaußförmigen Strahlprofile, eine räumlich komplexe Variation der Intensitäten der Kopplungslaser und somit auch de-

ren Rabifrequenzen auf. Dies kann zu einer Verbreiterung der gemessenen Strukturen führen.

Soweit dem Autor bekannt, ist dies die erste Messung einer kohärenten drei-Photonen Anregung in einer dopplerfreien Winkelkonfiguration. Ein ähnliches Experiment in [58] konnte in der dopplerfreien Konfiguration keine Veränderung der Absorption feststellen. Die hier vorgestellte kohärente Anregung ist auch nicht mit spektroskopischen Messungen wie in [168] zu vergleichen. Dort wird ein zwei-Niveau System mit drei Photonen aus zwei unabhängigen Lasern gekoppelt. Dabei geht es lediglich um eine Spektroskopie des Übergangs und nicht um eine kohärente Anregung. Dennoch wird auch in diesem Experiment die Wirksamkeit der dopplerfreien Winkelkonfiguration belegt.

In den folgenden Abschnitten werden die Eigenschaften der drei-Photonen Resonanz bezüglich der Laserparameter genauer untersucht.

6.1.1 Einfluss der Linienbreite der Kopplungslaser

Phänomene wie die elektromagnetisch induzierte Transparenz basieren auf einer kohärenten Kopplung von atomaren Zuständen durch ein optisches Feld [29]. Die Stärke der Phasenfluktuationen im Kopplungsfeld haben direkten Einfluss darauf, wie stark sich die atomare Kohärenz ausbilden und ob der Effekt überhaupt beobachtet werden kann [30]. Bei einem Laser als Kopplungsfeld ist dessen Linienbreite ein Maß für die Phasenfluktuationen [145, 146] und beeinflusst somit auch direkt die Möglichkeit einer kohärenten Anregung. Dieser Zusammenhang wurde bereits für ein EIT Experiment in einem einfachen Λ -Schema in Rubidium gezeigt [57, 169]. Für steigende Linienbreiten des Kopplungslasers wird die induzierte Transparenz im Medium immer schwächer, wobei die Linienbreite von 5 MHz bis zu 340 MHz variiert wurde. In diesem Rubidium-System sind die Wellenlängen von Kopplungs- und Probenlaser allerdings fast identisch und die effektive Dopplerbreite bei gegenläufiger Strahlführung liegt bei ca. 3 MHz, während die Rabifrequenz des Kopplungslasers bis zu 122 MHz beträgt. Somit kann sogar bei extrem großen Linienbreiten von mehreren MHz noch ein kleiner Effekt gemessen werden.

Die in dieser Arbeit vorgestellte drei-Photonen Resonanz in Quecksilber sollte entsprechend den in [28] vorgestellten Berechnungen bedeutend sensibler auf die Linienbreite der beteiligten Laser reagieren. Um diese Abhängigkeit zu prüfen, wurden die Linienbreiten beider Kopplungslaser variiert. Hierfür wird der Laserdiodenstrom über den schnellen Modulations-eingang der ECDL-Stromsteuerung mit weißem Rauschen moduliert. Wie schon in Abschnitt 3.5 gezeigt, führt dies zu einer Vergrößerung der Laserlinienbreite. Da am schnellen Modulations-eingang bereits das Signal der PDH-Stabilisierung anliegt, wird ein Mischer⁵⁸ verwendet, um zusätzlich das weiße Rauschen mit einer Bandbreite von 10 MHz aufmodulieren zu können. Die Linienbreite des Lasers steigt dabei mit der Signalamplitude des Rauschens. Die Linienbreiten beider Fundamentallaser unter dem Einfluss des weißen Rauschens werden wie in Kapitel 5 vorgestellt bestimmt. Für die frequenzverdoppelte Strahlung bei 435,8 nm

⁵⁸ZSC-2-2, Mini-Circuits

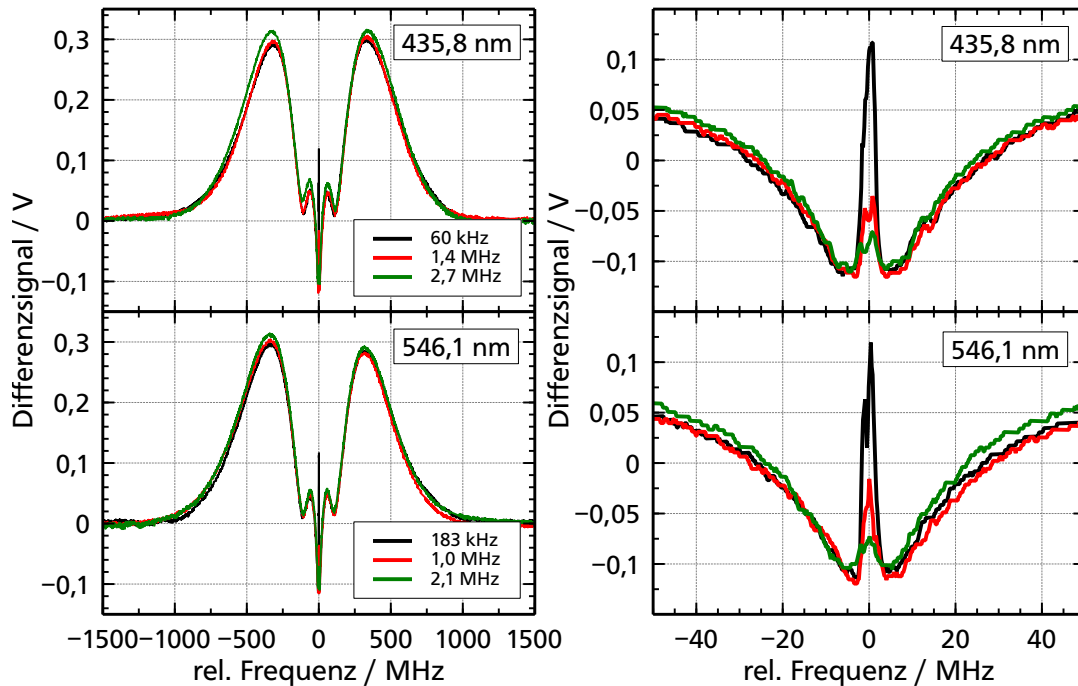


Abbildung 6.5: Differenzsignal für verschiedene Linienbreiten der Kopplungslaser. Links oben: Variation der Linienbreite des 435,8 nm Kopplungslasers von 60 kHz bis $\sim 2,7$ MHz. Links unten: Variation der Linienbreite des 546,1 nm Kopplungslasers von 183 kHz bis $\sim 2,1$ MHz. Rechts: Vergrößerte Darstellung der drei-Photonen Resonanz für die unterschiedlichen Linienbreiten, entsprechend der linken Spektren.

und 546,1 nm wird die Linienbreite mit Hilfe der experimentell gewonnenen Faktoren aus Tabelle 5.2 und 5.3 berechnet.

Für die gleichen Laserparameter wie in Abb. 6.3 (d) wurden je drei aufeinanderfolgende Messungen mit unterschiedlichen Linienbreiten der Kopplungslaser aufgenommen, wobei der erste Wert der Linienbreite ohne weißes Rauschen entspricht. Das Ergebnis ist in Abbildung 6.5 dargestellt, wobei in den oberen Graphen die Linienbreite des 435,8 nm Lasers und in den unteren Graphen die Linienbreite des 546,1 nm Lasers variiert wird. Der rechte Teil zeigt einen Ausschnitt von ± 50 MHz um die drei-Photonen Resonanz. Die Breite des 435,8 nm Lasers variiert dabei von 60 kHz bis $\sim 2,7$ MHz und die Breite des 546,1 nm Laser von 183 kHz bis $\sim 2,1$ MHz.

Der prinzipielle Verlauf des Differenzsignals wird durch die vergrößerte Linienbreite nicht beeinflusst, wie im linken Teil der Abbildung zu sehen ist. Die Ausprägung der drei-Photonen Resonanz nimmt mit steigender Linienbreite jedoch deutlich ab. Die Breite der drei-Photonen

Tabelle 6.3: Breite der drei-Photonen Resonanz in Abhängigkeit der Linienbreite der beiden Kopplungslaser.

Modulierter Laser	Linienbreite	Breite der Resonanz
435,8 nm	60 kHz	3,2 MHz
	~ 1,4 MHz	4,1 MHz
	~ 2,7 MHz	5,8 MHz
546,1 nm	183 kHz	3,3 MHz
	~ 1,0 MHz	2,9 MHz
	~ 2,1 MHz	4,5 MHz

Resonanz ist in Tabelle 6.3 aufgeführt und wurde durch die Anpassung einer Lorentz-Funktion an die zentralen 10 MHz des Differenzsignals bestimmt. Die Verbreiterung der Resonanz wird hauptsächlich durch Frequenzschwankungen der Kopplungslaser dominiert. Bei genauer Betrachtung der Resonanz ist eine Struktur mit teils mehreren ausgeprägten Spitzen zu erkennen. Diese entstehen wenn der Kopplungslaser in seiner Frequenz springt, während der Probenlaser über die Resonanz scannt. Erst für große Linienbreiten ist eine merkliche Verbreiterung der Resonanz festzustellen.

Die schnell fallende Amplitude der drei-Photonen Resonanz bei Vergrößerung der Linienbreite lässt auf einen kohärenten Prozess schließen, wie er in [27] und [28] beschrieben ist. Inkohärente Prozesse wie verstärkte Absorption durch THSE werden von der steigenden Linienbreite wie erwartet kaum beeinflusst.

6.1.2 Verstimmung der Kopplungslaser

Die Dopplerfreiheit der drei-Photonen Resonanz durch die Winkelanordnung der Laser ist das entscheidende Merkmal des untersuchten vier-Niveau Systems in Quecksilber. Entsprechend der theoretischen Betrachtung in [28] sollte die Resonanz auch gegenüber Verstimmungen der Kopplungslaser robust sein.

Die verbleibende Dopplerverschiebung $\Delta \nu_{3PR}$ der drei-Photonen Resonanz, die ein sich bewegendes Atom erfährt, berechnet sich zu

$$\Delta \nu_{3PR} = \Delta \nu_{253,7} + \Delta \nu_{435,8} - \Delta \nu_{546,1} - (\vec{k}_{253,7} + \vec{k}_{435,8} - \vec{k}_{546,1}) \cdot \vec{v} \quad (6.4)$$

mit den Verstimmungen $\Delta \nu_{\text{Wellenlänge}}$ der Laser, deren k-Vektoren $\vec{k}_{\text{Wellenlänge}}$ und dem Geschwindigkeitsvektor \vec{v} des Atoms [28]. Da sich für die verwendete Winkelanordnung $\vec{k}_{253,7} + \vec{k}_{435,8} - \vec{k}_{546,1} = 0$ ergibt, ist $\Delta \nu_{3PR}$ nur von den Verstimmungen der Laser abhän-

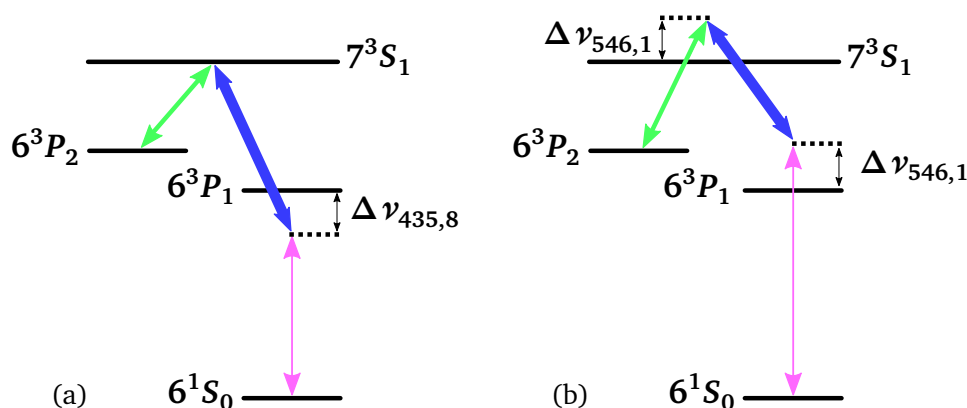


Abbildung 6.6: Kopplungsschemata der drei-Photonen Resonanz für blau verstimmete Kopplungslaser. (a) Verstimmung des 435,8 nm Lasers, (b) Verstimmung des 546,1 nm Lasers.

gig. Für eine positive Verstimmung $\Delta \nu_{435,8}$ des 435,8 nm Kopplungslasers verschiebt sich die Resonanz zu einer negativen Verstimmung des 253,7 nm Probenlasers, während eine positive Verstimmung $\Delta \nu_{546,1}$ des 546,1 nm Kopplungslasers, die Resonanz auch zu einer positiven Verstimmung des Probenlasers verschiebt. Wie sich diese zwei Fälle anhand des Niveauschemas visualisieren ist in Abb. 6.6 dargestellt.

Da die Frequenzstabilisierung nur eine gezielte Verschiebung von ± 6 MHz um die Zentralfrequenz des Übergangs zulässt, wurde für die Messung die Stabilisierung deaktiviert und der Laser „von Hand“ in seiner Frequenz verschoben. Die Verstimmung wurde mit dem Wellenlängenmessgerät bestimmt, wobei die relative Messgenauigkeit ± 20 MHz beträgt.

Eine entsprechende Messung für eine Verschiebung des 435,8 nm Kopplungslasers ist in Abbildung 6.7 zu sehen. Aufgetragen ist in Schwarz das Differenzsignal für Laserkonfiguration 4, in der beide Kopplungs- und der Rückpump Laser aktiv sind und in Rot für Laserkonfiguration 2, ohne 546,1 nm Kopplungslaser. Die Zentralfrequenz des $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergangs kann mit dem Absorptionssignal des Referenzstrahls bestimmt werden. Gemessen wurde bei drei verschiedenen Verstimmungen von $\Delta \nu_{435,8} = +80$ MHz, $+160$ MHz und $+480$ MHz. Wie erwartet verschiebt sich die drei-Photonen Resonanz invers zur Verstimmung des 435,8 nm Kopplungslasers. Selbst bei einer Verstimmung von $+480$ MHz ist in der vergrößerten Darstellung noch ein Resonanzpeak zu erkennen. Darüber hinaus weist die Resonanz mit steigender Verstimmung eine zunehmend asymmetrische bis dispersive Form auf. Dieses Verhalten ähnelt dem von drei-Niveau EIT Systemen für die der Kopplungslaser verstimmt wird und basiert auf der Asymmetrie der Autler-Townes Aufspaltung durch die Frequenzverstimmung des Kopplungslasers [170–173]. Für das vorliegende System ist vor allem das Zusammenspiel der inkohärenten THSE und der kohärenten drei-Photonen Anregung ursächlich für die Form des Resonanzsignals, ähnlich wie in [171] und [164] gezeigt. Die komplexe Form des Differenzsignals abseits der drei-Photonen Resonanz beruht auf den

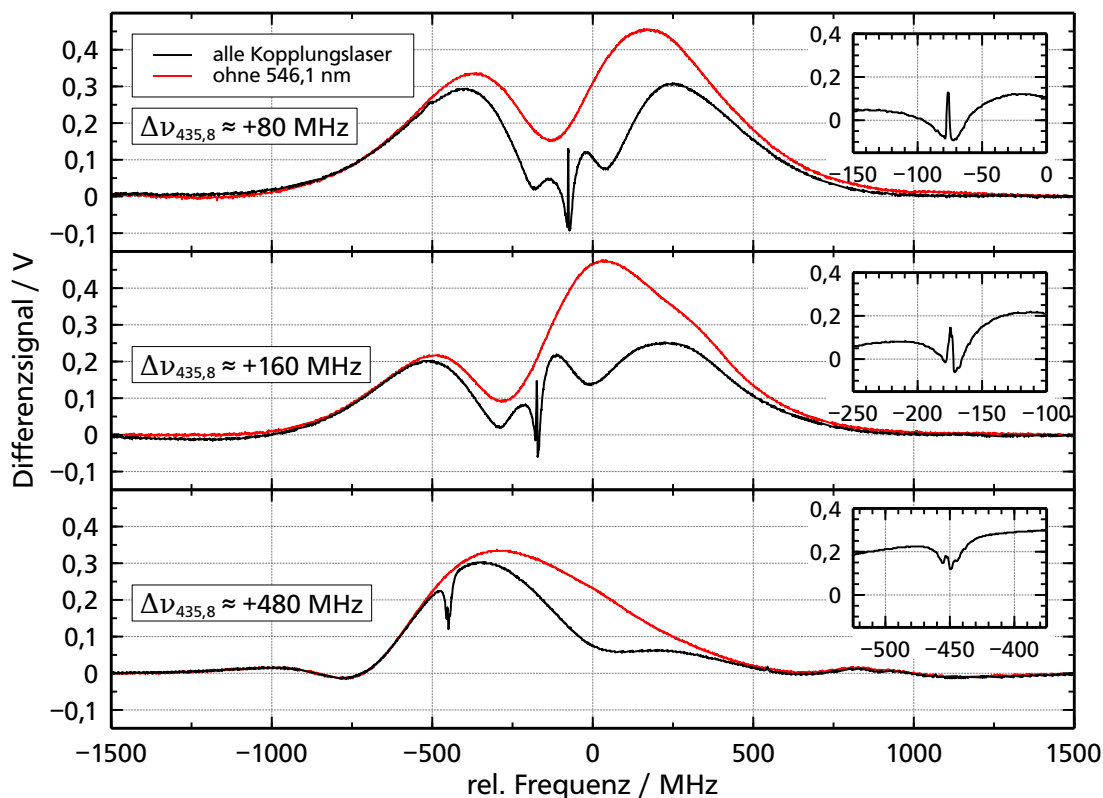


Abbildung 6.7: Differenzsignal für drei verschiedene Verstimmung des 435,8 nm Kopplungslasers, in Schwarz für Laserkonfiguration 4 und in Rot für Laserkonfiguration 2. Die Verstimmungen $\Delta\nu_{435,8}$ wurden mit einem Wellenlängenmessgerät bestimmt. Die Abweichungen zur drei-Photonen Resonanz liegen innerhalb der erreichbaren Messgenauigkeit.

inkohärenten Pumpeffekten wie TSE und THSE. Die - im Vergleich zum ungestörten atomaren System - verstärkte Absorption im Probenstrahl durch THSE nimmt mit steigender Verstimmung ab und ist ab $\Delta\nu_{435,8} \gtrsim 170$ MHz nicht mehr zu beobachten.

Wird der schwache 546,1 nm Kopplungslaser deaktiviert, ist der Einfluss der Verstimmung des starken Kopplungslasers immer noch deutlich zu erkennen. Auffällig ist dabei die Verschiebung des lokalen Minimums im Differenzsignal durch die inkohärente zwei-Photonen Absorption. Sie ist um einen Faktor von ca. 1,7 kleiner als die Verstimmung $\Delta\nu_{435,8}$. Die Ursache dieser Verschiebung ist Bestandteil künftiger Untersuchungen des vier-Niveau Schemas.

Analog zur vorangegangenen Messung wurde auch der schwache 546,1 nm Kopplungslaser in drei Schritten um $\Delta\nu_{546,1} = +80$ MHz, $+160$ MHz und $+300$ MHz von seiner zentralen Übergangsfrequenz verstimmt. Das Ergebnis ist in Abbildung 6.8 zu sehen. Die drei-Photonen

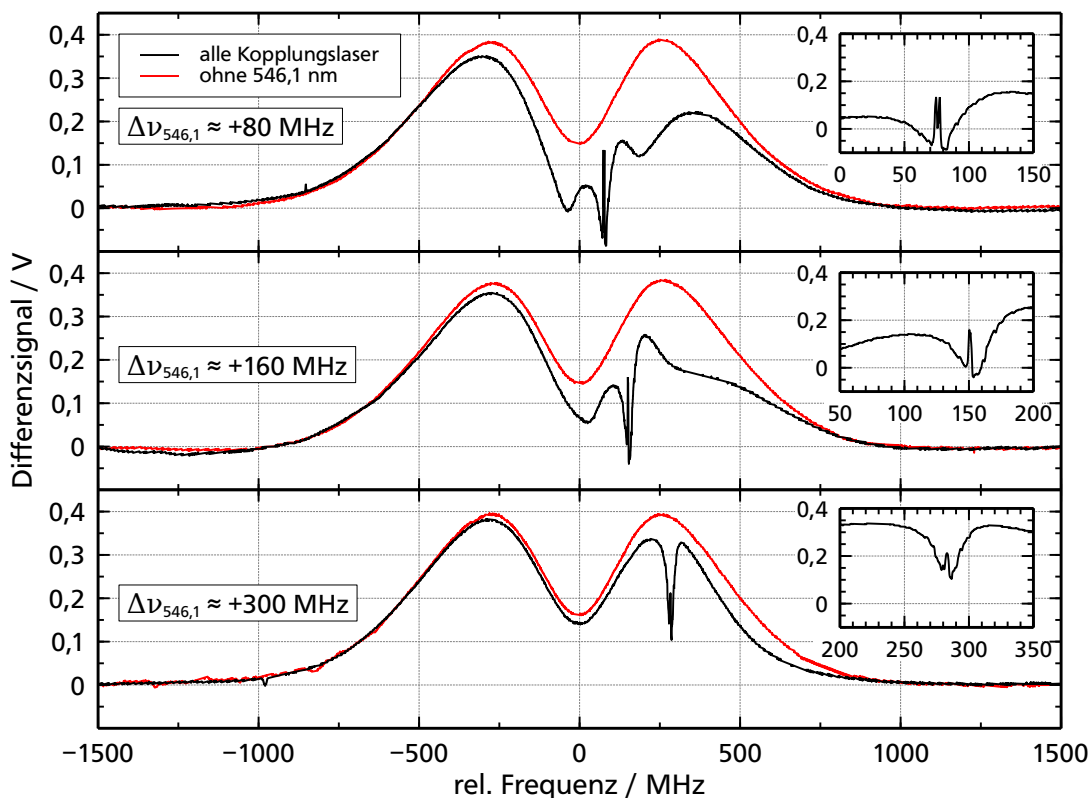


Abbildung 6.8: Differenzsignal für drei verschiedene Verstimmung des 546,1 nm Kopplungslasers, in Schwarz für Laserkonfiguration 4 und in Rot für Laserkonfiguration 2. Die Verstimnungen $\Delta \nu_{546,1}$ wurden mit einem Wellenlängenmessgerät bestimmt. Die Abweichungen zur drei-Photonen Resonanz liegen innerhalb der erreichbaren Messgenauigkeit.

Resonanz verschiebt sich entsprechend der Verstimmung $\Delta \nu_{546,1}$ in die gleiche Richtung, wie nach Gleichung (6.4) erwartet. Die dispersionsartige Form der Resonanz ist auch in diesem Fall vorhanden und begründet sich in gleicher Weise wie für die Verstimmung des 435,8 nm Kopplungslasers. Ebenso nimmt die verstärkte Absorption durch THSE mit zunehmender Verstimmung ab.

Ohne den 546,1 nm Kopplungslaser ergibt sich, aufgrund der gleichen Laserkonfiguration, jeweils ein zu Abb. 6.3 (b) identisches Differenzsignal. Ein Vergleich der beiden Differenzsignale mit und ohne 546,1 nm Kopplungslaser, für eine Verstimmung von $\Delta \nu_{546,1} = +300$ MHz zeigt, dass es im Zentrum des $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergangs nur einen geringen Unterschied in der Absorption gibt. Dieses Verhalten verdeutlicht, dass die verstärkte Absorption, wie sie in Abb. 6.3 (d) und für Verstimnungen $\Delta \nu_{546,1} < 170$ MHz auftritt, auf einem Zusammenwirken

von zwei- und drei-Stufen Anregung basiert.

Diese Messungen begründen die Abweichungen der Breite der gemessenen drei-Photonen Resonanz von der theoretisch erwarteten Breite. Die Resonanz verschwindet bei einer Verstimmung der Kopplungslaser aufgrund der Dopplerfreiheit nicht, sondern wird für den Probenlaser lediglich in der Frequenz verschoben. Dies hat zur Folge, dass jedwede Frequenzschwankung der beiden Kopplungslaser zu einer Verbreiterung der Resonanz führt. Besonders deutlich ist dies auch im vergrößerten Ausschnitt für $\Delta\nu_{546,1} = +80$ MHz in Abb. 6.8 zu sehen. Hier weist die drei-Photonen Resonanz eine Doppelstruktur auf, die durch einen Frequenzsprung einer der beiden Kopplungslaser auftrat, während der Probenstrahl langsam in der Frequenz verfahren wurde.

6.1.3 Zeemanaufspaltung

In den vorangegangenen Messungen wurden die Helmholtz-Spulen dazu verwendet, das Erdmagnetfeld im Bereich der Überlagerungszone der Laserstrahlen zu kompensieren und so einen magnetfeldfreien Raum zu schaffen. Hierdurch sind die Zeeman-Unterniveaus entartet und die unterschiedlichen Anregungswege der drei-Photonen Resonanz, wie sie in Abb. 2.11 zu sehen sind, ununterscheidbar. Durch ein starkes Magnetfeld können die Entartung aufgehoben und die Anregungswege separiert werden.

Hierfür wurde das Helmholtz-Spulenpaar, dessen Feldrichtung parallel zum Probenstrahl verläuft, verwendet. Die Magnetfeldstärke B_{max} im Zentrum des Helmholtz-Spulenpaars kann mit der Gleichung

$$B_{max} = \frac{\mu_0 I n}{(5/4)^{(3/2)} R} \quad (6.5)$$

berechnet werden, wobei μ_0 der magnetischen Induktionskonstanten, I der Stromstärke durch die Spulen, n der Windungszahl und R dem Spulenradius entspricht [174]. Mit einer Wicklungszahl von $n = 30$ und einem Spulenradius von $R = 45$ mm ergibt sich für einen Strom von $I = 2,5$ A eine Magnetfeldstärke $B_{max} = 1,42$ mT. Dies führt zu einer Zeemanverschiebung von 29,9 MHz für das 6^3P_1 und 6^3P_2 Niveau, sowie 42 MHz für das 7^3S_1 Niveau (berechnet nach Gleichung (3.1)). Die Anteile der Strahlen in Magnetfeldrichtung können dabei nur atomare Übergänge mit $\Delta m = \pm 1$ ansprechen [175, 176]. Da alle beteiligten Laser linear und senkrecht zur Magnetfeldrichtung polarisiert sind und sich die lineare Polarisation als Überlagerung von σ^- und σ^+ Komponenten ausdrücken lässt, werden Übergänge mit $\Delta m = \pm 1$ angeregt. Die Quantisierungsachse wird nicht mehr durch einen der drei Laser bestimmt, sondern ist nun durch das Magnetfeld vorgegeben [32, 176].

Eine entsprechende Messung für eine Magnetfeldstärke von 1,42 mT ist in Abbildung 6.9 dargestellt. In Rot ist das Differenzsignal für Laserkonfiguration 2, ohne den schwachen Kopplungslaser, und in Schwarz das Differenzsignal für Laserkonfiguration 4, mit allen Lasern, aufgetragen.

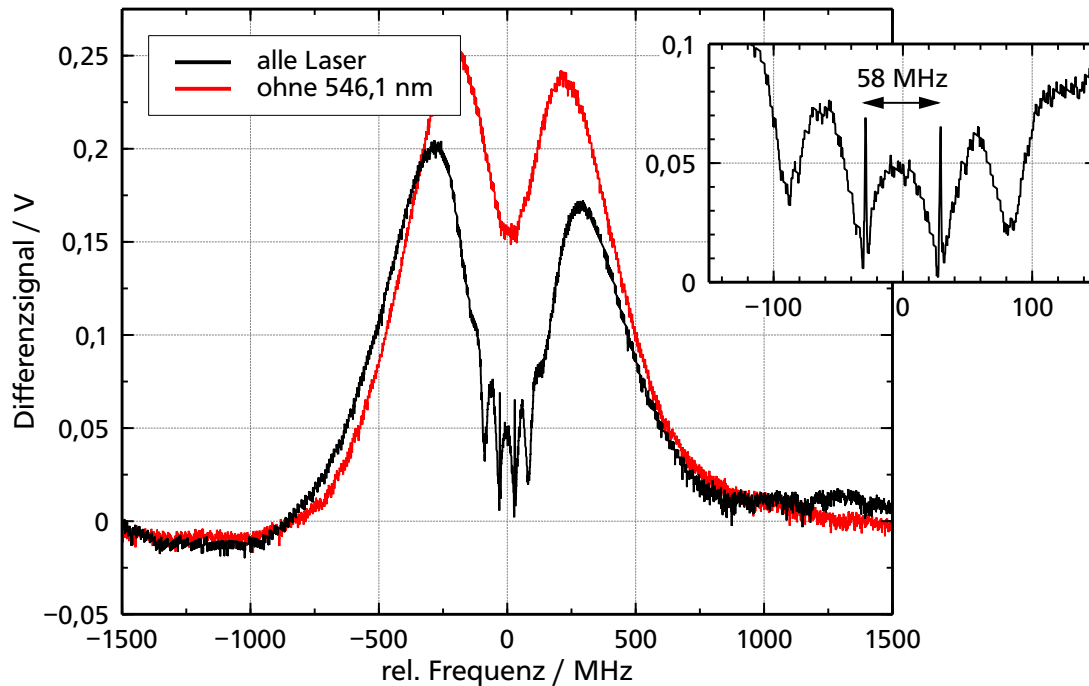


Abbildung 6.9: Differenzsignal unter dem Einfluss eines Magnetfelds in Richtung des Probenstrahls, in Schwarz für Laserkonfiguration 4 mit allen Lasern und in Rot für Laserkonfiguration 2 ohne den schwachen Kopplungslaser. Die Magnetfeldstärke beträgt 1,42 mT. Der Ausschnitt zeigt den zentralen Teil des Differenzsignals, in dem zwei Peaks der drei-Photonen Resonanz zu sehen sind. Diese sind um 58 MHz zueinander verschoben.

Der grundlegende Verlauf des Differenzsignals ohne den 546,1 nm Kopplungslaser unterscheidet sich kaum vom magnetfeldfreien Fall wie in Abb. 6.3 (b). Allerdings ist die auf TSE basierende Zunahme der Absorption im Zentrum des Übergangs weniger stark ausgeprägt. Sind beide Kopplungslaser aktiv, entstehen zwei schmale Peaks, die um 58 MHz zueinander verschoben sind. Die drei-Photonen Resonanz im Zentrum des Übergangs ist hingegen verschwunden. Darüber hinaus ist bei einer relativen Frequenzverschiebung von ca. ± 85 MHz eine Zunahme der Absorption zu erkennen.

Durch die Betrachtung des vier-Niveau Systems mit allen aufgespaltenen Zeeman-Unterniveaus, wie es in Abbildung 6.10 skizziert ist, wird deutlich wie diese Struktur entsteht.

Für die drei-Photonen Resonanz ist entscheidend, dass das 6^1S_0 Grundzustandsniveau mit dem 6^3P_2 Niveau gekoppelt wird, wie es auch im Fall der verstimmten Kopplungslaser in Abb. 6.6 dargestellt ist. Unter Beachtung der erlaubten Übergänge mit $\Delta m = \pm 1$ gibt es nur zwei Fälle, für die diese Bedingung erfüllt wird. Einer der beiden Fälle ist in Abb. 6.10 eingezeichnet.

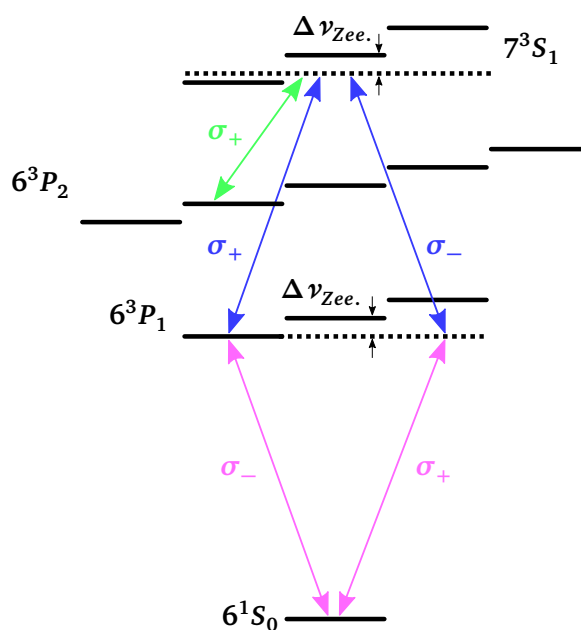


Abbildung 6.10: Das untersuchte vier-Niveau Schema mit allen Zeeman-Unterniveaus und der Zeemanverschiebung durch ein Magnetfeld. Aufgrund der zur Probenstrahlrichtung parallelen Magnetfeldrichtung sind nur Übergänge mit $\Delta m = \pm 1$ erlaubt. Das eingezeichnete Kopplungsschema ist eines der beiden möglichen Schemata, die das 6^1S_0 Grundzustandsniveau mit dem 6^3P_2 Niveau koppeln, wenn die 435,8 nm und 546,1 nm Laser weiterhin auf den ungestörten Übergang stabilisiert sind.

net. Die Verstimmung des Probenlasers entspricht dabei der negativen Zeemanverschiebung des 6^3P_1 bzw. 6^3P_2 Niveaus um die berechneten 29,9 MHz. Die Kopplung erfolgt somit auf das 6^3P_2 Unterniveau mit $m = -1$. Die zweite Möglichkeit ergibt sich, analog zur Ersten, für eine positive Verstimmung des Probenlasers um den Wert der Zeemanverschiebung und die Kopplung auf das 6^3P_2 Unterniveau mit $m = +1$. Die Kopplung auf eines der 6^3P_2 Unterniveaus mit $m = \pm 2; 0$ bedarf eines verbotenen Übergangs mit $\Delta m = 0$ für mindestens einen der beiden Kopplungslaser.

Die zwei Peaks in Abb. 6.9 entsprechen somit der verschobenen drei-Photonen Resonanz. Die gemessene Verstimmung beträgt dabei ± 29 MHz und liegt im Bereich der berechneten Verstimmung von 29,9 MHz. Bei genauer Betrachtung weisen beide Resonanzpeaks eine leicht asymmetrische Form auf, wie sie auch für eine Verstimmung der beiden Kopplungslaser in Abb. 6.7 und 6.8 auftritt. Die drei-Stufen Anregung führt wiederum zu einer Zunahme der Absorption im Bereich der drei-Photonen Resonanz. Diese ist jedoch nicht so groß, dass eine verstärkte Absorption auftritt. Die beiden äußeren „Täler“ bei einer relativen Frequenzverschiebung von ca. ± 85 MHz korrespondieren mit dem Verlauf wie er in Abbildung 6.3 (d) beim Übergang von drei- zu zwei-Stufen Anregung zu beobachten ist.

Die drei-Photonen Resonanz ist im Vergleich zum entarteten System weniger stark ausgeprägt, ebenso wie die drei-Stufen Anregung. Dies lässt sich mit der Zeemanverschiebung begründen. Im entarteten vier-Niveau System sind die möglichen Kopplungswege vom 6^1S_0 Grundzustand auf das 6^3P_2 Niveau überlagert und die drei-Photonen Resonanz kann als Superposition der Anregungswege verstanden werden [177]. Die Zeemanverschiebung separiert die Kopplungswege, so dass keine Superposition mehr stattfindet und die drei-Photonen Resonanz in entsprechend abgeschwächter Form auftritt.

Im Gegensatz zu einem starken Magnetfeld konnte die drei-Photonen Resonanz unter der Einwirkung des Erdmagnetfeldes nicht beobachtet werden. Das Erdmagnetfeld beträgt am Ort der Messung ca. $50 \mu\text{T}$ [178] und führt zu einer Zeemanaufspaltung der beteiligten Niveaus von etwa 1 MHz. Die Aufspaltung liegt somit unterhalb der natürlichen Linienbreite der atomaren Übergänge. Eine Verschiebung in dieser Größenordnung scheint zu einer destruktiven Überlagerung der Kopplungswege zu führen.

6.2 AWI-Konfiguration

In den vorangegangenen Abschnitten wurde gezeigt, dass mit den entwickelten Lasersystemen die kohärente Anregung einer drei-Photonen Resonanz in Quecksilber möglich ist. Im Folgenden wird nun untersucht, wie sich diese unter der Einwirkung einer Pumpe, gemäß des in [27] vorgestellten LWI-Schemas, verhält. Dies entspricht einer *amplification without inversion*-Konfiguration, da der 253,7 nm Probenlaser weiterhin verwendet wird. Ziel dieser Messungen ist es zu zeigen, dass eine Verstärkung des Probenstrahls im AWI-Schema möglich ist und welche Voraussetzungen dafür notwendig sind.

Der Pumpstrahl wird, wie in Abbildung 3.33 gezeigt, mit den anderen Laserstrahlen in der UHV-Zelle überlagert. Der Winkel zwischen Proben- und Pumpstrahl beträgt dabei ca. 5° , so dass beide Strahlen nach dem Durchgang der Zelle sauber getrennt werden können. Der Pumpstrahl wird anschließend in eine Strahlfalle geleitet. Dies schließt aus, dass Anteile des Pumpstrahls auf eine der beiden Differenzphotodioden treffen und so das Differenz- bzw. Transmissionssignal beeinflusst wird.

Da Proben- und Pumpstrahl den gleichen Ursprung besitzen, ist auch deren optische Frequenz identisch. Beim Verstimmen des Probenlasers über die Absorptionslinie wird somit auch der Pumpstrahl parallel dazu in seiner optischen Frequenz verschoben. Beiden Strahlen durchlaufen je einen AOM mit gleicher Zentralfrequenz und Frequenzverschiebung. Die Zentralfrequenz des AOM im Pumpstrahlengang wird mit weißem Rauschen mit einer Bandbreite von 10 MHz moduliert, um die Linienbreite des Pumplasers soweit zu vergrößern, dass dessen Anregung als inkohärent betrachtet werden kann [23, 136]. Eine Messung des Ausgangssignals des AOM-Treibers⁵⁹ mit einem elektrischen Spektrumanalysator ergab jedoch, dass der Treiber die Modulation nicht mit der vollen Bandbreite umsetzen konnte und nur eine Verbreiterung um ca. 0,5 MHz erreicht wurde. Die Pumpe kann somit nicht als inkohärent angesehen werden und ihre Effizienz wird geschwächt. Die genauen Auswirkungen werden in Abschnitt 6.2.3 diskutiert. Die Leistung des Pumpstrahls wird durch den AOM nicht stabilisiert, da möglichst viel Pumpleistung zur Verfügung stehen soll.

Die Polarisation des Pumpstrahls ist linear und parallel zur Polarisation des Probenstrahls. Somit spricht der Pumpstrahl den gleichen atomaren Übergang an wie der Probenstrahl und bietet die größtmögliche Pumpeffizienz.

Für eine gute Überlagerung des Pumpstrahls mit dem Probenstrahl innerhalb der UHV-Zelle wird der Pumpstrahl mit einem Zylinderlinsenteleskop elliptisch geformt. Die breitere Achse mit einer Länge von ca. 2,5 mm liegt parallel zur Tischebene, die kürzere Achse besitzt eine Länge von ca. 1,4 mm und steht senkrecht zur Tischebene. Die Überlagerung des Pumpstrahls mit dem Probenstrahl ist besonders kritisch, da an Stellen ohne Überlagerung der Probenstrahl wieder eine stärkere Absorption erfährt. Die elliptische Form hilft dabei die Überlagerung beider Strahlen zu vereinfachen und gleichzeitig eine möglichst hohe Intensität des Pumpstrahls zu gewährleisten.

Wie in Abschnitt 6.1 beschrieben, wurden für jede Messung vier Scanrampen mit jeweils unterschiedlichen Laserkonfigurationen aufgenommen. Für die folgenden Messungen sind dies, Laserkonfiguration 1 und 4, jeweils mit und ohne Pumpstrahl. Die verwendeten Laserparameter entsprechen denen aus Tabelle 6.1.

In Abbildung 6.11 ist eine Messung der drei-Photonen Resonanz gezeigt, für die der $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergang entsprechend der beschriebenen Konfiguration mit einer Leistung von 3 mW gepumpt wird. Die Form des Pumpstrahls besitzt in dieser Messung noch nicht die zuvor beschriebene elliptische Form, sondern ist gaußförmig mit einem Durchmesser von ca. 1,3 mm,

⁵⁹Agile RF synthesizer XRF421, MOG Laboratories Pty Ltd.

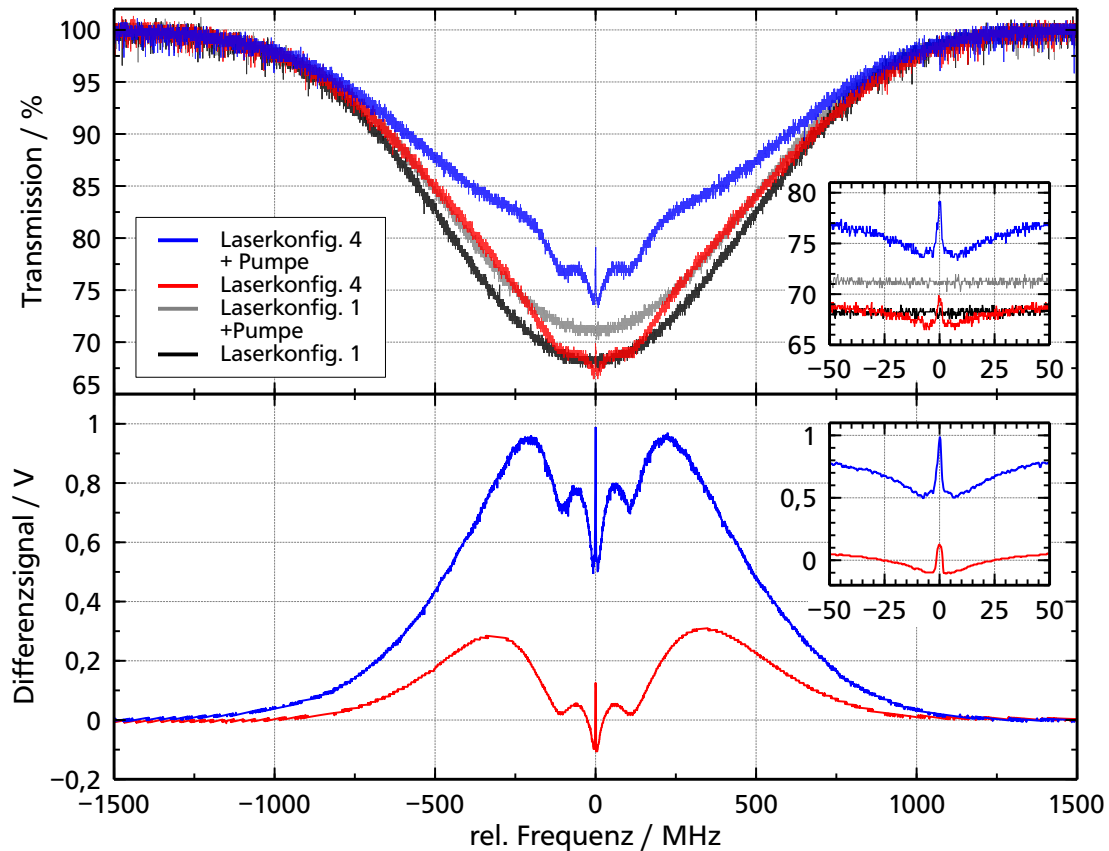


Abbildung 6.11: Transmissionspektren des Probenstrahls und zugehörige Differenzsignale, mit und ohne zusätzlicher Pumpe auf dem $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergang. In Schwarz ist die ungestörte Absorption des Probenstrahls für Laserkonfiguration 1 zu sehen. Mit Pumpstrahl verringert sich die Absorption wie im grauen Spektrum ersichtlich. Sind alle Kopplungs- und Rückpump-laser aktiv (Laserkonfiguration 4), ergibt sich ein deutlicher Transmissionsanstieg der drei-Photonen Resonanz bei aktiver Pumpe (blau). Die Ausschnitte zeigen einen Bereich von ± 50 MHz um die Resonanz.

da an dieser Stelle zuerst nur die Auswirkung der Pumpe gezeigt werden soll und noch keine Optimierung der Überlagerung erfolgte. Der Sättigungsparameter des Pumpstrahls beträgt für den gegebenen Durchmesser $S_0 = 22$.

Mit Laserkonfiguration 1, also ohne 436,8 nm Kopplungslaser, ist die ungestörte Absorption des Probenstrahls zu sehen (schwarze Linie). Der Pumpstrahl bewirkt in dieser Konfiguration eine einfache Sättigung des $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergangs (graue Linie). Da Pump- und Probenstrahl in die gleiche Richtung propagieren, ergibt sich lediglich eine erhöhte Transmission des Probenstrahls.

Werden, gemäß Laserkonfiguration 4, alle Kopplungs- und Rückpumpplaser aktiviert, kann sich die drei-Photonen Resonanz ausbilden (rote Linie). Für das Transmissions- und Differenzsignal ergeben sich die aus den Abbildungen 6.2 (d) bzw. 6.3 (d) bekannten Spektren. Wird für Laserkonfiguration 4 zusätzlich die Pumpe aktiviert, ergibt sich das in Blau dargestellte Transmissionsspektrum. Die Transmission des Probenstrahls ist deutlich erhöht, so dass keine verstärkte Absorption im Bereich der drei-Photonen Resonanz mehr auftritt. Im Differenzsignal ist erkennbar, dass der qualitative Transmissionsverlauf des Probenstrahls erhalten bleibt, die Strukturen jedoch ausgeprägter sind. Die zugrundeliegenden Effekte, wie sie in Abschnitt 6.1 beschrieben wurden, sind auch hier maßgebend. Die maximale Transmission der drei-Photonen Resonanz steigt durch die Pumpe von 70 % auf 79 % an.

6.2.1 Einfluss der Pumpleistung

Abbildung 6.11 zeigt, dass ein zusätzliches Pumpen des $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergangs zu einer Vergrößerung des Transmissionsmaximums der drei-Photonen Resonanz führt. Die verwendete Pumpleistung von 3 mW ist jedoch nicht ausreichend, um in den Bereich einer Verstärkung des Probenstrahls, sprich einer Transmission größer 100 % zu gelangen. Aus diesem Grund wird im Folgenden der Zusammenhang zwischen maximaler Transmission der drei-Photonen Resonanz und der Pumpleistung untersucht.

Mit dem vorgestellten experimentellen Aufbau war es möglich eine Pumpleistung von 20 mW zu erreichen. Um die Pumpleistung bei konstanter UV-Leistung aus dem Verdopplungsresonator weiter erhöhen zu können, wurde der Pumpstrahl noch vor dem Raumfilter durch eine Kombination aus $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte und Polarisationsstrahlteilerwürfel vom Probenstrahl separiert. Der Raumfilter sorgt für eine ungestörte Phasenfront des Probenstrahls und ist somit für die kohärente Anregung von Bedeutung, bewirkt allerdings einen Leistungsverlust von ca. 45 %. Da für den Pumpstrahl von einer inkohärenten Anregung ausgegangen wird, ist der Raumfilter für diesen nicht zwingend notwendig. Die so erreichbare Pumpleistung beträgt 45 mW. Der Umbau wirkt sich jedoch nachteilig auf die Leistungsstabilisierung des Probenstrahls aus, da für die *noise-eater* Funktion weniger optische Leistung als Puffer bereitsteht.

In Abbildung 6.12 ist eine Messung der Transmission des Probenstrahls mit verschiedenen Pumpleistungen dargestellt. Die Leistung des Probenstrahls wurde für diese Messung auf $15 \mu\text{W}$ eingestellt, um die Sättigung des $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergangs zu reduzieren. Diese Leistung entspricht einer Rabi-Frequenz des Probenstrahls von $\Omega/2\pi = 0,175 \text{ MHz}$ und einem Sättigungsparameter $S_0 = 0,60$. Zu jedem Transmissionsspektrum des Probenstrahls in Laserkonfiguration 4 mit Pumpstrahl ist auch das zugehörige Spektrum für Laserkonfiguration 1 aufgetragen. Bis zu einer Pumpleistung von 20 mW wird der Pumpstrahl wie in Abbildung 3.33 gezeigt, im ersten AOM vom Probenstrahl separiert. Für die Pumpleistung von 40 mW wird der Pumpstrahl, wie im vorhergehenden Absatz beschrieben, vor dem Raumfilter separiert. Das Leistungsrauschen des Probenstrahls ist für dieses Spektrum, entsprechend der

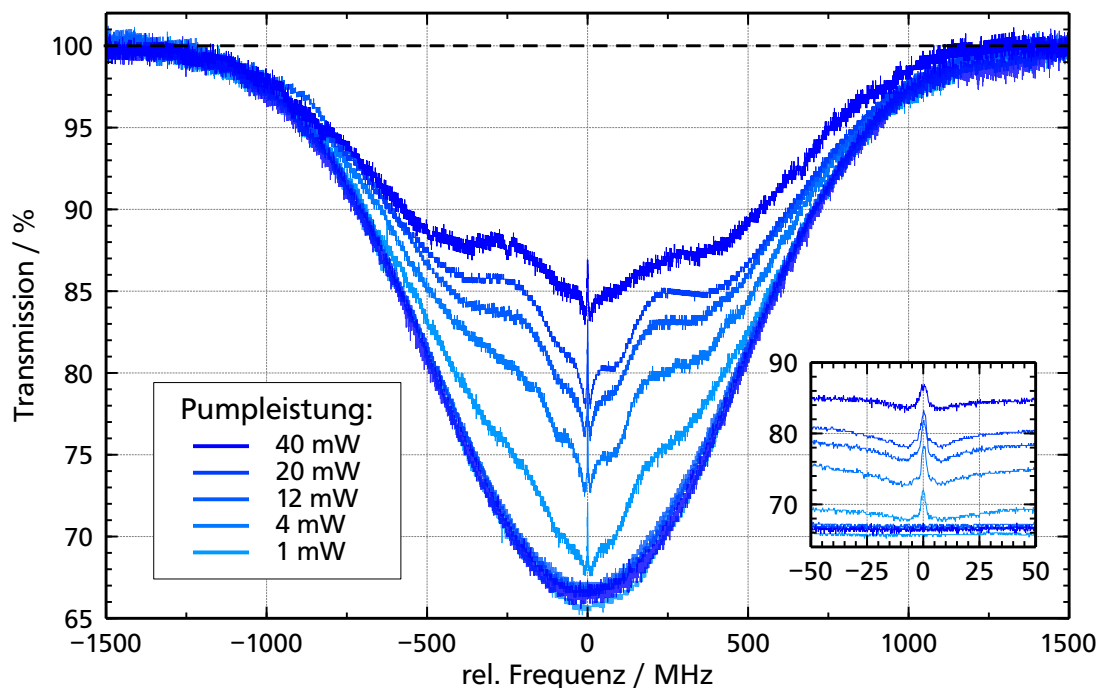


Abbildung 6.12: Transmission des Probenstrahls für verschiedene Leistungen des Pumpstrahls. Zu jeder Messung mit drei-Photonen Resonanz ist auch das Absorptionsspektrum des ungestörten, dopplerverbreiterten UV-Übergangs aufgetragen. Entscheidend ist die maximale Transmission der kohärenten Anregung, da nur dieser Resonanzpeak eine Transmission $> 100\%$ erreichen kann. Der Ausschnitt zeigt eine vergrößerte Darstellung des Frequenzbereichs von ± 50 MHz um die Resonanz.

schlechteren Leistungsstabilisierung, größer.

Die maximal erreichbare Transmission der drei-Photonen Resonanz beträgt in Abb. 6.12 86,9% bei einer Pumpleistung von 40 mW. Für diese Leistung ergibt sich nach Gleichung (6.1) eine Rabi-Frequenz des Pumplasers von ca. $\Omega_{\text{pumpe}}/2\pi \approx 2,6$ MHz, bei einem mittleren Strahldurchmesser von 1,95 mm. Die Rabi-Frequenz kann nach [23] in eine Pumprate r_p umgerechnet werden:

$$r_p = \frac{\Omega_{\text{pumpe}}^2}{\text{FWHM}_{\text{pumpe}}}, \quad (6.6)$$

mit der spektralen Breite der Pumpe $\text{FWHM}_{\text{pumpe}}$. Für $\text{FWHM}_{\text{pumpe}} = 0,5$ MHz ergibt sich eine Pumprate von $r_p/2\pi \approx 85$ MHz. Ein Vergleich mit den Ergebnissen des theoretischen Modells aus [28] zeigt, dass für die in dieser Messung verwendeten Laserparameter bereits

ab $r_p/2\pi > 3$ MHz eine Verstärkung des Probenstrahls (AWI) zu erwarten wäre.

Im theoretischen Modell aus [28] wird die inkohärente Pumpe mit unendlicher Frequenzbreite und somit gleichbleibender, frequenzunabhängiger Pumprate modelliert. Die Linienbreite der im Experiment eingesetzten Pumpe beträgt jedoch maximal 0,5 MHz und liegt somit weit unter der in Abschnitt 4.2 bestimmten Dopplerbreite des $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergangs von ca. 1018 MHz. Der Pump laser kann deshalb nur einen kleinen Anteil der Atome aus der vollen Geschwindigkeitsverteilung ansprechen. Da die drei-Photonen Kohärenz jedoch dopplerfrei ist, tragen Atome aller Geschwindigkeitsklassen zu dieser bei. Entsprechend müsste die Pumpe ebenso Atome aus allen Geschwindigkeitsklassen ansprechen können.

Der entscheidende Unterschied zum theoretischen Modell liegt somit in der Linienbreite der inkohärenten Pumpe.

6.2.2 Verschiebung der Pumpfrequenz

Um die Überlegungen des vorigen Abschnittes überprüfen zu können, müsste die spektrale Breite des Pumpstrahls weiter vergrößert werden. Dies ist mit dem verwendeten AOM-Treiber aber nicht realisierbar. Durch die verwendeten AOMs kann jedoch die Frequenz des Pumpstrahl relativ zum Probenstrahl derart verschoben werden, dass keine Überlappung der beiden Strahlen in der Frequenzdomäne mehr vorliegt.

Die rf-Bandbreite des AOM lässt eine Frequenzverstimmung Δ_{pp} des Pumpstrahls relativ zum Probenstrahl von bis zu 40 MHz⁶⁰ zu. Wird der AOM aus dem Strahlengang der Pumpe entfernt, ist eine relative Verstimmung von 200 MHz möglich. In diesem Fall besitzt der Pumpstrahl die gleiche Linienbreite wie der Probenstrahl.

Die in Abb. 6.13 dargestellte Messung zeigt den Einfluss einer Frequenzverstimmung des Pumpstrahls relativ zum Probenstrahl. Auf der linken Seite ist das Differenzsignal mit Pumpstrahl für drei Messreihen mit jeweils unterschiedlichen Verstimnungen von $\Delta_{pp} = 0$ MHz, +40 MHz und +200 MHz zu sehen. Die Pumpleistung beträgt 10 mW für die Verstimmung von 0 MHz und +40 MHz, sowie 15 mW für die Verstimmung von +200 MHz. Der Probenstrahl weist eine Leistung von 50 μ W auf.

Bei einer Verstimmung von 0 MHz ergibt sich das bereits aus Abschnitt 6.2 bekannte Differenzsignal. Für eine Frequenzverstimmung des Pumpstrahls von +40 MHz weist dieser in der Frequenzdomäne keine Überlappung mehr mit dem Probenstrahl auf. Dennoch ist ein starker Einfluss des Pumpstrahls vorhanden. Die Verstimmung Δ_{pp} spiegelt sich auch in der Asymmetrie des Differenzsignals wider. Da der Probenstrahl der Pumpe bei dem Frequenzscan über den $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergang um 40 MHz hinterher eilt, nimmt die Pumpeffizienz während des Frequenzscans von -1500 MHz bis -40 MHz zu und erreicht bei -40 MHz = Δ_{pp} ihr Maximum. Entsprechend nimmt die Pumpeffizienz im Bereich von -40 MHz bis 1500 MHz relativer Verstimmung des Probenlasers zum $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergang ab.

Bei einer Frequenzverstimmung des Pumpstrahls von 200 MHz ist weiterhin ein schwacher

⁶⁰Die rf-Bandbreite des AOM beträgt laut Datenblatt 60 MHz. Im Experiment konnte die Frequenz um bis zu 40 MHz relativ zur Zentralfrequenz des AOM von 200 MHz verschoben werden.

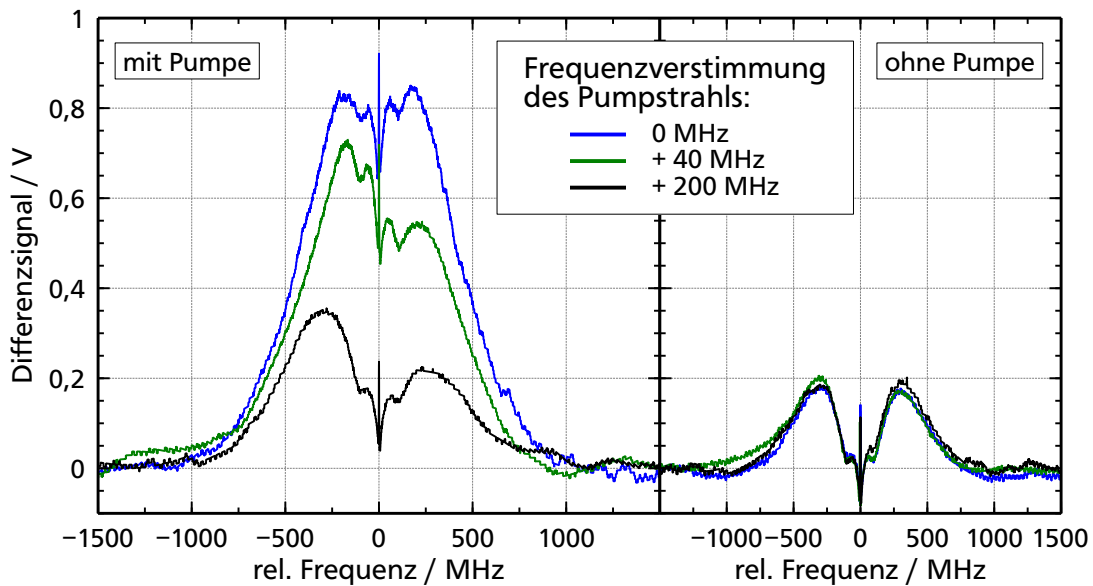


Abbildung 6.13: Links: Einfluss der relativen Frequenzverstimmung zwischen Pump- und Probenstrahl auf die Pumpeffizienz, dargestellt anhand des Differenzsignals für Verstimmungen von $\Delta_{pp} = 0$ MHz, +40 MHz und +200 MHz. Rechts: Zur jeweiligen Messreihe gehörendes Differenzsignal in Laserkonfiguration 4, ohne den Pumpstrahl.

Pumpeffekt vorhanden. Das Spektrum weist wiederum eine Asymmetrie aufgrund der Verstimmung zwischen Pump- und Probenstrahl auf. Der AOM im Strahlengang des Pumpstrahls wurde für diese Messreihe entfernt, die Linienbreiten von Pump- und Probenstrahl sind deshalb identisch. Trotzdem ist die drei-Photonen Resonanz für den Probenstrahl weiterhin vorhanden und wird nicht durch den schmalbandigen Pumpstrahl zerstört. Die Ursache liegt in der Winkelkonfiguration für die Dopplerverbreiterung der drei-Photonen Resonanz, die nur für den Probenstrahl ausgerichtet ist. Durch den Winkelversatz des Pumpstrahls von 5° ist im dopplerverbreiterten Medium keine kohärente Anregung mehr möglich, so dass die durch den Probenstrahl aufgebaute Kohärenz nicht beeinflusst wird.

Auf der rechten Seite von Abb. 6.13 sind die Differenzsignale der drei Messreihen in Laserkonfiguration 4, also ohne den Pumpstrahl, aufgetragen. Alle drei Spektren zeigen wie erwartet den aus Abschnitt 6.1 vorgestellten Verlauf.

Diese Messung unterstützt die Vermutung aus Abschnitt 6.2.1, dass die spektrale Breite des Pumpstrahls nicht ausreichend ist, um eine Verstärkung des Probenstrahl erreichen zu können.

6.2.3 Vergleich von theoretischem Modell und Experiment

Die Pumprate r_p des theoretischen Modells aus [28] wurde von Martin Sturm gemäß den aus Abschnitt 6.2.1 und 6.2.2 gewonnenen Erkenntnissen an die experimentellen Gegebenheiten angepasst. Die neue Pumprate r_{SP} berücksichtigt, dass die Pumpstrahlung zusammen mit dem Probenlaser über den atomaren Übergang verstimmt wird und durch ihre begrenzte spektrale Breite $\text{FWHM}_{\text{pumpe}}$ nur einen Teil der Atome im dopplerverbreiterten Spektrum anregen kann. Hierfür wird auch die genaue Richtung des Pumpstrahls durch dessen k-Vektor \vec{k}_{pumpe} beachtet. Die Gleichung der angepassten Pumprate hat die Form

$$r_{SP} = 2\Omega_{\text{pumpe}}^2 \frac{\Gamma/2 + \text{FWHM}_{\text{pumpe}}}{(\Gamma/2 + \text{FWHM}_{\text{pumpe}})^2 + (\Delta_{\text{pumpe}} - \vec{k}_{\text{pumpe}} \cdot \vec{v})^2}, \quad (6.7)$$

mit der Übergangswahrscheinlichkeit Γ , der Frequenzverstimmung Δ_{pumpe} des Pumpstrahls zum $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergang und dem Geschwindigkeitsvektor \vec{v} der Atome (relevant für die Integration über den Geschwindigkeitsraum im theoretischen Modell aus [28]). Die Ergebnisse aus dem angepassten theoretischen Modell werden im Folgenden mit den experimentell gewonnenen Werten verglichen.

Hierzu wird die maximale Transmission des drei-Photonen Resonanzpeaks in Abhängigkeit von der Pumpleistung aufgetragen. Dies wurde unter anderem für die Spektren aus Abb. 6.12 umgesetzt und ist in Abbildung 6.14 dargestellt. Hierbei sind die Werte aus zwei Messreihen aufgetragen. Für Messreihe M1 konnten bis zu 20 mW Pumpleistung erreicht werden. In Messreihe M2 wurde der Pumpstrahl, wie in Abschnitt 6.2.1 beschrieben, noch vor dem Raumfilter vom Probenstrahl separiert, so dass bis zu 45 mW Pumpleistung erreicht wurden. Da die UV-Leistung für höhere Werte schneller degradiert, steigt die Messunsicherheit der Pumpleistung entsprechend an. Zusätzlich ist zu jedem Messpunkt die ungestörte, maximale Absorption des Probenstrahls im Zentrum des atomaren Übergangs aufgetragen. Die Überlagerung von Pump- und Probenstrahl innerhalb der UHV-Zelle ist für die beiden Messreihen M1 und M2 nicht exakt identisch, da aufgrund des unterschiedlichen Pumpstrahlverlaufs eine Neujustage der Überlagerung notwendig war. Dies spiegelt sich in unterschiedlichen Transmissionswerten bei ansonsten gleicher Pumpleistung wider.

Die Daten des theoretischen Modells sind für vier verschiedene spektrale Breiten der Pumpe zwischen 0,2 MHz und 5 MHz, sowie für die ungestörte Absorption des Probenstrahls aufgetragen. Die diskreten Datenpunkte sind für eine bessere Darstellung des Verlaufs miteinander verbunden. Die Umrechnung der im theoretischen Modell verwendeten Rabi-Frequenz des Pumpstrahls Ω_{pumpe} in eine optische Leistung erfolgt gemäß Gleichung (6.1). Für die Anpassung der Daten des theoretischen Modells an die Messung wurde hierbei für den Pumpstrahl ein Durchmesser von $710 \mu\text{m}$ verwendet. Dieser ist um einen Faktor von ca. 2,7 kleiner als der tatsächlich im Experiment verwendete mittlere Strahldurchmesser. Im theoretischen Modell werden jedoch auch keine gaußförmigen Strahlprofile berücksichtigt, stattdessen wird eine gleichförmige Intensitätsverteilung des Strahlprofils angenommen. Darüber hinaus besitzt der Pumpstrahl im Experiment ein elliptisches Profil, was die Umrechnung zusätzlich

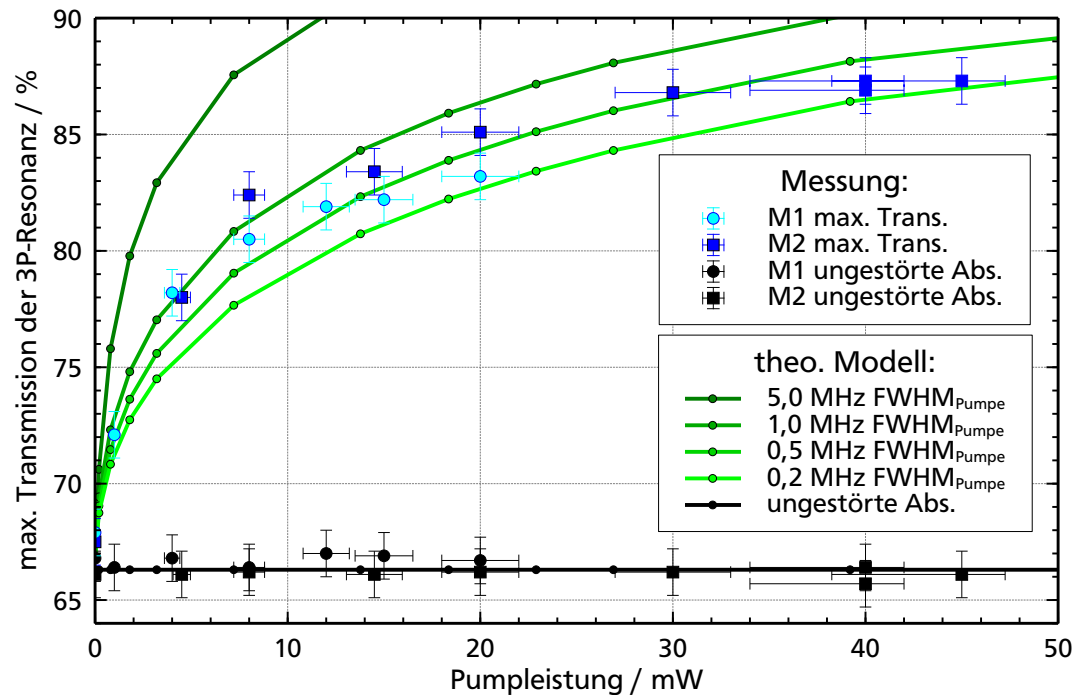


Abbildung 6.14: Maximale Transmission des Peaks der drei-Photonen Resonanz in Abhängigkeit der Pumpleistung für zwei verschiedene Messreihen (M1 und M2). Als schwarzes Symbol ist jeweils die zugehörige Absorption des Probenstrahls im Zentrum des ungestörten, dopplerverbreiterten Übergangs aufgetragen. Zum Vergleich sind die Daten des theoretischen Modells für vier spektrale Breiten der Pumpe dargestellt.

erschwert. Es sei deshalb angemerkt, dass das theoretische Modell an dieser Stelle vor allem den qualitativen Verlauf der Messdaten und die Abhängigkeit von der spektralen Breite der Pumpe widerspiegeln soll. Ein automatisierter Fit des Modells an die Daten war aufgrund der hohen Rechendauer und dem großen Parametersatz während dieser Arbeit nicht möglich. Die Transmission der drei-Photonen Resonanz zeigt im theoretischen Modell wie erwartet eine starke Abhängigkeit von der spektralen Breite der Pumpe. Mess- und Modelldaten weisen dabei, für ähnliche Werte der spektralen Breite der Pumpe $\text{FWHM}_{\text{pumpe}}$, einen vergleichbaren Verlauf auf.

Das gesamte Spektrum der in Abb. 6.14 nach dem theoretischen Modell berechneten Datenpunkte für $\text{FWHM}_{\text{pumpe}} = 0,5 \text{ MHz}$ ist in Abbildung 6.15 für drei Pumpleistungen dargestellt und gemessenen Spektren bei ähnlichen Pumpleistungen gegenübergestellt. Die gemessenen Spektren entstammen der Messreihe M1. Während die maximale Transmission des Peaks der drei-Photonen Resonanz ähnliche Werte besitzt, unterscheidet sich der Verlauf im Bereich

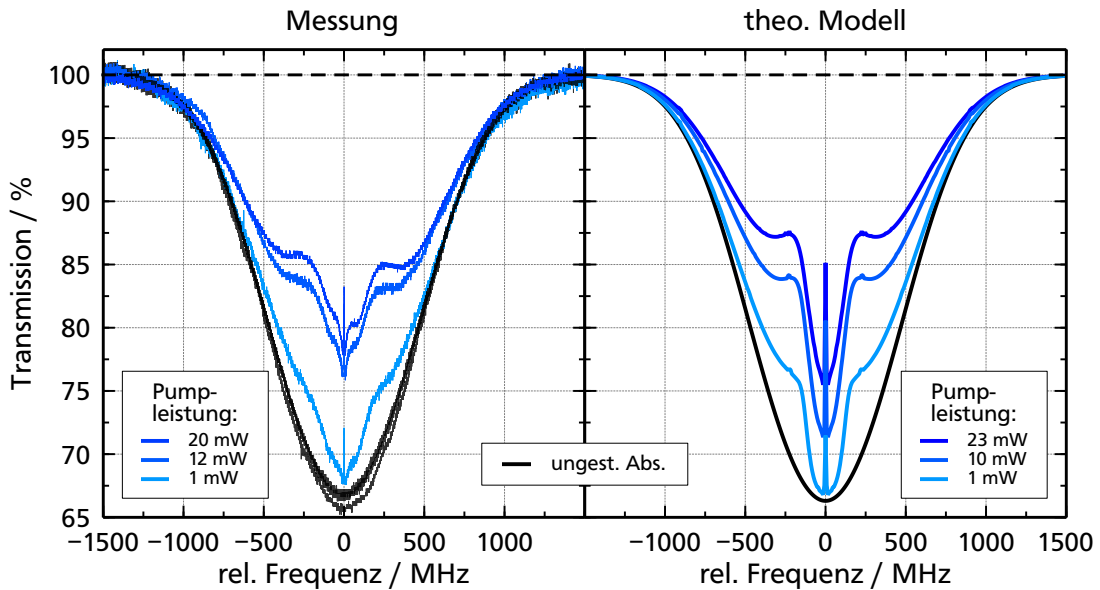


Abbildung 6.15: Vergleich der Absorptionsspektren aus Experiment (rechts) und theoretischem Modell (links), in Laserkonfiguration 4 Pumpe für jeweils drei verschiedene Pumpleistungen. In Schwarz ist zusätzlich die ungestörte, dopplerverbreiterte Absorption des Probenstrahls dargestellt.

um die Resonanz. Hier weisen die Spektren der Modellrechnung eine stärkere Absorption auf, während der weitere Verlauf wieder mit dem der gemessenen Spektren übereinstimmt. Die Ursache dieser Diskrepanz zwischen Modell und Experiment konnte während dieser Arbeit nicht bestimmt werden und ist Teil weiterer Untersuchungen.

In Abbildung 6.16 wurde die mit dem theoretischen Modell berechnete Absorption der drei-Photonen Resonanz bei gleichbleibender Pumpleistung in Abhängigkeit von der spektralen Breite $\text{FWHM}_{\text{pumpe}}$ aufgetragen. Die Umrechnung der Pumprabifrequenzen in eine optische Leistung erfolgte mit den aus Abb. 6.14 gewonnenen Parametern. Die Daten des theoretischen Modells zeigen, dass es ein optimales Verhältnis zwischen der Leistung und spektralen Breite der Pumpe zu geben scheint, ab der *amplification without inversion* möglich ist. Bei einer spektral schmalen Pumpe mit $\text{FWHM}_{\text{pumpe}} \lesssim 70 \text{ MHz}$ ist mit den im theoretischen Modell verwendeten Parametern auch für eine Pumpleistung von 180 mW keine Verstärkung des Probenstrahls zu erreichen. Erst für $\text{FWHM}_{\text{pumpe}} \gtrsim 70 \text{ MHz}$ und einer Pumpleistung von $> 80 \text{ mW}$ ist AWI zu erwarten.

Nimmt die spektrale Breite bei gleichbleibender Pumpleistung zu, nimmt entsprechend die Spitzenleistung der Pumpe ab. Deshalb ist für größer werdende spektrale Breiten auch eine höhere Pumpleistung notwendig, um Verstärkung zu erreichen.

Für die experimentelle Umsetzung ist es demnach essenziell, die spektrale Breite der Pumpe zu vergrößern, um AWI in Quecksilber erzeugen zu können.

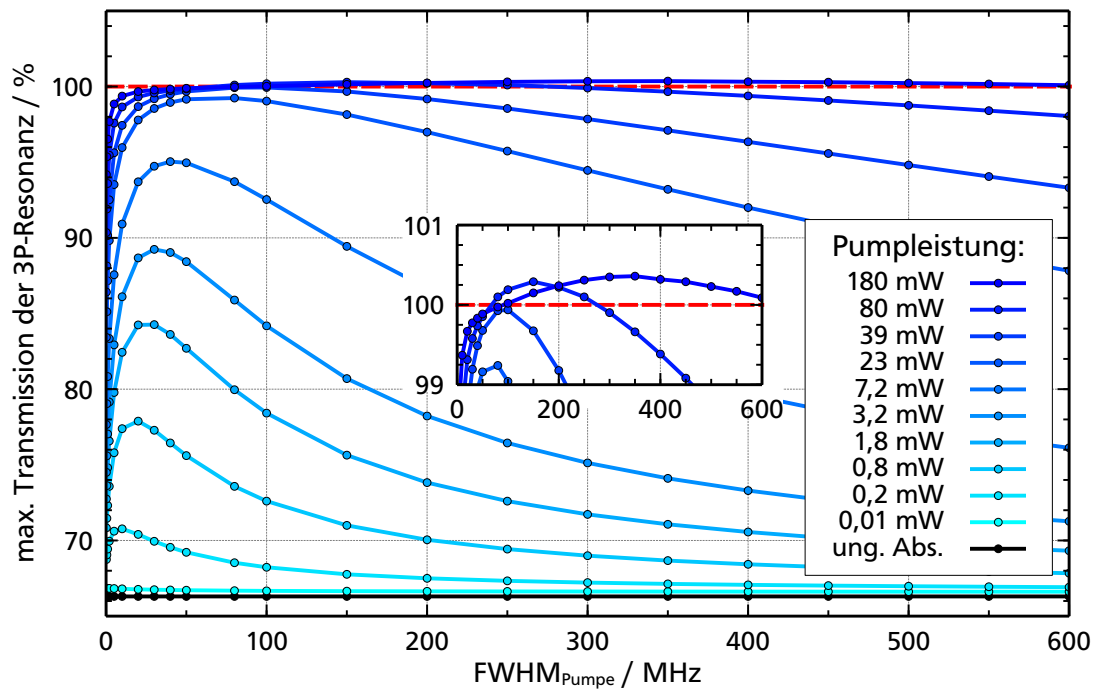


Abbildung 6.16: Maximale Transmission der drei-Photonen Kohärenz in Abhängigkeit der spektralen Breite $\text{FWHM}_{\text{pumpe}}$ für verschiedene Pumpleistungen, berechnet mit dem theoretischen Modell. Der Ausschnitt zeigt eine vergrößerte Darstellung des Bereichs positiver Transmission, in dem für die Pumpleistungen von 80 mW und 180 mW AWI auftritt.

7 Zusammenfassung und Ausblick

7.1 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde ein vier-Niveau LWI-System in Quecksilber auf seine experimentelle Realisierbarkeit hin überprüft. Dieses LWI-System basiert auf der ursprünglichen Idee von Fry *et al.* [27] und besitzt das Potential erstmals cw-Laserstrahlung im UV-Bereich durch *lasing without inversion* zu erzeugen, wobei die Wellenlängen der Kopplungslaser für die kohärente Anregung im sichtbaren Spektralbereich liegen und somit ein Gewinn bezüglich der Laserwellenlänge erzielt werden kann.

Die Besonderheit des vier-Niveau Systems liegt in der Möglichkeit die Dopplerverbreiterung durch eine geschickte geometrische Winkelordnung der Kopplungslaser zu kompensieren und so die bis dato größte Einschränkung für *lasing without inversion* bei kurzen Wellenlängen zu umgehen.

Ein von M. Sturm entwickeltes, äußerst detailliertes und an die experimentellen Gegebenheiten angepasstes theoretisches Modell [28] machte es dabei möglich, die im Experiment gewonnenen Ergebnisse mit den theoretischen Vorhersagen zu vergleichen und deren Ursprünge zu verifizieren. Dies setzte eine exakte Kenntnis der Laserparameter voraus, die durch umfangreiche Charakterisierungsmessungen, unter anderem der Linienbreiten, gewonnen wurden.

Die wichtigsten Ergebnisse dieser Arbeit lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Die spektralen Eigenschaften der drei entwickelten Lasersysteme bei 404,7 nm, 435,8 nm und 546,1 nm entsprechen den Anforderungen, um im Rahmen der Vorhersagen des theoretischen Modells LWI in Quecksilber bei 253,7 nm zu ermöglichen.
- Mit einem selbst-heterodynen Messverfahren war es möglich die Linienbreite eines Lasers und seiner frequenzverdoppelten Strahlung miteinander zu vergleichen. Dabei zeigte sich, dass bei der Frequenzverdopplung in einem Resonator nicht generell von einer Verdopplung der Linienbreite ausgegangen werden sollte. Für einzelne Rauschanteile wurde ein Anwachsen der Linienbreite um bis zu einem Faktor > 3 gemessen.
- Es wurde erstmals eine kohärente, durch geometrische Winkelordnung der Kopplungslaser, dopplerfreie drei-Photonen Resonanz in einem atomaren vier-Niveau System in Quecksilberdampf nahe Raumtemperatur gemessen.
- Erste Messungen in AWI-Konfiguration machten es möglich, den Einfluss der spektralen Eigenschaften der inkohärenten Pumpe zu analysieren und so die für LWI in Quecksilber bei 253,7 nm notwendigen Bedingungen konkret zu bestimmen.

Das LWI-System in Quecksilber stellt hohe Anforderungen an die spektralen Eigenschaften der Anregungslaser. Um diesen gerecht zu werden kommen gitterstabilisierte Diodenlaser zum Einsatz, die durch ihre schmale Linienbreite, Leistungsstabilität und große spektrale Abstimmbarkeit optimal geeignet sind:

404,7 nm: Ein ECDL in Littrow Anordnung liefert direkt die Wellenlänge von 404,7 nm. Eine Amplitudenmodulation des Laserdiodenstroms mit weißem Rauschen ermöglicht es die Spektrale Breite des Lasers auf bis zu 70 MHz zu vergrößern, so dass die Strahlung als inkohärente Pumpe verwendet werden kann. Die Frequenz der Laserstrahlung wird durch eine dichroitische Spektroskopie auf den $6^3P_0 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergang in Quecksilber stabilisiert. Nach dem Transport durch eine polarisationserhaltende Faser steht eine Leistung von 4,85 mW zur Verfügung.

435,8 nm: Ein ECDL in Littrow Anordnung liefert eine Wellenlänge von 871,6 nm, die in einem *tapered amplifier* auf bis zu 1,5 W optischer Leistung verstärkt wird. Die Frequenz dieser Fundamentalstrahlung wird in einem Kaliumniobat-Kristall verdoppelt. Der Kristall befindet sich in einem Ring-Resonator, der zur Leistungsüberhöhung der Fundamentalstrahlung dient. So können bis zu 224 mW bei 435,8 nm erzeugt werden. Die Frequenz des Systems wird durch eine Polarisationspektroskopie auf bis zu 480 kHz genau stabilisiert. Die Linienbreite der Laserstrahlung beträgt dabei 59,9 kHz gemessen mit einer Verzögerungsstrecke von 2,06 μs .

546,1 nm: Ein ECDL in Littrow Anordnung liefert eine Wellenlänge von 1092,2 nm bei einer Leistung von 138 mW. Diese Fundamentalstrahlung wird in einem Lithiumniobat-Kristall frequenzverdoppelt. Der Kristall befindet sich in einem Ring-Resonator, der zur Leistungsüberhöhung der Fundamentalstrahlung dient. So können bis zu 6,35 mW bei 546,1 nm erzeugt werden. Die Frequenz des Systems wird durch eine Polarisationspektroskopie auf bis zu 493 kHz genau stabilisiert. Die Linienbreite der Laserstrahlung beträgt dabei 183 kHz gemessen mit einer Verzögerungsstrecke von 2,06 μs .

Für die Bestimmung der Linienbreiten wurde ein selbst-heterodynes Messverfahren verwendet. Die Fundamentalstrahlungen bei 871,6 nm und 1092,2 nm konnten mit vier unterschiedlichen Verzögerungszeiten vermessen werden, wobei durch eine Anpassung des Programms von T. Führer [68] die Abhängigkeit des $1/f$ -Rauschanteils von der Verzögerungszeit bestimmt werden konnte. Darüber hinaus konnten auch die Linienbreiten der Strahlung bei 435,8 nm und 546,1 nm vermessen werden. Dabei zeigte sich, dass sich die Linienbreite bei einer Frequenzverdopplung in einem Resonator mehr als verdoppeln kann.

Die Überlagerung der Laserstrahlen zur Erzeugung der drei-Photonen Resonanz erfolgte in einer keilförmigen UHV-Zelle, die an eine Vakuumkammer mit temperaturstabilisiertem Quecksilberreservoir angeschlossen ist. Hierdurch konnte zum einen die optische Dichte des Quecksilberdampfs in der Zelle und somit vor allem die Absorption bei 253,7 nm geregelt werden. Zum anderen konnten durch den besonderen Herstellungsprozess der Zelle sowohl die Innenseiten als auch die Außenseiten der Zellenfenster AR-beschichtet werden.

Mit einem Probenlaser bei 253,7 nm war es schließlich möglich erstmals eine kohärente drei-Photonen Anregung in einer dopplerfreien Winkelkonfiguration der Laserstrahlen nachzuweisen. Hierbei zeigte sich, dass es zu einer Überlagerung von kohärenten und inkohärenten Effekten kommt, die zunächst nicht erwartet wurden, aber mit dem erweiterten theoretischen Modell erklärt werden konnten. Die kohärente Natur der drei-Photonen Resonanz konnte durch eine Vergrößerung der Linienbreite der Kopplungslaser bestätigt werden. Auch die Auswirkung einer Verstimmung der Kopplungslaser stimmt mit den theoretischen Berechnungen überein. Mit einem starken Magnetfeld war es schließlich möglich, auf Grund der Zeemanaufspaltung der atomaren Niveaus, die Anregungswege der drei-Photonen Resonanz innerhalb der Zeemanunter-niveaus zu beobachten.

Der Großteil der 253,7 nm Strahlung konnte als inkohärente Pumpe für erste AWI Messungen verwendet werden. Zur Vergrößerung der spektralen Breite wird die Strahlung durch einen AOM geleitet, dessen Zentralfrequenz mit weißem Rauschen moduliert wird. Allerdings zeigte sich, dass die Bandbreite des AOM-Treibers nicht ausreicht, um das weiße Rauschen in seinem vollen Frequenzumfang umzusetzen. So konnte bei einer Pumpleistung von 40 mW eine maximale Erhöhung der Transmission von 66,4 % im ungestörten System auf 86,9 % in AWI-Konfiguration erreicht werden. Eine Verschiebung der Pumpfrequenz gegenüber der Frequenz des Probenstrahls machte deutlich, welchen Einfluss die spektrale Breite der inkohärenten Pumpe auf deren Effizienz hat. Auf Grund der dopplerfreien Konfiguration muss die Pumpe spektral breit sein, um Atome so vieler Geschwindigkeitsklassen wie möglich ansprechen zu können. Eine Erweiterung des theoretischen Modells, um die spektrale Breite und Richtung des Pumpstrahls zu berücksichtigen, bestätigt diese Vermutung. Hierdurch ist es möglich konkrete Anforderungen an die spektralen Eigenschaften der inkohärenten Pumpe zu stellen, damit AWI möglich ist.

Es zeigt sich, dass das in dieser Arbeit entwickelte Gesamtsystem das Potential besitzt erste Messungen von LWI in Quecksilber bei Wellenlängen im UV-Bereich zu ermöglichen.

7.2 Ausblick

Abschließend wird noch diskutiert, welche Weiterentwicklungen an den aufgebauten Systemen möglich sind, um dem Ziel von LWI in Quecksilber näher zu kommen. Darüber hinaus wird das weitere Potential von LWI in vier-Niveau Systemen anhand zweier konkreter Beispiele dargestellt.

Die Messungen stellen deutlich heraus, wie wichtig eine kleine Linienbreite und eine stabile Frequenz der Kopplungslaser ist. Von einer zusätzlichen Stabilisierung der einzelnen Lasersysteme auf einen extrem stabilen Resonator mit hoher Finesse können beide Eigenschaften profitieren [179]. Auch wenn ein solcher Resonator an sich eine hohe Frequenzstabilität aufweist, ist es dennoch möglich den Resonator selbst auf den spezifischen atomaren Übergang in Quecksilber zu stabilisieren. Der jeweilige Laser wird sodann auf den Resonator stabilisiert. Dies ermöglicht Linienbreiten im Bereich weniger Hertz und Frequenzdrifts im Bereich weniger Hz/s [180–182].

Der wichtigste Faktor auf dem Weg zu LWI in Quecksilber ist die spektrale Breite und Leistung der inkohärenten Pumpe auf dem $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergang bei 253,7 nm. Da kein kommerziell erhältlicher AOM-Treiber die benötigte Bandbreite aufweist, ist es notwendig die Ansteuerung selbst zu entwickeln. Angelehnt an [136] soll der Treiber aus diskreten Bauteilen aufgebaut werden. Ein *frequency to voltage converter* (VCO) setzt hierbei das weiße Amplitudenrauschen eines Frequenzgenerators mit *white noise* Funktion in ein Frequenzrauschen um. Durch einen Mischer und zweiten VCO als Lokoszillator wird die Zentralfrequenz des weißen Frequenzrauschens an die Zentralfrequenz des AOM angepasst und anschließend verstärkt. Erste Versuche mit konkreten Bauteilen⁶¹ haben gezeigt, dass mit einfachen Mitteln bereits eine Halbwertsbreite von bis zu 80 MHz möglich ist.

Als letzter Schritt, damit das LWI-Schema wirklich als gewinnbringend anzusehen ist, muss der als inkohärente Pumpe verwendete, spektral verbreiterte Laser durch eine Lampe ersetzt werden. Hierfür bieten sich Quecksilber Niederdruckdampflampen an, die als Linienstrahler fast ausschließlich bei 253,7 nm emittieren [183]. Für diese Lampen sind jedoch maximal optische Leistungsdichten von 2 W/cm^2 zu erwarten. Durch die zumeist länglichen Bauformen als Stablampen sind zwar Gesamtleistungen von über 100 W erreichbar, die jedoch ungerichtet abgestrahlt werden. Deshalb ist es notwendig eine Pumpkammer zu entwerfen, so dass das von der Lampe abgestrahlte Licht in der Überlagerungszone der Kopplungslaser gebündelt und die notwendige Leistungsdichte für LWI erreicht wird. Da der Entwurf einer solchen Pumpkammer jedoch sehr aufwändig ist, muss zunächst mit dem vorhandenen Laser als inkohärente Pumpe die erforderliche optische Leistung bestimmt werden.

Wenn es gelingt die technische Realisierbarkeit von LWI in vier-Niveau Systemen zu demonstrieren, existieren bereits alternative Systeme mit denen Wellenlängen im VUV-Bereich erreicht werden können.

Eines dieser Systeme ist ebenfalls in Quecksilber zugänglich und in Abbildung 7.1 (a) dargestellt [27]. Hierbei liegt die Wellenlänge des starken Kopplungslasers bei 434,8 nm und die des schwachen Kopplungslasers bei 302,8 nm. Der eigentliche LWI-Laserübergang entspricht dem zweiten Grundzustandsübergang $6^1S_0 \leftrightarrow 6^1P_1$ bei einer VUV-Wellenlänge von 185,0 nm. Die Wellenlänge bei 434,8 nm kann hierbei durch das in dieser Arbeit vorgestellte System bei 435,8 nm mittels Verstimmung des ECDL erfolgen und ist somit direkt zugänglich. Für den schwachen Kopplungslaser kann die Wellenlänge bei 302,8 nm durch Summenfrequenzerzeugung der Wellenlängen von 514 nm und 737 nm bereit gestellt werden, wobei die beiden letztgenannten Wellenlängen durch Frequenzverdopplung, wie in [131] vorgestellt bzw. als ECDL mit anschließendem Trapezverstärker erzeugt werden können. Auch in diesem System kann eine Quecksilber Niederdruckdampflampe als inkohärente Pumpe verwendet werden, deren zweitstärkste Linie bei 185,0 nm mit entsprechend durchlässigem Glas (z. B. UV - *fused silica*) zugänglich ist.

Ein weiteres vier-Niveau Schema in Krypton ist in Abbildung 7.1 (b) dargestellt und wird in [184] ausführlich behandelt. Die Wellenlängen der beiden Kopplungslaser liegen hier bei

⁶¹VCO für das weiße Rauschen: ZX95-1240+, Mini-Circuits; Lokoszillator: ZX95-1200W+, Mini-Circuits; Mixer: ZFM-15, Mini-Circuits

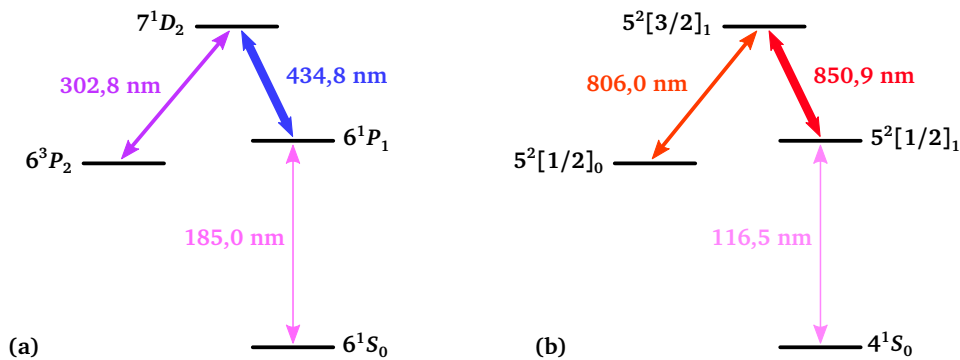


Abbildung 7.1: Alternative vier-Niveau LWI-Systeme im VUV-Bereich. (a) LWI-System in Quecksilber unter Verwendung des zweiten Grundzustandübergangs $6^1S_0 \leftrightarrow 6^1P_1$. (b) LWI-System in Krypton.

850,9 nm für den starken, bzw. 806,0 nm für den schwachen Kopplungslaser. Beide Wellenlängen liegen im Verstärkungsbereich eines Titan:Saphir-Lasers, wodurch auch hohe optische Leistungen im Wattbereich bereit gestellt werden können [185]. Der LWI-Laserübergang liegt in diesem System mit 116,5 nm im tiefen VUV-Bereich und ist für cw-Laser selbst durch Frequenzverdopplung nicht mehr zugänglich [12]. In diesem LWI-System ist die dopplerfreie Winkelkonfiguration nicht anwendbar, so dass eine gewisse Verbreiterung bestehen bleibt. Die größte Herausforderung besteht jedoch in der Bereitstellung einer inkohärenten Pumpe für den LWI-Laserübergang. Es existieren zwar Krypton Linienstrahler bei 116,5 nm, diese weisen im Allgemeinen jedoch keine großen Leistungsdichten auf.

Lasing without inversion in Quecksilber wäre also nur der erste Schritt in Richtung immer kürzerer Wellenlängen, die durch diese auf kohärenter Anregung basierenden Technik erzeugt werden könnten.

A Wichtige Kenngrößen der atomaren Übergänge in Quecksilber

Tabelle A.1: Die Werte der Übergangswahrscheinlichkeiten Γ stammen aus [162]. Die Lebensdauer τ berechnet sich nach $\tau = \frac{1}{\Gamma}$ und die natürliche Linienbreite des Übergangs mit $\Delta\nu = \frac{\Gamma}{2\pi}$ [4]. Die Sättigungsintensität berechnet sich nach $I_{sat} = \frac{\pi \cdot h \cdot c_0}{3 \cdot \lambda^3 \cdot \tau}$, mit dem Planckschen Wirkungsquantum h , der Lichtgeschwindigkeit c_0 , der Wellenlänge des Übergangs λ und der Lebensdauer des Übergangs τ [186].

Wellenlänge	atomarer Übergang	Übergangswsk. Γ	Lebensdauer	Linienbreite	Sättigungsintensität
253,7 nm	$6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$	$8,00 \cdot 10^6 \text{ 1/s}$	$125 \cdot 10^{-9} \text{ s}$	$1,27 \cdot 10^6 \text{ Hz}$	$102 \mu\text{W/mm}^2$
404,7 nm	$6^3P_0 \leftrightarrow 7^3S_1$	$2,10 \cdot 10^7 \text{ 1/s}$	$47,6 \cdot 10^{-9} \text{ s}$	$3,34 \cdot 10^6 \text{ Hz}$	$66,0 \mu\text{W/mm}^2$
435,8 nm	$6^3P_1 \leftrightarrow 7^3S_1$	$5,57 \cdot 10^7 \text{ 1/s}$	$17,9 \cdot 10^{-9} \text{ s}$	$8,86 \cdot 10^6 \text{ Hz}$	$140 \mu\text{W/mm}^2$
546,1 nm	$6^3P_2 \leftrightarrow 7^3S_1$	$4,87 \cdot 10^7 \text{ 1/s}$	$20,5 \cdot 10^{-9} \text{ s}$	$7,75 \cdot 10^6 \text{ Hz}$	$62,3 \mu\text{W/mm}^2$

Tabelle A.2: Dopplerverbreiterung Δ_D für die vier verwendeten Wellenlängen jeweils bei einer Temperatur von 5 °C und 16 °C. Berechnet mittels Gleichung $\Delta_D = 2 \frac{\nu_0}{c_0} \sqrt{\frac{2k_B \cdot T \cdot \ln 2}{m}}$, mit der Frequenz des Übergangs ν_0 , der Lichtgeschwindigkeit c_0 , der Boltzmann-Konstante k_B , der Temperatur T in Kelvin und der Masse eines Atoms m [4].

Wellenlänge	Dopplerbreite Δ_D	
	@ 5 °C	@ 16 °C
253,7 nm	996,6 MHz	1016 MHz
404,7 nm	624,8 MHz	637,0 MHz
435,8 nm	580,2 MHz	591,6 MHz
546,1 nm	463,0 MHz	472,1 MHz

A Wichtige Kenngrößen der atomaren Übergänge in Quecksilber

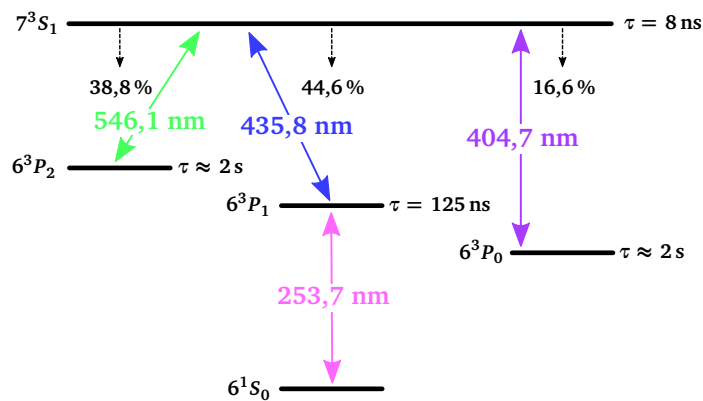


Abbildung A.1: Verzweungsverhältnisse für den Zerfall des 7^3S_1 Niveaus und Lebensdauern τ aller beteiligten Niveaus des LWI-Schemas in Quecksilber [56, 128].

Die Folgenden Abbildungen A.2 bis A.5 zeigen die Isotopieverschiebung der vier Übergänge in Quecksilber der Wellenlängen von 253,7 nm, 404,7 nm, 435,8 nm und 546,1 nm relativ zum ^{202}Hg Isotop. Die Werte der Isotopieverschiebungen für die Wellenlängen von 404,7 nm, 435,8 nm und 546,1 nm stammen aus [105, 117] und für 253,7 nm aus [187, 188]. Die spektralen Intensitäten bestimmen sich für die bosonischen Isotope ^{196}Hg , ^{198}Hg , ^{200}Hg , ^{202}Hg und ^{204}Hg aus deren Häufigkeiten im natürlichen Isotopengemisch [189]. Die spektralen Intensitäten für die Übergänge der fermionischen Isotope ^{199}Hg und ^{201}Hg bestimmen sich nach den Übergangswahrscheinlichkeiten aus [117]. Die Übergänge des ^{199}Hg Isotops sind mit Großbuchstaben gekennzeichnet, die des ^{201}Hg Isotops mit Kleinbuchstaben.

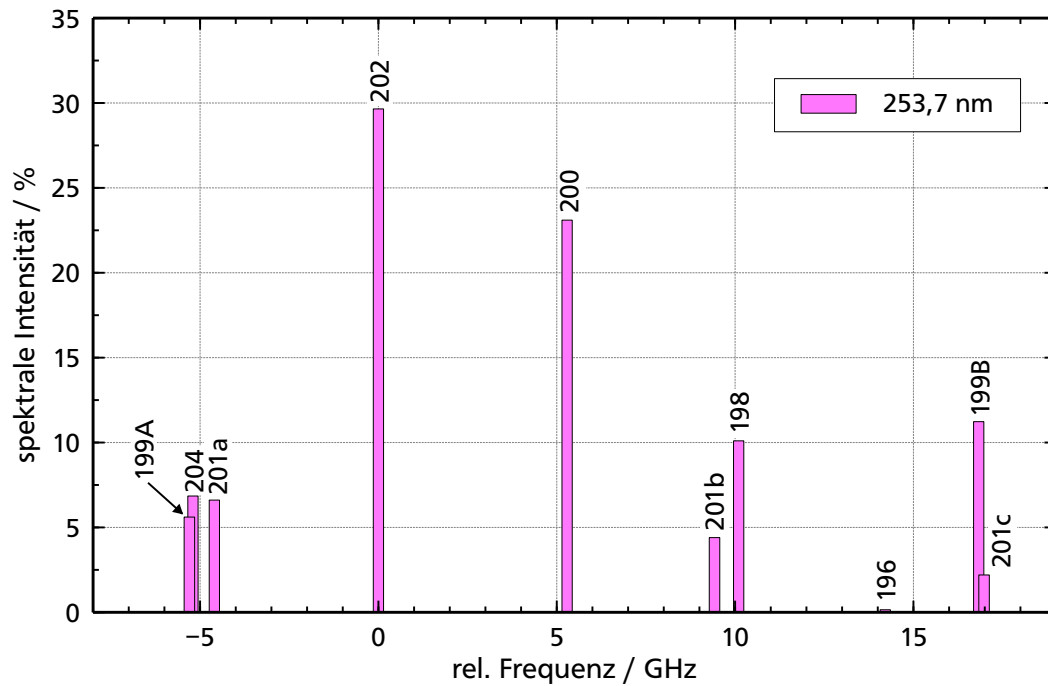


Abbildung A.2: Isotopieverschiebung, relative zum ^{202}Hg Isotop, und Intensitäten des $6^1S_0 \leftrightarrow 6^3P_1$ Übergangs bei 253,7 nm.

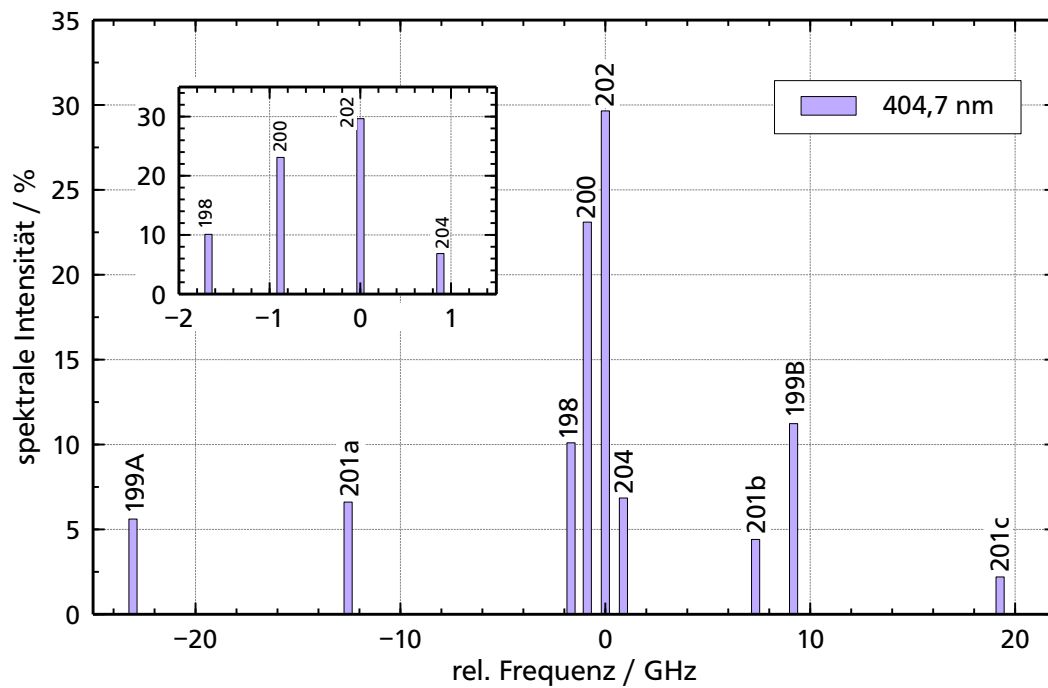


Abbildung A.3: Isotopieverschiebung, relative zum ^{202}Hg Isotop, und Intensitäten des $6^3P_0 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergangs bei 404,7 nm. Die Verschiebung des ^{196}Hg Isotops ist nicht bekannt.

A Wichtige Kenngrößen der atomaren Übergänge in Quecksilber

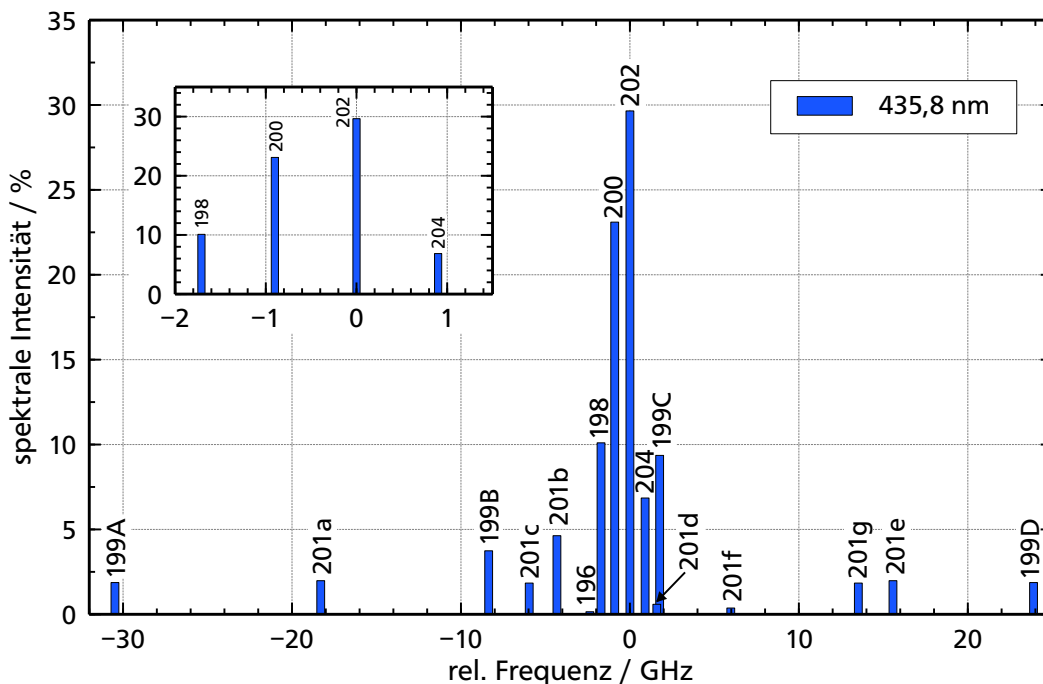


Abbildung A.4: Isotopieverschiebung, relative zum ^{202}Hg Isotop, und Intensitäten des $6^3P_1 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergangs bei 435,8 nm.

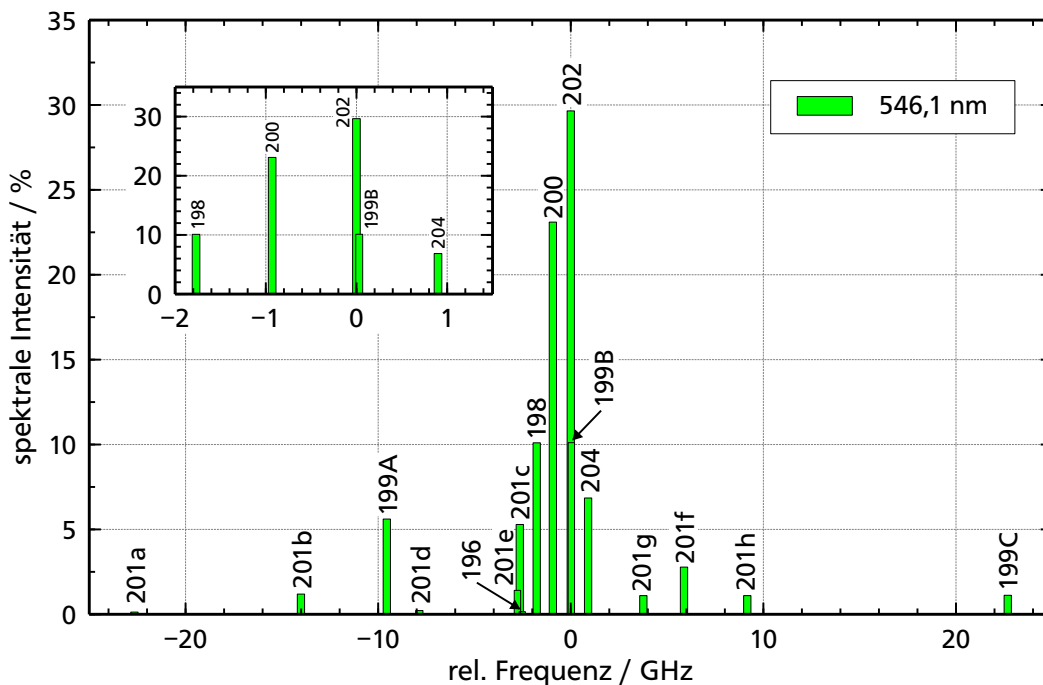


Abbildung A.5: Isotopieverschiebung, relative zum ^{202}Hg Isotop, und Intensitäten des $6^3P_2 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergangs bei 546,1 nm.

B Erweiterte Darstellung der berechneten Spektren

Abbildung B.1 zeigt mit dem theoretischen Modell berechnete Absorptionsspektren mit den Parametern aus Abb. 2.13 bzw. Abb. 6.4. Die Auftragung der Spektren erfolgt in gleicher Weise wie für die gemessenen Spektren aus Abb. 6.2 als weitere Vergleichsmöglichkeit zwischen gemessenen und berechneten Spektren.

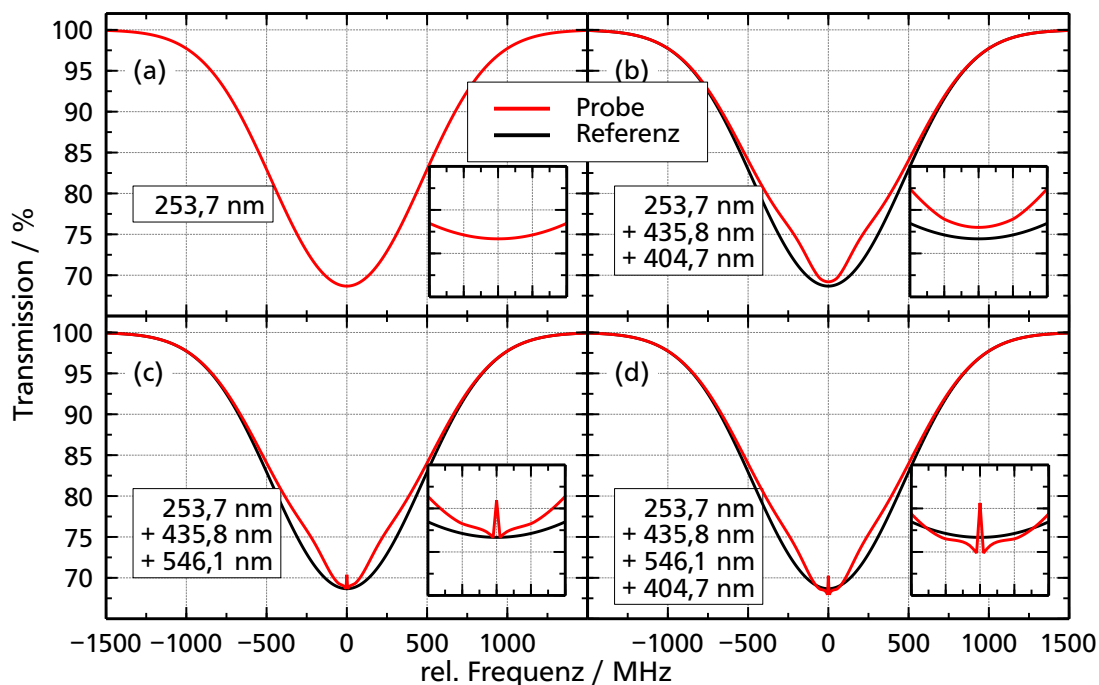


Abbildung B.1: Absorptionsspektren, berechnet mit dem erweiterten theoretischen Modell. Die verwendeten Laserparameter entsprechen denen in Abb. 2.13. Die Vergrößerung zeigt jeweils einen Ausschnitt der Transmission zwischen 66% und 72% in einem Bereich von ± 100 MHz zentriert um den atomaren Übergang. Spektrum (a) entspricht Laserkonfiguration 1, (b) Laserkonfiguration 2, (c) Laserkonfiguration 3 und (d) Laserkonfiguration 4. Laserkonfigurationen gemäß Tabelle 6.2. Der drei-Photonen Resonanzpeak in (c) und (d) erscheint hier verbreitert, da die Dichte der Datenpunkte für die Berechnung des Gesamtspektrums auf Grund der langen Berechnungsdauer heruntergesetzt wurde. Insgesamt besteht eine Linie aus 601 Datenpunkten.

C Schaltplan der Differenzelektronik der UV-Photodioden

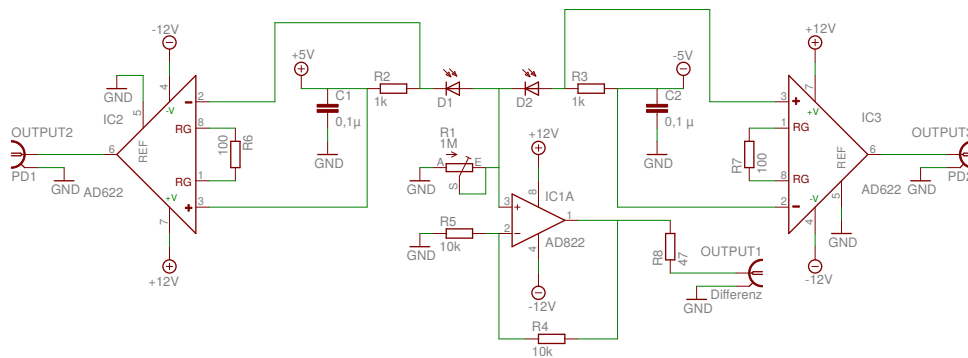


Abbildung C.1: Schaltplan der Differenzelektronik der beiden UV-Photodioden für Proben- und Referenzstrahl. Die Grundschaltung wurde aus [59] übernommen und um zwei Instrumentenverstärker ergänzt, die es ermöglichen die Signale der beiden Photodioden getrennt zu betrachten.

D Kristall- und Resonatorparameter

871,6 nm-Resonator

Tabelle D.1: Kristallparameter des Kaliumniobat-Kristalls für die Frequenzverdopplung von 871,6 nm. Theoriewerte wurden dem Programm SNLO⁶² entnommen.

KNbO ₃	
Orientierung	a-Schnitt, $\Theta = 90^\circ$, $\phi = 90^\circ$
Phasenanpassung	nicht-kritisch Typ-1
Brechungsindex	$n = 2,28$
Phasenanpassungstemp.	theor. 72,1 °C
d_{eff}	theor. $d_{\text{eff}} = 13,8 \text{ pm/V}$
Beschichtung	AR 876 nm und 436 nm
Maße (L×B×H)	10 mm × 3,1 mm × 2,7 mm

Tabelle D.2: Die Spiegelparameter des 871,6 nm Überhöhungsresonators. Beschichtung 1 befindet sich auf der Innenseite, Beschichtung 2 auf der Außenseite des Resonators, der Krümmungsradius bezieht sich auf die Innenseite des Resonators (auf der Außenseite sind alle Spiegel plan). Alle Spiegel stammen von der Firma Layertec GmbH.

Nr.	Beschichtung 1		Beschichtung 2		Krümm.- radius	Durch- messer	Dicke
	871,6 nm	435,8 nm	871,6 nm	435,8 nm			
M1	R ≈ 95%	N/A	R < 0,6%	N/A	plan	12,7 mm	6,35 mm
M2	R > 99,9%	R < 5%	N/A	R < 0,25%	plan	12,7 mm	6,35 mm
M3	R > 99,9%	R < 5%	N/A	R < 0,25%	-75 mm	12,7 mm	6,35 mm
M4	R > 99,9%	R < 5%	N/A	R < 0,25%	-75 mm	12,7 mm	6,35 mm

⁶²SNLO v51 (2015), A. Smith, <http://www.as-photonics.com/snlo>

1092,2 nm-Resonator

Tabelle D.3: Kristallparameter des Lithiumniobat-Kristalls für die Frequenzverdopplung von 1092,2 nm. Theoriewerte wurden dem Programm SNLO⁶³ entnommen.

LiNbO ₃ mit 5,5 % MgO-Dotierung	
Orientierung	a-Schnitt, $\Theta = 90^\circ$, $\phi = 0^\circ$
Phasenanpassung	nicht-kritisch Typ-1
Brechungsindex	$n = 2,23$
Phasenanpassungstemp.	theor. 171,7 °C
d_{eff}	theor. $d_{\text{eff}} = 4,45 \text{ pm/v}$
Beschichtung	AR 1092,2 nm und 546,1 nm
Maße (L×B×H)	20 mm × 4 mm × 4 mm

Tabelle D.4: Die Spiegelparameter des 1092,2 nm Überhöhungsresonators. Beschichtung 1 befindet sich auf der Innenseite, Beschichtung 2 auf der Außenseite des Resonators, der Krümmungsradius bezieht sich auf die Innenseite des Resonators (auf der Außenseite sind alle Spiegel plan). Spiegel M1 wurde von der Firma Layertec GmbH, Spiegel M2 bis M3 von der Firma LASEROPTIK GmbH produziert.

Nr.	Beschichtung 1		Beschichtung 2		Krümm.- radius	Durch- messer	Dicke
	1092 nm	546 nm	1092 nm	546 nm			
M1	R=97,0 ± 0,5 %	N/A	R<0,15%	N/A	plan	12,7 mm	6,35 mm
M2	R>99,85%	R<3%	N/A	R<0,2%	plan	6 mm	2 mm
M3	R>99,85%	R<3%	N/A	R<0,2%	-75 mm	12,7 mm	6,35 mm
M4	R>99,85%	R<3%	N/A	R<0,2%	-75 mm	12,7 mm	6,35 mm

⁶³SNLO v51 (2015), A. Smith, <http://www.as-photonics.com/snlo>

E Quelltext zur Berechnung des Laserspektrums

Zur Berechnung der Laserspektren für reines $1/f$ -Rauschen wurde der Quelltext der Funktion *modelFunctionTD* aus [68] an Gleichung 5.14 angepasst.

```
double modelFunctionTD (double t, void* params) {
    struct fittingParams* p = (struct fittingParams*) params;
    double t0 = fabs(p->t0);
    double k1 = fabs(p->k1);

    double triarg = t * M_1_PI / t0;
    double cosi = gsl_sf_Ci(triarg); //GSL-Funktion des Integralkosinus
    double g, f;

    double s1 = -1 * M_1_PI * k1;
    double s2 = -1 * M_PI*M_PI * t0*t0;
    double s3 = M_PI*M_PI * t0*t0 * cos(triarg);
    double s4 = t*t * cosi;
    double s5 = -1 * M_PI * t * t0 * sin(triarg);
    f = exp(-0.5 * (s1 * (s2 + s3 + s4 + s5)));

    return f;
}
```


F Aufbereitung der Rohdaten

Im Folgenden wird detailliert beschrieben, wie die Rohdaten der Messungen aus den Kapiteln 4 und 6 aufbereitet wurden. Dies ist nötig, um den störenden Einfluss der optischen Komponenten von den zu messenden Effekten zu separieren.

Wie in Kapitel 6.1 beschrieben, tritt nach der Aufteilung von Proben- und Referenzstrahl an einem Dünnschichtpolarisator eine Leistungsmodulation beider Strahlen auf, wenn diese in ihrer Frequenz verstimmt werden. Die Leistung des ursprünglichen 253,7 nm Strahls vor der Aufteilung in die beiden Teilstrahlen weist keine Modulation auf und ist zudem leistungsstabilisiert (siehe Kapitel 3.7 und Abb. 3.33).

Die Leistungsmodulation weist den Verlauf einer Überlagerung aus einer Sinusschwingung mit einem linearen Drift auf. Ursächlich für die Modulation sind die Polarisationskomponenten, bestehend aus einer $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte und einem Dünnschichtpolarisator. Da Proben- und Referenzstrahl die gleiche Leistung aufweisen sollen, wird die lineare Polarisation des ursprünglichen 253,7 nm Strahls durch die $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte soweit gedreht, dass diese 45° zur Achse des Dünnschichtpolarisators steht. Beide Polarisationskomponenten weisen allerdings eine wellenlängen- und somit frequenzabhängige Drehung bzw. Aufteilung der Polarisationskomponenten auf. Der verwendete Dünnschichtpolarisator⁶⁴ ist für eine Zentralwellenlänge von 248 nm ausgelegt. Die Abweichung von 5,7 nm von der Zentralwellenlänge ist ausreichend, um eine sinusförmige Modulation der Aufteilung von p- und s-Polarisation zu verursachen. Der lineare Drift kann sowohl vom Dünnschichtpolarisator als auch der Verzögerungsplatte stammen. Die Zentralwellenlänge der *zero-order* Verzögerungsplatte⁶⁵ beträgt 266 nm. Diese Abweichung kann für kleine Frequenzverstimmungen im Bereich einiger GHz zu einer näherungsweise gleichförmigen Drehung des Polarisationsvektors führen und somit zu dem beobachteten linearen Drift.

Für die Messungen aus Kapitel 4.2 ist dieses Verhalten besonders deutlich zu beobachten. Hierfür wurden zwei einzelne UV-Photodioden verwendet. Der Probenstrahl durch die UHV-Zelle folgt dem gleichen Verlauf wie in den Kapiteln 3.7 bzw. 6 beschrieben, der Referenzstrahl wurde jedoch vor der UHV-Zelle umgelenkt und detektiert. Somit ist im Referenzstrahl die Leistungsmodulation ohne weitere Beeinflussung, z. B. durch Absorption in der UHV-Zelle, zu beobachten.

Die so aufgenommenen Messdaten, für Referenz- und Probenstrahl, sind in Abbildung F.1 (a) und (b) dargestellt. Die zuvor beschriebene Leistungsmodulation, bei der Frequenzverstimmung der 253,7 nm Strahlung, ist in den Daten des Referenzstrahls zu sehen, aber auch im Absorptionsspektrum des Probenstrahls vorhanden. Da diese zusätzliche Leistungsmodulation

⁶⁴TFP-248-PP1025SQ1, Laser Components GmbH

⁶⁵WPH05M-266, Thorlabs GmbH

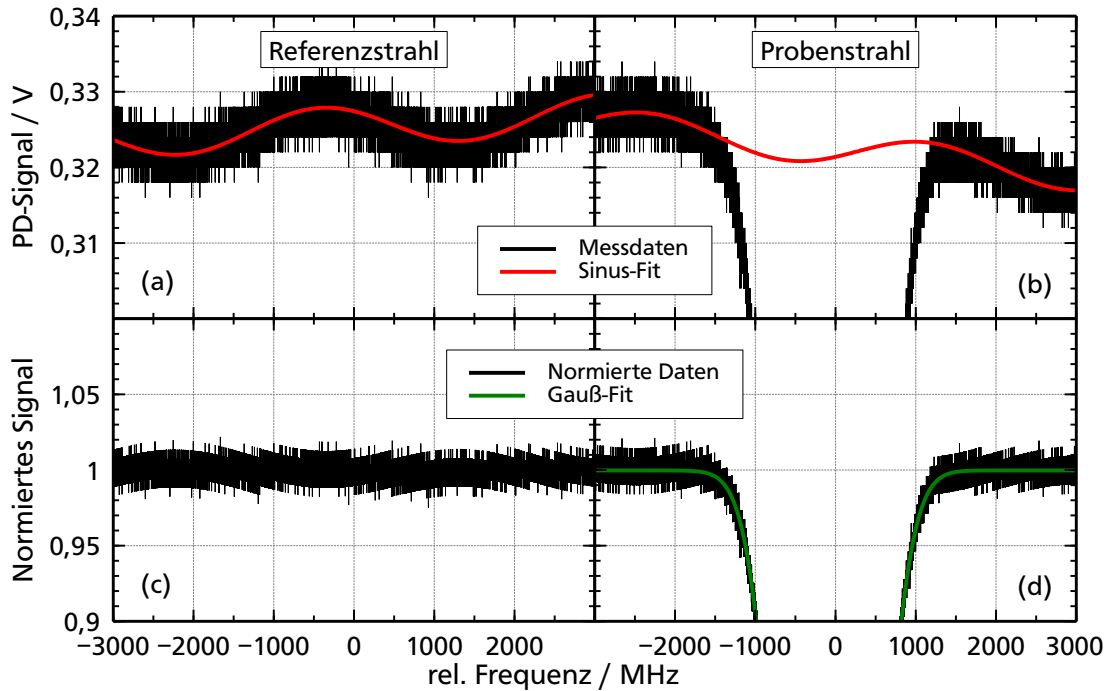


Abbildung F.1: (a) Photodiodensignal des Referenzstrahls (schwarz), gemessen vor der UHV-Zelle und die angepasste Funktion F.1 (rot). (b) Photodiodensignal des Probenstrahls (schwarz), nach der Transmission durch die UHV-Zelle, mit angepasster Funktion F.1 (rot). Die Anpassung der Fit-Funktion erfolgte jeweils unter Ausschluss der zentralen Messdaten von -1600 MHz bis $+1600$ MHz. (c) und (d) zeigen die, durch die Fit-Funktionen, normierten Signale für Referenz- und Probenstrahl. An das normierte Signal des Probenstrahls ist zusätzlich eine Gauß-Funktion angepasst.

dulation die Messung des Absorptionsspektrums verfälscht, muss diese von den Messdaten subtrahiert werden. Hierfür wird die Fit-Funktion

$$F(\nu) = a_0 \sin\left(\frac{\nu}{t} + p\right) + m \cdot \nu + y_0 \tag{F.1}$$

an die Messdaten angepasst. Diese entspricht einer Sinusfunktion mit Amplitude a_0 , Periode t und einer Phase p , addiert mit einer Geraden der Steigung m und y -Achsenabschnitt y_0 . Die Anpassung dieser Funktion an die Messdaten ist in Abbildung F.1 (a) und (b) in Rot eingezeichnet. Aufgrund der Absorption, muss für den Probenstrahl der zentrale Teil der Messdaten von -1600 MHz bis $+1600$ MHz für die Anpassung ausgeschlossen werden. Für die Anpassung der Fit-Funktion an den Referenzstrahl wurde der gleiche Datenbereich ausgeschlossen. Dies zeigt die Zuverlässigkeit dieser Methode.

Ein Vergleich der angepassten Funktionen zeigt, dass die Leistungsmodulation in den Teil-

strahlen gegenläufig zueinander ist. Das bedeutet, ein Leistungsabfall im Referenzstrahl führt zu einem entsprechenden Leistungszuwachs im Probenstrahl und umgekehrt. Da für die in Kapitel 4.2 vorgestellten Messungen eine Normierung der Spektren erforderlich ist, wurden die Messdaten durch die angepasste Funktion $F(\nu)$ dividiert. Die so normierten Daten sind in Abb. F.1 (c) und (d) für den Referenz- bzw. Probenstrahl zu sehen. Zusätzlich ist, in Grün, die Anpassung einer Gauß-Funktion an das normierte Spektrum des Probenstrahls eingezeichnet. Für den Referenzstrahl ergibt sich erwartungsgemäß eine Gerade.

Die Leistungsmodulation ist, durch ihr umgekehrtes Vorzeichen für Proben- und Referenzstrahl, auch im Differenzsignal der Differenzphotodiode mit dem gleichen Verlauf vorhanden. Verdeutlicht werden soll dies anhand der Messung aus Abbildung 6.2 (a). Die Rohdaten dieser Messung, aus den Einzelkanälen der Differenzphotodiode, sind in Abbildung F.2 (a) und (b) für den Proben- und Referenzstrahl aufgetragen. Das zugehörige Differenzsignal der

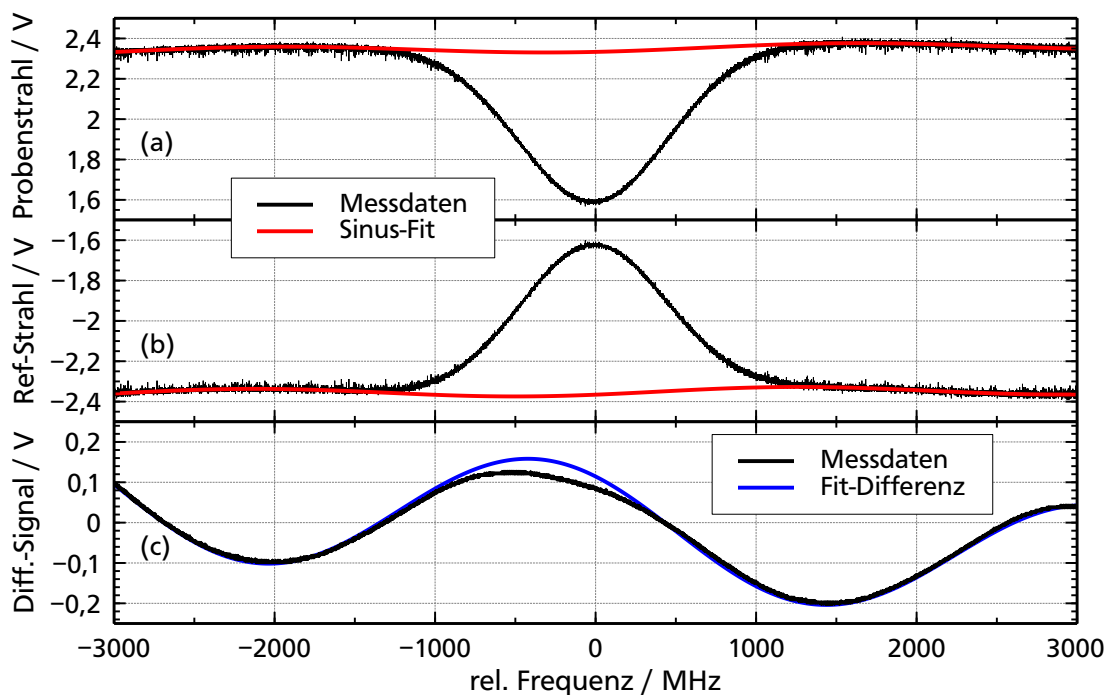


Abbildung F.2: (a) und (b) zeigen die Rohdaten der Messung aus Abb. 6.2 (a), beide Einzelsignale der Differenzphotodiode für Proben- und Referenzstrahl (schwarz). An diese Daten wurde, unter Ausschluss der zentralen Messdaten von -1600 MHz bis $+1600$ MHz, jeweils die Funktion F.1 angepasst (rot). (c) entspricht dem Differenzsignal dieser Messung (schwarz). Die Differenz der beiden Fit-Funktionen aus (a) und (b) ergibt, unter Berücksichtigung des Verstärkungsfaktors der Differenzphotodiode, das „ideale“ Differenzsignal (blau).

Differenzphotodiode ist in Abb. F.2 (c) zu sehen. An die Daten aus F.2 (a) und (b) wurde, wie zuvor, jeweils die Funktion F.1 angepasst (rote Linien), wobei auch hier die zentralen Datenpunkte von -1600 MHz bis $+1600$ MHz ausgeschlossen wurden. Die so gewonnenen Funktionen wurden anschließend addiert (aufgrund der zueinander invertierten Vorspannungen der beiden Differenzphotodioden und der somit ebenfalls zueinander invertierten Einzelsignale entspricht dies einer Subtraktion der beiden Signale, siehe auch C) und mit dem Verstärkungsfaktor der Differenzphotodiode multipliziert. Daraus ergibt sich der in Abb. F.2 (c) in Blau dargestellte Signalverlauf.

Obwohl für die Messung aus F.2 beide Teilstrahlen die ungestörte atomare Absorption auf dem $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ Übergang erfahren, ist im Differenzsignal in F.2 (c) eine deutliche Abweichung vom idealen Verlauf der blauen Kurve zu erkennen. Auch diese Abweichung wurde schon in Kapitel 6.1 angesprochen. Ursächlich hierfür ist vor allem die Divergenz der gaußförmigen Strahlen und die unterschiedlichen Weglängen zwischen Dünnschichtpolarisator und UHV-Zelle. Hierdurch ergeben sich leicht unterschiedliche Durchmesser für Proben- und Referenzstrahl innerhalb der UHV-Zelle und somit auch unterschiedliche Intensitäten und Unterschiede in der Absorption beider Strahlen. Zusätzlich gilt zu beachten, dass die Transmissionen der verwendeten Linsen mit Antireflexbeschichtung und Bandpassfilter nach der UHV-Zelle nicht aufeinander abgestimmt wurden.

Infolgedessen wurde diese Messung als Dunkelmessung in allen Messreihen eingeführt, mit deren Hilfe diese Unterschiede gemessen und von den anderen Spektren subtrahiert werden können. Beispielhaft wird dieses Vorgehen für das Spektrum aus Abbildung 6.3 (d) vorgestellt (Laserkonfiguration 4, siehe Tabelle 6.2). Die Dunkelmessung dieser Messreihe (Laserkonfiguration 1) entspricht der in Abb. F.2 gezeigten Messung. Diese ist, zusammen mit einer Anpassung der Funktion F.1 an die Rohdaten, in Abbildung F.3 (a) aufgetragen. Die Anpassung erfolgte direkt an das Differenzsignal, wobei auch hier die zentralen Datenpunkte von -1600 MHz bis $+1600$ MHz ausgeschlossen wurden. Anschließend wird das durch die Anpassung gewonnene Signal von den Rohdaten subtrahiert. Nachfolgend findet noch eine Invertierung statt, so dass ein positives Signal einer, im Vergleich zum Referenzstrahl, verminderten Transmission des Probenstrahls entspricht. Das Ergebnis ist in Abb. F.3 (c) zu sehen. Mit den Daten aus Laserkonfiguration 4 wurde genau so verfahren. Das Ergebnis ist in Abb. F.3 (d) aufgetragen.

An die aufbereiteten Daten der Dunkelmessung wird eine Überlagerung von zwei Gauß-Funktionen angepasst (grüne Kurve in Abb. F.3 (c)). Diese Anpassung gibt die Abweichung der Absorption zwischen Proben- und Referenzstrahl wieder und wird von den aufbereiteten Daten der Laserkonfiguration 4 subtrahiert, wie in Abb. F.3 (d) angedeutet. Daraus ergibt sich das in 6.3 (d) gezeigte Differenzsignal. Dieses Signal beinhaltet somit nur noch die Transmissionsänderungen des Probenstrahls, hervorgerufen durch die Kopplungs- und Rückpump laser.

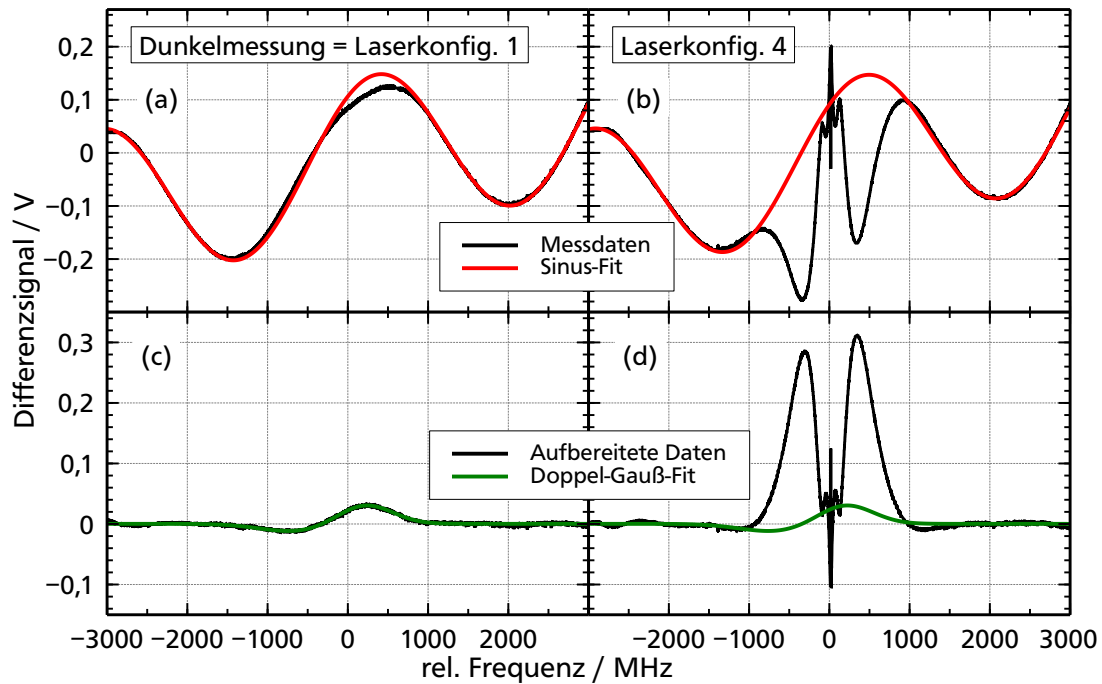


Abbildung F.3: Aufbereitung der Rohdaten für das Differenzsignal aus Abb. 6.3 (d). (a) zeigt die Rohdaten (schwarz) der Dunkelmessung (Laserkonfiguration 1) mit einer Anpassung der Fit-Funktion F.2 (rot). (b) zeigt die Rohdaten (schwarz) der Teilmessung in Laserkonfiguration 4, mit einer Anpassung der Fit-Funktion F.2 (rot). Die angepassten Fit-Funktionen werden von den Daten subtrahiert und das Ergebnis invertiert. Die jeweiligen Spektren der so aufbereiteten Rohdaten sind in (c) und (d) gezeigt (schwarz). An die aufbereiteten Daten der Dunkelmessung in (c), wird eine Überlagerung zweier Gauß-Funktionen angepasst (grün). Diese wird anschließend von den Daten in (d) subtrahiert.

Literaturverzeichnis

- [1] A. E. SIEGMAN. Lasers. University Science Books 1986.
- [2] E. HECHT. Optik. 4. Aufl. Oldenbourg Verlag München Wien 2005.
- [3] F. K. KNEUBÜHL und M. W. SIRGRIST. Laser. 6. Aufl. Vieweg+Teubner Verlag 2005.
- [4] W. DEMTRÖDER. Laserspektroskopie - Grundlagen und Techniken. 5. Aufl. Springer Verlag 2007.
- [5] O. SVELTO. Principles of Lasers. 5. Aufl. Springer US 2010.
- [6] K. THYAGARAJAN und A. GHATAK. Lasers. 2. Aufl. Springer US 2011.
- [7] S. HARRIS. Lasers without inversion: Interference of lifetime-broadened resonances. Physical review letters **62** (1989), 1033–1036.
- [8] M. LUKIN, M. SCULLY, G. WELCH und E. FRY. Lasing without inversion: the road to new short-wavelength lasers. Laser Physics **6** (1996), 436–447.
- [9] S. E. HARRIS. Electromagnetically Induced Transparency. Physics Today **50** (1997), 36–42.
- [10] J. MOMPART und R. CORBALÁN. Lasing without inversion. Journal of Optics A: Pure and Applied Optics **2** (2000), R7.
- [11] P. MANDEL. Lasing without inversion: A useful concept? Contemporary Physics **34** (1993), 235–246.
- [12] M. SCHOLZ, D. OPALEVS und P. LEISCHING. 1.3-mW tunable and narrow-band continuous-wave light source at 191 nm. Optics Express **20** (2012), 523–527.
- [13] M. SCHOLZ, D. OPALEVS, P. LEISCHING, W. KAENDERS, G. WANG, X. WANG, R. LI und C. CHEN. A bright continuous-wave laser source at 193 nm. Applied Physics Letters **103** (2013), 051114.
- [14] J. SAKUMA, Y. KANEDA, N. OKA, T. ISHIDA, K. MORIIZUMI, H. KUSUNOSE und Y. FURUKAWA. Continuous-wave 193.4 nm laser with 120 mW output power. Optics letters **40** (2015), 5590–5593.
- [15] L. von der WENSE, B. SEIFERLE, M. LAATIAOUI, J. B. NEUMAYR, H.-J. MAIER, H.-F. WIRTH, C. MOKRY, J. RUNKE, K. EBERHARDT, C. E. DÜLLMANN, N. G. TRAUTMANN und P. G. THIROLF. Direct detection of the ^{229}Th nuclear clock transition. Nature **533** (2016), 47–51.
- [16] C. R. VIDAL. Four-wave frequency mixing in gases. In: Tunable Lasers. Springer Berlin Heidelberg 1992. Kap. 3, 57–113.

- [17] T. SÜDMEYER, Y. IMAI, H. MASUDA, N. EGUCHI, M. SAITO und S. KUBOTA. Efficient 2nd and 4th harmonic generation of a single-frequency, continuous-wave fiber amplifier. *Optics Express* **16** (2008), 1546–1551.
- [18] D. KOLBE, M. SCHEID und J. WALZ. Triple resonant four-wavemixing boosts the yield of continuous coherent VUV generation. *Physical Review Letters* **109** (2012), 063901.
- [19] O. KOCHAROVSKAIA und Y. I. KHANIN. Coherent amplification of an ultrashort pulse in a three-level medium without population inversion. *Pis'ma v Zhurnal Eksperimental'noi i Teoreticheskoi Fiziki* **48** (1988), 581–584.
- [20] M. SCULLY, S. ZHU und A. GAVRIELIDES. Degenerate quantum-beat laser: Lasing without inversion and inversion without lasing. *Physical Review Letters* **62** (1989), 2813–2816.
- [21] A. IMAMOĞLU und S. E. HARRIS. Lasers without inversion: interference of dressed lifetime-broadened states. *Optics Letters* **14** (1989), 1344–1346.
- [22] A. S. ZIBROV, M. D. LUKIN, D. E. NIKONOV, L. HOLLBERG, M. O. SCULLY, V. L. VELICHANSKY und H. G. ROBINSON. Experimental Demonstration of Laser Oscillation without Population Inversion via Quantum Interference in Rb. *Physical Review Letters* **75** (1995), 1499–1502.
- [23] G. PADMABANDU, G. WELCH, I. SHUBIN, E. FRY, D. NIKONOV, M. LUKIN und M. SCULLY. Laser Oscillation without Population Inversion in a Sodium Atomic Beam. *Physical Review Letters* **76** (1996), 2053–2056.
- [24] O. KOCHAROVSKAYA. Lasing without inversion: problems and prospects. *Hyperfine Interactions* **107** (1997), 187–195.
- [25] D. BRAUNSTEIN und R. SHUKER. X-ray laser without inversion in a three-level ladder system. *Physical Review A* **68** (2003), 013812.
- [26] J. P. MARANGOS und T. HALFMANN. Electromagnetically Induced Transparency. In: *Handbook of Optics*. The McGraw-Hill Companies, Inc. 2010. Kap. 14.
- [27] E. S. FRY, M. D. LUKIN, T. WALTHER und G. R. WELCH. Four-level atomic coherence and cw VUV lasers. *Optics Communications* **179** (2000), 499–504.
- [28] M. R. STURM, B. REIN, T. WALTHER und R. WALSER. Feasibility of UV lasing without inversion in mercury vapor. *Journal of the Optical Society of America B* **31** (2014), 1964–1974.
- [29] J. P. MARANGOS. Electromagnetically induced transparency. *Journal of Modern Optics* **45** (1998), 471–503.
- [30] M. FLEISCHHAUER, A. IMAMOĞLU und J. MARANGOS. Electromagnetically induced transparency: Optics in coherent media. *Reviews of Modern Physics* **77** (2005), 633–673.

-
- [31] E. ARIMONDO und G. ORRIOLS. Nonabsorbing atomic coherences by coherent two-photon transitions in a three-level optical pumping. *Lettere Al Nuovo Cimento Series 2* **17** (1976), 333–338.
- [32] G. ALZETTA, L. MOI und G. ORRIOLS. Nonabsorption hyperfine resonances in a sodium vapour irradiated by a multimode dye-laser. *Il Nuovo Cimento B Series 11* **52** (1979), 209–218.
- [33] V. WONG, R. S. BENNINK, A. M. MARINO, R. W. BOYD, C. R. STROUD und F. A. NARDUCCI. Influence of coherent Raman scattering on coherent population trapping in atomic sodium vapor. *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* **70** (2004), 053811.
- [34] M. O. SCULLY und M. S. ZUBAIRY. *Quantum Optics*. Cambridge University Press 2002.
- [35] A. NAGEL. *Precision Spectroscopy of Coherent Dark States in Thermal Cesium Vapour*. Dissertation. Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität zu Bonn, 1999.
- [36] S. HARRIS, J. FIELD und A. IMAMOĞLU. Nonlinear Optical Processes Using Electromagnetically Induced Transparency. *Physical Review Letters* **64** (1990), 1107–1110.
- [37] K. BOLLER, A. IMAMOĞLU und S. HARRIS. Observation of electromagnetically induced transparency. *Physical Review Letters* **66** (1991), 2593–2596.
- [38] S. KHAN, M. P. KUMAR, S. R. CHANU, V. BHARTI und V. NATARAJAN. Coherent population trapping (CPT) versus Electromagnetically induced transparency (EIT). Preprint at <http://arXiv.org/abs/1503.06956> (2015).
- [39] N. V. VITANOV, T. HALFMANN, B. W. SHORE und K. BERGMANN. Laser-Induced Population Transfer By Adiabatic Passage Techniques. *Annual Review of Physical Chemistry* **52** (2001), 763–809.
- [40] B. W. SHORE. Coherent manipulations of Atoms using Laser Light. *Acta Physica Slovaca* **58** (2008), 243–486.
- [41] M. P. FEWELL, B. W. SHORE und K. BERGMANN. Coherent population transfer among three states: Full algebraic solutions and the relevance of non adiabatic processes to transfer by delayed pulses. *Australian Journal of Physics* **50** (1997), 281–308.
- [42] U. GAUBATZ, P. RUDECKI, S. SCHIEMANN und K. BERGMANN. Population transfer between molecular vibrational levels by stimulated Raman scattering with partially overlapping laser fields. A new concept and experimental results. *Journal of Chemical Physics* **92** (1990), 5363.
- [43] U. FANO. Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts. *Physical Review* **124** (1961), 1866.
- [44] D. J. FULTON, S. SHEPHERD, R. R. MOSELEY, B. D. SINCLAIR und M. H. DUNN. Continuous-wave electromagnetically induced transparency: A comparison of Λ , Λ , and cascade systems. *Physical Review A* **52** (1995), 2302–2311.

- [45] A. EINSTEIN. Zur Quantentheorie der Strahlung. *Physikalische Zeitschrift* **18** (1917), 121–128.
- [46] M. KNEISSL, T. KOLBE, J. SCHLEGEL, J. STELMACH, C. CHUA, Z. YANG, V. KÜLLER, M. WEYERS und N. M. JOHNSON. AlGaN-based Ultraviolet Lasers - Applications and Materials Challenges. *CLEO: Applications and Technology* (p. JTuB1). Optical Society of America (2011).
- [47] M. O. SCULLY und M. FLEISCHHAUER. Lasers without inversion. *Science* **263** (1994), 337–338.
- [48] A. NOTTELMANN, C. PETERS und W. LANGE. Inversionless amplification of picosecond pulses due to Zeeman coherence. *Physical Review Letters* **70** (1993), 1783–1786.
- [49] W. E. van der VEER, R. J. J. van DIEST, A. DÖNSZELMANN und H. B. VAN LINDEN VAN DEN HEUVELL. Experimental demonstration of light amplification without population inversion. *Physical Review Letters* **70** (1993), 3243–3246.
- [50] E. S. FRY, X. LI, D. NIKONOV, G. G. PADMABANDU, M. O. SCULLY, A. V. SMITZ, F. K. TITTEL, W. C., S. R. WILKINSON und S. Y. ZHU. Atomic coherence effects within the sodium D1Line: Lasing without inversion via population trapping. *Physical Review Letters* **70** (1993), 3235–3238.
- [51] D. MCGLOIN, M. DUNN und D. FULTON. Polarization effects in electromagnetically induced transparency. *Physical Review A* **62** (2000), 053802.
- [52] M. O. SCULLY, M. FLEISCHHAUER, E. S. FRY, A. IMAMOĞLU, M. D. LUKIN, D. NIKONOV, T. WALTHER und S. F. YELIN. Lasing Without Inversion via Interference of Double-Dark Resonances in Atomic and Quantum Well Systems. In: *Coherent Control in Atoms, Molecules, and Semiconductors*. Springer Netherlands 1998, 63–72.
- [53] M. LUKIN, S. YELIN, M. FLEISCHHAUER und M. SCULLY. Quantum interference effects induced by interacting dark resonances. *Physical Review A* **60** (1999), 3225–3228.
- [54] C. Y. YE, A. S. ZIBROV und Y. U. V. ROSTOVTSEV. Effect of Doppler broadening on the transparency and dispersion of the generalized double dark resonance. *Journal of Modern Optics* **49** (2002), 391–400.
- [55] X.-G. WEI, J.-H. WU, H.-H. WANG, A. LI, Z.-H. KANG, Y. JIANG und J.-Y. GAO. Dark and bright Doppler-free resonances observed in atomic 87Rb vapor. *Europhysics Letters (EPL)* **78** (2007), 44002.
- [56] R. GARSTANG. Hyperfine structure and intercombination line intensities in the spectra of magnesium, zinc, cadmium, and mercury. *Journal of the Optical Society of America* **52** (1962), 845–851.
- [57] B. LÜ, W. H. BURKETT und M. XIAO. Electromagnetically induced transparency with variable coupling-laser linewidth. *Physical Review A* **56** (1997), 976–979.
- [58] C. Y. YE, A. S. ZIBROV, Y. V. ROSTOVTSEV und M. O. SCULLY. Unexpected Doppler-free resonance in generalized double dark states. *Physical Review A* **65** (2002), 043805.

-
- [59] P. VILLWOCK. Kühlen und Fangen von neutralen Hg-Atomen. Dissertation. TU Darmstadt, 2010.
- [60] P. VILLWOCK, S. SIOL und T. WALTHER. Magneto-Optical Trapping of Neutral Mercury. *THE EUROPEAN PHYSICAL JOURNAL D* **65** (2011), 251–255.
- [61] T. BECK. Lasersystem zur Kühlung relativistischer C^{3+} -Ionenstrahlen in Speicherringen. Dissertation. TU Darmstadt, 2015.
- [62] L. RICCI, M. WEIDEMÜLLER, T. ESSLINGER, A. HEMMERICH, C. ZIMMERMANN, V. VULETIC, W. KÖNIG und T. W. HÄNSCH. A compact grating-stabilized diode laser system for atomic physics. *Optics Communications* **117** (1995), 541–549.
- [63] C. E. WIEMAN und L. HOLLBERG. Using diode lasers for atomic physics. *Review of Scientific Instruments* **62** (1991), 1–20.
- [64] T. FÜHRER, D. STANG und T. WALTHER. Actively controlled tuning of an external cavity diode laser by polarization spectroscopy. *Optics Express* **17** (2009), 4991–4996.
- [65] T. FÜHRER, S. EULER und T. WALTHER. Model for tuning an external-cavity diode laser by polarization locking. *Journal of the Optical Society of America B* **28** (2011), 508.
- [66] R. V. POUND. Electronic frequency stabilization of microwave oscillators. *Review of Scientific Instruments* **17** (1946), 490–505.
- [67] R. W. P. DREVER, J. L. HALL, F. V. KOWALSKI, J. HOUGH, G. M. FORD, A. J. MUNLEY und H. WARD. Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator. *Applied Physics B* **31** (1983), 97–105.
- [68] T. FÜHRER. Modellierung und Anwendung eines neuartigen Verfahrens zur aktiven Regelung und Kontrolle von Wellenlänge und Linienbreite eines Diodenlasers mit externem Resonator. Dissertation. Technische Universität Darmstadt, 2012.
- [69] K. G. LIBBRECHT und J. L. HALL. A low-noise high-speed diode laser current controller. *Review of Scientific Instruments* **64** (1993), 2133–2135.
- [70] L. TOMBEZ, S. SCHILT, J. DI FRANCESCO, T. FÜHRER, B. REIN, T. WALTHER, G. DI DOMENICO, D. HOFSTETTER und P. THOMANN. Linewidth of a quantum-cascade laser assessed from its frequency noise spectrum and impact of the current driver. *Applied Physics B: Lasers and Optics* **109** (2012), 407–414.
- [71] G. P. AGRAWAL und R. ROY. Effect of injection-current fluctuations on the spectral linewidth of semiconductor lasers. *Physical Review A* **37** (1988), 2495–2501.
- [72] J. L. HALL, M. S. TAUBMANN und J. YE. Laser Stabilization. In: *Handbook of Optics*. McGraw-Hill 2001. Kap. 27.
- [73] E. V. KOVALCHUK, D. DEKORSY, A. I. LVOVSKY, C. BRAXMAIER, J. MLYNEK, A. PETERS und S. SCHILLER. High-resolution Doppler-free molecular spectroscopy with a continuous-wave optical parametric oscillator. *Optics letters* **26** (2001), 1430–1432.

- [74] E. van OOIJEN, G. KATGERT und P. van der STRATEN. Laser frequency stabilization using Doppler-free bichromatic spectroscopy. *Applied Physics B: Lasers and Optics* **79** (2004), 57–59.
- [75] C. WIEMAN und T. HÄNSCH. Doppler-free laser polarization spectroscopy. *Physical Review Letters* **36** (1976), 1170–1173.
- [76] C. P. PEARMAN, C. S. ADMAS, S. G. COX, P. F. GRIFFIN, D. A. SMITH und I. G. HUGHES. Polarization spectroscopy of a closed atomic transition: applications to laser frequency locking. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **35** (2002), 5141–5151.
- [77] M. HARRIS, C. ADAMS, S. CORNISH, I. MCLEOD, E. TARLETON und I. HUGHES. Polarization spectroscopy in rubidium and cesium. *Physical Review A* **73** (2006), 062509.
- [78] H. D. DO, G. MOON und H.-R. NOH. Polarization spectroscopy of rubidium atoms: Theory and experiment. *Physical Review A* **77** (2008), 032513.
- [79] B. CHÉRON und H. GILLES. Laser frequency stabilization using Zeeman effect. *Journal de Physique III* **4** (1994), 401–406.
- [80] K. L. CORWIN, Z.-T. LU, C. F. HAND, R. J. EPSTEIN und C. E. WIEMAN. Frequency-Stabilized Diode Laser with the Zeeman Shift in an Atomic Vapor. *Applied Optics* **37** (1998), 3295.
- [81] T. PETELSKI, M. FATTORI, G. LAMPORESI, J. STUHLER und G. TINO. Doppler-free spectroscopy using magnetically induced dichroism of atomic vapor: a new scheme for laser frequency locking. *The European Physical Journal D* **22** (2003), 279–283.
- [82] W. DEMTRÖDER. *Experimentalphysik 3*. 3. Auflage. Springer Verlag 2005.
- [83] T. HOF, D. FICK und H. JÄNSCH. Application of diode lasers as a spectroscopic tool at 670 nm. *Optics Communications* **124** (1996), 283–286.
- [84] S. D. SALIBA und R. E. SCHOLTEN. Linewidths below 100 kHz with external cavity diode lasers. *Applied optics* **48** (2009), 6961–6966.
- [85] T. FÜHRER und T. WALTHER. Extension of the mode-hop-free tuning range of an external cavity diode laser based on a model of the mode-hop dynamics. *Optics letters* **33** (2008), 372–374.
- [86] T. W. HANSCH und B. COUILLAUD. Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reference cavity. *Optics Communications* **35** (1980), 441–444.
- [87] R. LANG und K. KOBAYASHI. External optical feedback effects on semiconductor injection laser properties. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **16** (1980), 347–355.
- [88] J. BAUMERT, P. GÜNTER und H. MELCHIOR. High efficiency second-harmonic generation in KNbO₃ crystals. *Optics communications* **48** (1983), 215–220.
- [89] J. BAUMERT, J. HOFFNAGLE und P. GÜNTER. High-efficiency intracavity frequency doubling of a styryl-9 dye laser with KNbO₃ crystals. *Applied Optics* **24** (1985), 1299–1301.

-
- [90] A. SMITH. SNLO v51. <http://www.as-photonics.com/snlo> (2015).
- [91] A. BERTZ. Charakterisierung eines Titan:Saphier-Lasers. Diplomarbeit. Technische Universität Darmstadt, 2005.
- [92] G. BOYD und D. KLEINMAN. Parametric interaction of focused Gaussian light beams. *Journal of Applied Physics* **39** (1968), 3597–3639.
- [93] H. MABUCHI, E. POLZIK und H. KIMBLE. Blue-light-induced infrared absorption in KNbO₃. *Journal of the Optical Society of America B* **11** (1994), 2023–2029.
- [94] J.-J. ZONDY. Comparative theory of walkoff-limited type-II versus type-I second harmonic generation with gaussian beams. *Optics Communications* **81** (1991), 427–440.
- [95] K. KATO. High-Efficiency Second-Harmonic Generation at 4250-4680 Å in KNbO₃. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **15** (1979), 410–411.
- [96] D. G. MATTHEWS, R. S. CONROY, B. D. SINCLAIR und N. MACKINNON. Blue microchip laser fabricated from Nd:YAG and KNbO₃(3). *Optics Letters* **21** (1996), 198–200.
- [97] W. XING, H. LOOSER, H. WÜEST und H. AREND. Progress in KNbO₃ crystal growth. *Journal of Crystal Growth* **78** (1986), 431–437.
- [98] O. S. BROZEK, V. QUETSCHKE, A. WICHT und K. DANZMANN. Highly efficient cw frequency doubling of 854 nm GaAlAs diode lasers in an external ring cavity. *Optics Communications* **146** (1998), 141–146.
- [99] L. GOLDBERG, L. BUSSE und D. MEHUYS. High power continuous wave blue light generation in KNbO₃ using semiconductor amplifier seeded by a laser diode. *Applied Physics Letters* **63** (1993), 2327–2329.
- [100] L. E. BUSSE, L. GOLDBERG, M. R. SURETTE und G. MIZELL. Absorption losses in MgO-doped and undoped potassium niobate. *Journal of Applied Physics* **75** (1994), 1102.
- [101] M. BODE, I. FREITAG, A. TÜNNERMANN und H. WELLING. Frequency-tunable 500-mW continuous-wave all-solid-state single-frequency source in the blue spectral region. *Optics Letters* **22** (1997), 1220–1222.
- [102] P. LODAHL, J. SØRENSEN und E. POLZIK. High efficiency second harmonic generation with a low power diode laser. *Applied Physics B* **386** (1997), 383–386.
- [103] E. S. POLZIK und H. J. KIMBLE. Frequency doubling with KNbO₃ in an external cavity. *Optics Letters* **16** (1991), 1400–1402.
- [104] L. SARGER, E. FREYSZ, B. COUILLAUD und A. DUCASSE. High resolution Doppler Free Spectroscopy of Mercury Lines in the UV Domain. *Optics Communications* **61** (1987), 26–32.
- [105] C. J. SANSONETTI und D. VEZA. Doppler-free measurement of the 546 nm line of mercury. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **43** (2010), 205003.

- [106] G. G. LISTER, J. E. LAWLER, W. P. LAPATOVICH und V. A. GODYAK. The physics of discharge lamps. *Reviews of Modern Physics* **76** (2004), 541–598.
- [107] Q. SUN, W. ZHUANG, Z. LIU und J. CHEN. Electrodeless-discharge-vapor-lamp-based Faraday anomalous-dispersion optical filter. *Optics Letters* **36** (2011), 4611–4613.
- [108] J. G. COFFER und J. C. CAMPARO. Rf-Power and the Ring-Mode To Red-Mode Transition in an Inductively Coupled Plasma. *Journal of Applied Physics* **111** (2012), 083304.
- [109] C. I. SUKENIK und H. C. BUSCH. A rf discharge cell for saturated absorption spectroscopy of metastable argon. *Review of Scientific Instruments* **73** (2002), 493–494.
- [110] V. L. VENKATRAMAN. Microfabricated rubidium dielectric barrier discharge light sources for portable atomic clocks. Dissertation. ÉCOLE POLYTECHNIQUE FÉDÉRALE DE LAUSANNE, 2013.
- [111] V. KAUFMAN. Wavelengths, energy levels, and pressure shifts in mercury 198. *Journal of the Optical Society of America* **52** (1962), 866–870.
- [112] D. PERRIN und J. JEANNET. Complete spectral profile of the $6^1S_0 - 6^3P_1$ mercury line perturbed by argon. *Journal de Physique* **42** (1981), 1607–1610.
- [113] D. VEZA, M. L. SALIT, C. J. SANSONETTI und J. C. TRAVIS. Wave numbers and Ar pressure-induced shifts of 198 Hg atomic lines measured by Fourier transform spectroscopy. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **38** (2005), 3739–3753.
- [114] M. ZINNER. Untersuchung an lasergekühlten und gespeicherten metastabilen Neon-Atomen. Dissertation. Universität Hannover, 2002.
- [115] U. VOGL, C. PEUNTINGER, N. Y. JOLY, P. S. RUSSELL, C. MARQUARDT und G. LEUCHS. Atomic mercury vapor inside a hollow-core photonic crystal fiber. *Optics Express* **22** (2014), 29375.
- [116] M. MÜRTZ, M. SCHAEFER, T. GEORGE, J. S. WELLS und W. URBAN. Optically stabilized tunable diode-laser system for saturation spectroscopy. *Applied Physics B Laser and Optics* **60** (1995), 31–37.
- [117] P. J. BLAISE und H. CHANTREL. Structures hyperfines de raies du spectre d’arc du mercure et moment quadrupolaire de ^{201}Hg . *JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM* **18** (1957), 193–200.
- [118] W. M. YOUNG, R. S. FEIGELSON, D. H. JUNDT und M. M. FEJER. Influence of composition of MgO-doped lithium niobate on phase-matching temperature for frequency doubling in the visible. *Journal of Applied Physics* **69** (1991), 7372.
- [119] P. HERSKIND, J. LINDBALLE, C. CLAUSEN, J. L. SØRENSEN und M. DREWSSEN. Second-harmonic generation of light at 544 and 272 nm from an ytterbium-doped distributed-feedback fiber laser. *Optics Letters* **32** (2007), 268–270.

-
- [120] F. S. CHEN. Optically induced change of refractive indices in LiNbO₃ and LiTaO₃. *Journal of Applied Physics* **40** (1969), 3389–3396.
- [121] C. DELSART und J.-C. KELLER. Laser-induced dichroism and birefringence in two- and three-level systems of neon. *Journal of Applied Physics* **49** (1978), 3662.
- [122] B. SMEETS, R. BOSCH, P. van der STRATEN, E. te SLIGTE, R. SCHOLTEN, H. BEIJERINCK und K. van LEEUWEN. Laser frequency stabilization using an Fe-Ar hollow cathode discharge cell. *Applied Physics B: Lasers and Optics* **76** (2003), 815–819.
- [123] F. MORON, a. L. HOENDERVANGER, M. BONNEAU, Q. BOUTON, A. ASPECT, D. BOIRON, D. CLÉMENT und C. I. WESTBROOK. An oscillator circuit to produce a radio-frequency discharge and application to metastable helium saturated absorption spectroscopy. *Review of Scientific Instruments* **83** (2012), 044705.
- [124] M. D. RAYMAN, C. G. AMINOFF und J. L. HALL. Precise laser frequency scanning using frequency-synthesized optical frequency sidebands: application to isotope shifts and hyperfine structure of mercury. *Journal of the Optical Society of America B* **6** (1989), 539.
- [125] J. HULT, L. S. BURNS und C. F. KAMINSKI. Wide-bandwidth mode-hop-free tuning of extended-cavity GaN diode lasers. *Applied Optics* **44** (2005), 3675–3685.
- [126] W. BURKETT. Influence of injection-current noise on the spectral characteristics of semiconductor lasers. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **33** (1997), 2111–2118.
- [127] H. NOH. Analytical Study of Polarization Spectroscopy for the $J_g = 0 \rightarrow J_e = 1$ Transition. *Journal of the Optical Society of Korea* **17** (2013), 279–282.
- [128] E. C. BENCK, J. E. LAWLER und J. T. DAKIN. Lifetimes, branching ratios, and absolute transition probabilities in Hg I. *Journal of the Optical Society of America B* **35** (1989), 11–22.
- [129] C. J. SANSONETTI, M. L. SALIT und J. READER. Wavelengths of spectral lines in mercury pencil lamps. *Applied Optics* **35** (1996), 74–77.
- [130] A. SEIFERT, M. SINTHER, T. WALTHER und E. S. FRY. Narrow-linewidth, multi-Watt Yb-doped fiber amplifier at 1014.8 nm. *Applied Optics* **45** (2006), 7908–7911.
- [131] T. BECK, B. REIN, F. SÖRENSEN und T. WALTHER. Solid-state based laser system as a replacement for Ar⁺ lasers. *Optics Letters* **41** (2016), 4186–4189.
- [132] X. BAILLARD, A. GAUGUET, S. BIZE, P. LEMONDE, P. LAURENT, A. CLAIRON und P. ROSENBUSCH. Interference-filter-stabilized external-cavity diode lasers. *Optics Communications* **266** (2006), 609–613.
- [133] K. KONDO, M. OKA, H. WADA, T. FUKUI, N. UMEZU, K. TATSUKI und S. KUBOTA. Demonstration of long-term reliability of a 266-nm, continuous-wave, frequency-quadrupled solid-state laser using β -BaB₂O₄. *Optics Letters* **23** (1998), 195–197.
- [134] M. SCHEID, F. MARKERT, J. WALZ, J. WANG, M. KIRCHNER und T. W. HÄNSCH. 750 mW continuous-wave solid-state deep ultraviolet laser source at the 253.7 nm transition in mercury. *Optics Letters* **32** (2007), 955–957.

- [135] A. STEINBACH, M. RAUNER, F. CRUZ und J. BERGQUIST. CW second harmonic generation with elliptical Gaussian beams. *Optics Communications* **123** (1996), 207–214.
- [136] D. S. ELLIOTT, R. ROY und S. J. SMITH. Extracavity laser band-shape and bandwidth modification. *Physical Review A* **26** (1982), 12–18.
- [137] Schriftliche Mitteilung der Firma Precision Glassblowing (2014).
- [138] D. S. HOBBS, B. D. MACLEOD, E. SABATINO, J. A. BRITTEN und C. J. STOLZ. Contamination resistant antireflection nano-textures in fused silica for laser optics. *Proceedings SPIE 8885, Laser-Induced Damage in Optical Materials* **8885** (2013), 88850J.
- [139] R. W. BOYD. Density Matrix Calculation of the Linear Susceptibility. In: *Nonlinear Optics*. Hrsg. von R. W. BOYD. Academic Press 1992, 126–133.
- [140] B. HENRICH. Untersuchung elektromagnetisch induzierter Transparenz für das kontinuierliche Vier-Wellen-Mischen. Dissertation. Ludwig-Maximilians-Universität München, 2005.
- [141] S. M. SKOFF, R. J. HENDRICKS, C. D. J. SINCLAIR, J. J. HUDSON, D. M. SEGAL, B. E. SAUER, E. A. HINDS und M. R. TARBUTT. Diffusion, thermalization, and optical pumping of YbF molecules in a cold buffer-gas cell. *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* **83** (2011), 023418.
- [142] T. OKOSHI, K. KIKUCHI und A. NAKAYAMA. Novel method for high resolution measurement of laser output spectrum. *Electronics Letters* **16** (1980), 630.
- [143] K. PETERMANN. Noise characteristics of solitary laser diodes. In: *Laser diode modulation and noise*. Kluwer Academic Publishers 1988. Kap. 7, 152–208.
- [144] L. B. MERCER. 1/f Frequency Noise Effects on Self-Heterodyne Linewidth Measurements. *Journal of Lightwave Technology* **9** (1991), 485–493.
- [145] P. GALLION und G. DEBARGE. Quantum phase noise and field correlation in single frequency semiconductor laser systems. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **20** (1984), 343–349.
- [146] G. STÉPHAN, T. TAM, S. BLIN, P. BESNARD und M. TÊTU. Laser line shape and spectral density of frequency noise. *Physical Review A* **71** (2005), 043809.
- [147] C. H. HENRY. Theory of the linewidth of semiconductor lasers. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **18** (1982), 259–264.
- [148] A. L. SCHAWLOW und C. H. TOWNES. Infrared and optical masers. *Physical Review* **112** (1958), 1940–1949.
- [149] S. BARTALINI, S. BORRI, I. GALLI, G. GIUSFREDI, D. MAZZOTTI, T. EDAMURA, N. AKIKUSA, M. YAMANISHI und P. DE NATALE. Measuring frequency noise and intrinsic linewidth of a room-temperature DFB quantum cascade laser. *Optics Express* **19** (2011), 17996.

-
- [150] J. GUAN, S. GUO, J. WANG, M. TAO, J. CAO und F. GAO. Analysis of origin of measured $1/f$ noise in high-power semiconductor laser diodes far below threshold current. *Microelectronics Reliability* **59** (2016), 55–59.
- [151] S. VICIANI, M. GABRYSCH, F. MARIN, F. MONTI DI SOPRA, M. MOSER und K. H. GULDEN. Lineshape of a vertical cavity surface emitting laser. *Optics Communications* **206** (2002), 89–97.
- [152] B. RÖSENER, S. KASPAR, M. RATTUNDE, T. TÖPPER, C. MANZ, K. KÖHLER, O. AMBACHER und J. WAGNER. $2\ \mu\text{m}$ semiconductor disk laser with a heterodyne linewidth below 10 kHz. *Optics Letters* **36** (2011), 3587–3589.
- [153] H. LUDVIGSEN, M. TOSSAVAINEN und M. KAIVOLA. Laser linewidth measurements using self-homodyne detection with short delay. *Optics Communications* **155** (1998), 180–186.
- [154] M. MYARA, A. GARNACHE, A. BOUCHIER, J.-P. PEREZ, P. SIGNORET, I. SAGNES und D. ROMANINI. Frequency Noise Contributions in External Cavity VCSELS using Homodyne Spectrum Analysis. Proceedings 12e Journées Nano Micro et Optoélectronique (2008).
- [155] C. RAUSCHER, V. JANSSEN und R. MINI HOLD. *Grundlagen der Spektrumanalyse*. Rohde & Schwarz GmbH & Co. KG 2000.
- [156] G. GENTY, M. KAIVOLA und H. LUDVIGSEN. Measurements of linewidth variations within external-cavity modes of a grating-cavity laser. *Optics Communications* **203** (2002), 295–300.
- [157] F. MARKERT, M. SCHEID, D. KOLBE und J. WALZ. 4W continuous-wave narrow-linewidth tunable solid-state laser source at 546 nm by externally frequency doubling a ytterbium-doped single-mode fiber laser system. *Optics Express* **15** (2007), 453–458.
- [158] E. S. POLZIK, J. CARRI und H. J. KIMBLE. Spectroscopy with squeezed light. *Physical Review Letters* **68** (1992), 3020–3023.
- [159] R. PASCHOTTA, M. COLLETT, P. KÜRZ, K. FIEDLER, H. A. BACHOR und J. MLYNEK. Bright squeezed light from a singly resonant frequency doubler. *Physical Review Letters* **72** (1994), 3807–3810.
- [160] H. TSUCHIDA. Generation of amplitude-squeezed light at 431 nm from a singly resonant frequency doubler. *Optics Letters* **20** (1995), 2240–2242.
- [161] A. SIZMANN, R. J. HOROWICZ, G. WAGNER und G. LEUCHS. Observation of amplitude squeezing of the up-converted mode in second harmonic generation. *Optics Communications* **80** (1990), 138–142.
- [162] A. KRAMIDA, YU. RALCHENKO, J. READER und NIST ASD TEAM. NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.3), [Online]. Available: <http://physics.nist.gov/asd> [2016, July 26]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD. (2015).

- [163] J. E. SANSONETTI und W. C. MARTIN. Handbook of basic atomic spectroscopic data. *Journal of Physical and Chemical Reference Data* **34** (2005), 1559–2259.
- [164] N. HAYASHI, A. FUJISAWA, H. KIDO, K. TAKAHASHI und M. MITSUNAGA. Interference between electromagnetically induced transparency and two-step excitation in three-level ladder systems. *Journal of the Optical Society of America B* **27** (2010), 1645–1650.
- [165] Z.-S. HE, J.-Y. SU, H.-R. CHEN, W.-F. CHEN, M.-H. SIE, J.-Y. YE und C.-C. TSAI. Low-light-level ladder-type electromagnetically induced transparency and two-photon absorption. *Journal of the Optical Society of America B* **31** (2014), 2485–2490.
- [166] T. ANDERSON, J. MAGNUSON und R. LUCHT. Diode-laser-based sensor for ultraviolet absorption measurements of atomic mercury. *Applied Physics B* **87** (2007), 341–353.
- [167] C. YE und A. S. ZIBROV. Width of the electromagnetically induced transparency resonance in atomic vapor. *Physical Review A* **65** (2002), 023806.
- [168] G. GRYNBERG, F. BIRABEN, M. BASSINI und B. CAGNAC. Three-photon Doppler-Free spectroscopy: Experimental evidence. *Physical Review Letters* **37** (1976), 283–285.
- [169] J. GEA-BANACLOCHE, Y. Q. LI, S. Z. JIN und M. XIAO. Electromagnetically induced transparency in ladder-type inhomogeneously broadened media: Theory and experiment. *Physical Review A* **51** (1995), 576–584.
- [170] Y. Q. LI, S. Z. JIN und M. XIAO. Observation of an electromagnetically induced change of absorption in multilevel rubidium atoms. *Physical Review A* **51** (1995), 1754–1757.
- [171] K. KIM, M. KWON, H. D. PARK, H. S. MOON, H. S. RAWAT, K. AN und J. B. KIM. Electromagnetically induced absorption spectra depending on intensities and detunings of the coupling field in Cs vapour. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **34** (2001), 4801–4808.
- [172] D. BHATTACHARYYA. The pump induced Autler–Townes effect and Autler–Townes mixing in four-level atoms. *Journal of Optics B: Quantum and Semiclassical Optics* **6** (2004), 563–567.
- [173] H. S. MOON und H.-R. NOH. Atomic coherences of on-resonant and off-resonant two-photon absorptions in a ladder-type atomic system. *Journal of the Optical Society of America B* **31** (2014), 1217–1222.
- [174] W. DEMTRÖDER. Statische Magnetfelder. In: *Experimentalphysik 2*. 5th. Springer Verlag 2009, 85–126.
- [175] T. MAYER-KUCKUCK. *Atomphysik*. 3rd. B.G. Teubner 1985.
- [176] X. G. WEI, J. H. WU, G. X. SUN, Z. SHAO, Z. H. KANG, Y. JIANG und J. Y. GAO. Splitting of an electromagnetically induced transparency window of rubidium atoms in a static magnetic field. *Physical Review A* **72** (2005), 023806.

-
- [177] D. J. FULTON, R. R. MOSELEY, S. SHEPHERD, B. D. SINCLAIR und M. H. DUNN. Effects of Zeeman splitting on electromagnetically-induced transparency. *Optics Communications* **116** (1995), 231–239.
- [178] NATIONAL CENTERS FOR ENVIRONMENTAL INFORMATION. Magnetic Field Calculators, [Online]. Available: <https://www.ngdc.noaa.gov/geomag/magfield.shtml> [2016, August 08]. (2016).
- [179] T. KESSLER, C. HAGEMANN, C. GREBING, T. LEGERO, U. STERR, F. RIEHLE, M. J. MARTIN, L. CHEN und J. YE. A sub-40-mHz-linewidth laser based on a silicon single-crystal optical cavity. *Nature Photonics* **6** (2012), 687–692.
- [180] A. SCHOOF, J. GRÜNERT, S. RITTER und A. HEMMERICH. Reducing the linewidth of a diode laser below 30 Hz by stabilization to a reference cavity with a finesse above 10^5 . *Optics Letters* **26** (2001), 1562–1564.
- [181] A. D. LUDLOW, X. HUANG, M. NOTCUTT, T. ZANON-WILLETTE, S. M. FOREMAN, M. M. BOYD, S. BLATT und J. YE. Compact, thermal-noise-limited optical cavity for diode laser stabilization at 1×10^{-15} . *Optics Letters* **32** (2007), 641–643.
- [182] J. ALNIS, A. MATVEEV, N. KOLACHEVSKY, T. UDEM und T. W. HÄNSCH. Subhertz linewidth diode lasers by stabilization to vibrationally and thermally compensated ultralow-expansion glass Fabry-Pérot cavities. *Physical Review A* **77** (2008), 053809.
- [183] W. HEERING. UV SOURCES – Basics, Properties and Applications. *Iuva News* **6** (2004), 7–13.
- [184] M. TAKEOKA, T. NAKATA und F. KANNARI. Low-threshold amplification of vacuum-ultraviolet radiation in bichromatically driven Kr gases. *Journal of the Optical Society of America B* **15** (1998), 2967–2974.
- [185] K. WALL und A. SANCHEZ. Titanium Sapphire lasers. *The Lincoln laboratory journal* **3** (1990), 447–462.
- [186] H. J. METCALF und P. van der STRATEN. Power Broadening and Saturation. In: *Laser Cooling and Trapping*. Springer Verlag 2002, 24–28.
- [187] W. G. SCHWEITZER, JR. Hyperfine Structure and Isotope Shifts in the 2537-Å Line of Mercury by a New Interferometric Method. *Journal of the Optical Society of America* **53** (1963), 1055–1072.
- [188] S. YIN, H. LIU, J. QIAN, T. HONG, Z. XU und Y. WANG. Observation and optimization of DAVLL spectra on the $^1S_0 - ^3P_1$ transition of neutral mercury atom. *Optics Communications* **285** (2012), 5169–5174.
- [189] J. E. SANSONETTI, W. MARTIN und S. YOUNG. Handbook of Basic Atomic Spectroscopic Data (ver. 1.1.2), [Online]. Available: <http://physics.nist.gov/Handbook> [2016, July 26]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD. (2015).

Veröffentlichungen und Tagungsbeiträge

Veröffentlichungen in internationalen, begutachteten Fachzeitschriften

- L. TOMBEZ, S. SCHILT, J. DI FRANCESCO, T. FUEHRER, B. REIN, T. WALTHER, G. DI DOMENICO, D. HOFSTETTER und P. THOMANN, Linewidth of a quantum-cascade laser assessed from its frequency noise spectrum and impact of the current driver. *Applied Physics B: Lasers and Optics* **109** (2012), 407–414.
- M. STURM, B. REIN, T. WALTHER und R. WALSER, Feasibility of UV lasing without inversion in mercury vapor. *Journal of the Optical Society of America B* **31** (2014), 1964.
- B. REIN, M. STURM, R. WALSER und T. WALTHER, Towards Lasing Without Inversion in Neutral Mercury. *Journal of Physics: Conference Series* **594** (2015), 012007
- D. WINTERS, T. BECK, G. BIRKL, C. DIMOPOULOU, V. HANNEN, T. KÜHL, M. LOCHMANN, M. LOESER, X. MA, F. NOLDEN, W. NÖRTERSCHÄUSER, B. REIN, R. SANCHEZ, U. SCHRAMM, M. SIEBOLD, P. SPILLER, M. STECK, T. STÖHLKER, J. ULLMANN, T. WALTHER, W. WENS, J. YANG, D. ZHANG und M. BUSSMANN, Laser cooling of relativistic heavy-ion beams for FAIR. *Physica Scripta* **T166** (2015), 014048
- H. B. WANG, X. MA, W. WEN, Z. HUANG, D. ZHANG, B. HAI, X. ZHU, D. ZHAO, J. LI, X. MA, T. YAN, R. MAO, T. ZHAO, J. WU, J. YANG, Y. YUAN, J. XIA, M. LOESER, M. SIEBOLD, U. SCHRAMM, O. BOINE-FRANKENHEIM, L. EIDAM, D. WINTERS, G. BIRKL, B. REIN, T. WALTHER und M. BUSSMANN, Progress of laser cooling of 12 C 3+ ions at the CSRe. *Journal of Physics: Conference Series* **635** (2015), 022080
- W. WEN, H. WANG, Z. HUANG, D. ZHANG, B. HAI, X. ZHU, X. CHUAI, D. ZHAO, J. YANG, J. LI, X. LI, L. MAO, R. MAO, J. WU, J. XIA, J. YANG, Y. YUAN, H. ZHAO, T. ZHAO, L. EIDAM, M. LOESER, B. REIN, M. SIEBOLD, D. WINTERS, M. BUSSMANN und X. MA, Recent progress on laser cooling of relativistic Lithium-like 12C3+ ion beams at heavy ion storage ring CSRe. *Scientia Sinica Physica, Mechanica & Astronomica* **46** (2016), 053001
- T. BECK, B. REIN, F. SÖRENSEN und T. WALTHER, Solid-state based laser system as a replacement for Ar⁺ lasers. *Optics Letters* **41** (2016), 4186-4189.

Beiträge zu internationalen Tagungen*

- T. BECK, B. REIN und T. WALTHER, Laser System for Laser Cooling Relativistic Ion Beams and Dipole Traps, 22nd International Conference on Atomic Physics, Cairns (2010).

- T. FÜHRER, T. BECK, B. REIN und T. WALTHER, Novel ECDL and Fiber Amplifier Techniques for Spectroscopy and other Applications, French-German Research: 50 Years in the light of the Laser, Berlin (2010)
- D. WINTERS, C. CLARK, C. DIMOPOULOU, T. GIACOMINI, C. KOZHUHAROV, T. KUEHL, Y. LITVINOV, M. LOCHMANN, W. NOERTERSHAEUSER, F. NOLDEN, R. MARCELO, S. ALARCON, S. SANJARI, M. STECK, T. STOEHLKER, J. ULLMANN, M. SIEBOLD, M. BUSSMANN, U. SCHRAMM, M. SELTMANN, X. MA, W. WEN, J. YANG, D. ZHANG, T. BECK, G. BIRKL, B. REIN, S. TICHELMANN und T. WALTHER, Broadband laser cooling of relativistic C³⁺ ions at the ESR, COOL'13 Murren, Switzerland (2013)
- W. WEN, D. WINTERS, T. BECK, B. REIN, T. WALTHER, S. TICHELMANN, G. BIRKL, R. SANCHEZ-ALARCON, J. ULLMANN, M. LOCHMANN, W. NÖRTERSCHÄUSER, C. CLARK, C. KOZHUHAROV, T. KÜHL, S. SANJARI, Y. LITVINOV, T. GIACOMINI, M. STECK, C. DIMOPOULOU, F. NOLDEN, T. STÖHLKER, J. YANG, D. ZHANG, X. MA, M. SELTMANN, M. SIEBOLD, U. SCHRAMM und M. BUSSMANN, Laser cooling of stored relativistic ion beams with large momentum spreads using a laser system with a wide detuning range, International Conference On Photonic, Electronic and Atomic Collision, Lanzhou, China (2013)
- T. BECK, B. REIN und T. WALTHER, An all-solid-state Argon ion laser replacement, CLEO:2013 JTh2A.66, Optical Society of America, San Jose, California (2013)
- B. REIN und T. WALTHER, Towards Lasing Without Inversion in mercury at 253.7 nm, CLEO:2013 JTh2A.79, Optical Society of America, San Jose, California (2013)
- M. BUSSMANN, M. LÖSER, M. SELTMANN, M. SIEBOLD, U. SCHRAMM, D. WINTERS, C. KOZHUHAROV, S. SANJARI, Y. LITVINOV, T. GIACOMINI, M. STECK, C. DIMOPOULOU, F. NOLDEN, T. STÖHLKER, T. BECK, B. REIN, T. WALTHER, S. TICHELMANN, G. BIRKL, R. SANCHEZ-ALARCON, J. ULLMANN, M. LOCHMANN, W. NÖRTERSCHÄUSER, W. WEN, J. YANG, D. ZHANG und X. MA, Laser cooling of hot, relativistic ion beams - experiments at ESR and beyond, HCI'14 - 17th International Conference on the Physics of Highly Charged Ions, San Carlos de Bariloche, Argentina (2014)
- D. WINTERS, C. DIMOPOULOU, T. GIACOMINI, C. KOZHUHAROV, T. KÜHL, Y. LITVINOV, M. LOCHMANN, W. NÖRTERSCHÄUSER, F. NOLDEN, R. SANCHEZ, S. SANJARI, M. STECK, T. STÖHLKER, J. ULLMANN, T. BECK, G. BIRKL, B. REIN, S. TICHELMANN, T. WALTHER, X. MA, W. WEN, J. YANG, D. ZHANG, M. LÖSER, U. SCHRAMM, M. SELTMANN, M. SIEBOLD und M. BUSSMANN, Laser cooling of hot, relativistic ion beams at FAIR, STORI'14 - 9th International Conference on Nuclear Physics at Storage Rings, St. Goar (2014)

Beiträge zu nationalen Tagungen*

- B. REIN, T. BECK und T. WALTHER, Faserverstärker-basierter Ar⁺-Lasersersatz, DPG Verhandlungen Q 21.73, Hannover (2010)

-
- F. FÜHRER, B. REIN und T. WALTHER, Modellierung und Anwendung eines Verfahrens zur Verbesserung der Eigenschaften von Laserdioden mit externem Resonator (ECDL), DPG Verhandlungen Q 33.7, Hannover (2010)
 - T. BECK, B. REIN und T. WALTHER, A new laser system for ion beam cooling at the ESR, Physics Prospects at the ESR and HITRAP, Eisenach (2010)
 - M. BUSSMANN, F. KROLL, M. LÖSER, M. SIEBOLD, U. SCHRAMM, W. WEN, D. WINTERS, T. BECK, B. REIN, T. WALTHER, G. BIRKL, W. NÖRTERSCHÄUSER, T. KÜHL, C. NOVOTNY, C. KOZHUHAROV, C. GEPPERT, M. STECK, C. DIMOPOULOU, F. NOLDEN, X. MA und T. STÖHLKER, Overview of laser cooling relativistic C³⁺ ion beams at ESR, DPG Verhandlungen Q 27.4, Dresden (2011)
 - B. REIN, T. BECK und T. WALTHER, Faserverstärker basierter Ersatz für einen Ar + Laser, DPG Verhandlungen Q 15.40, Dresden (2011)
 - T. BECK, B. REIN und T. WALTHER, Faserverstärker-basierter Ar-Ionen Laser Ersatz, DPG Verhandlungen Q 21.7, Dresden (2011)
 - B. REIN und T. WALTHER, Auf dem Weg zu Lasing Without Inversion in Quecksilber bei einer Wellenlänge von 253,7 nm bzw. 185 nm, DPG Verhandlungen Q 54.68, Stuttgart (2012)
 - M. BUSSMANN, M. SELTMANN, M. SIEBOLD, U. SCHRAMM, W. WEN, D. WINTERS, T. BECK, B. REIN, T. WALTHER, S. TICHELMANN, G. BIRKL, R. SANCHEZ-ALARCON, J. ULLMANN, M. LOCHMANN, W. NÖRTERSCHÄUSER, C. CLARK, C. KOZHUHAROV, M. STECK, C. DIMOPOULOU, F. NOLDEN, D. ZHANG, X. MA, T. STÖHLKER, S. SANJARI, T. GIACOMINI and J. YANG, Broadband Lasercooling of Relativistic Ion Beams at ESR, DPG Verhandlungen KH 83.3, Dresden (2013)
 - D. WINTERS, C. CLARK, C. DIMOPOULOU, T. GIACOMINI, C. KOZHUHAROV, T. KÜHL, M. LOCHMANN, W. NÖRTERSCHÄUSER, F. NOLDEN, R. SANCHEZ, S. SANJARI, M. STECK, T. STÖHLKER, J. ULLMANN, T. BECK, G. BIRKL, B. REIN, S. TICHELMANN, T. WALTHER, X. MA, W. WEN, J. YANG, D. ZHANG, U. SCHRAMM, M. SELTMANN, M. SIEBOLD und M. BUSSMANN, Broadband lasercooling of relativistic ions at the ESR, DPG Verhandlungen A 10.6, Hannover (2013)
 - T. BECK, B. REIN und T. WALTHER, Vollständig festkörperbasierter Ar⁺-Laserersatz, DPG Verhandlungen Q 43.5, Hannover (2013)
 - B. REIN und T. WALTHER, Lasing Without Inversion in Quecksilber, DPG Verhandlungen Q 35.96, Hannover (2013)
 - M. BUSSMANN, D. WINTERS, W. WEN, C. DIMOPOULOU, T. GIACOMINI, C. KOZHUHAROV, T. KÜHL, Y. LITVINOV, M. LOCHMANN, W. NÖRTERSCHÄUSER, F. NOLDEN, R. SANCHEZ, S. SANJARI, M. STECK, T. STÖHLKER, J. ULLMANN, T. BECK, G. BIRKL, B. REIN, S. TICHELMANN, T. WALTHER, X. MA, D. ZHANG, M. LÖSER, M. SELTMANN, M. SIEBOLD und U.

SCHRAMM, Cooling Relativistic Ion Beams of initially large Momentum Spread with a fast scanning cw Laser System, DPG Verhandlungen A46.5, Berlin (2014)

- B. REIN, J. HECK und T. WALTHER, Frequenzstabilisierung zweier Lasersysteme auf angeregte Quecksilberübergänge bei 435,8 nm und 546,1 nm für Lasing Without Inversion, DPG Verhandlungen Q 8.8, Berlin (2014)
- M. BUSSMANN, D. WINTERS, W. WEN, C. DIMOPOULOU, T. GIACOMINI, C. KOZHUHAROV, T. KÜHL, Y. LITVINOV, M. LOCHMANN, W. NÖRTERSCHÄUSER, F. NOLDEN, R. SÁNCHEZ, S. SANJARI, M. STECK, T. STÖHLKER, J. ULLMANN, T. BECK, G. BIRKL, B. REIN, S. TICHELMANN, T. WALTHER, X. MA, D. ZHANG, M. LÖSER, M. SELTMANN, M. SIEBOLD und U. SCHRAMM, Gruppenbericht: Laser Cooling of Relativistic Ion Beams with Large Momentum Spreads, DPG Verhandlungen BE 1.1, Dresden (2014)
- B. REIN und T. WALTHER, Lasing Without Inversion in neutralem Quecksilber bei 253,7 nm, DPG Verhandlungen Q 31.57, Heidelberg (2015)
- F. FÜHRER, B. REIN und T. WALTHER, Auswirkung von SHG in einem Überhöhungsresonator auf die spektrale Linienbreite und das Rauschspektrum, DPG Verhandlungen Q 31.71, Heidelberg(2015)
- J. SCHMITT, B. REIN und T. WALTHER, Lasing Without Inversion in Quecksilber bei 253,7 nm, DPG Verhandlungen Q 58.33, Hannover (2016)

Weitere Publikationen

- T. BECK, B. REIN und T. WALTHER, An all solid-state based laser system for laser cooling of relativistic ion beams, GSI Annual Report, 2013
- D. WINTERS, C. CLARK, C. DIMOPOULOU, T. GIACOMINI, C. KOZHUHAROV, T. KÜHL, YU.A. LITVINOV, M. LOCHMANN, W. NÖRTERSCHÄUSER, F. NOLDEN, R. SANCHEZ, S. SANJARI, M. STECK, T. STÖHLKER, J. ULLMANN, T. BECK, G. BIRKL, B. REIN, S. TICHELMANN, T. WALTHER, X. MA, W. WENY , J. YANG, D. ZHANG, U. SCHRAMM, M. SELTMANN, M. SIEBOLD und M. BUSSMANN, Laser cooling of stored relativistic C^{3+} ions at the ESR, GSI Annual Report, 2013

*Vorträge bzw. Poster wurden vom jeweiligen Erstautor gehalten bzw. präsentiert.

Betreute Master- und Bachelorarbeiten

Masterarbeiten

- J. HECK, Stabilisierung eines Lasersystems auf den angeregten Quecksilberübergang $6^3P_1 \leftrightarrow 7^3S_1$. TU Darmstadt, Januar 2014
- J. SCHMITT, Weiterentwicklung eines LWI-Schemas in neutralem Quecksilber. TU Darmstadt, Dezember 2016

Bachelorarbeiten

- S. RAUCH, Aufbau und Charakterisierung eines Lasersystems bei 1092,2 nm innerhalb des LWI-Projekts. TU Darmstadt, August 2012
- P. WEIGL, Realisierung eines ECDL-basierten, inkohärenten Pumpasers bei 404,7 nm. TU Darmstadt, Februar 2013
- J. TESKE, Spektroskopie des $6^3P_0 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergangs in Quecksilber mit einem inkohärenten Rückpumplaser. TU Darmstadt, Oktober 2013
- D. KIEFER, Frequenzstabilisierung mit Hilfe von Polarisationspektroskopie an der 546,1 nm Linie des Quecksilbers. TU Darmstadt, Januar 2014
- S. SCHMID, Stabilisierung eines inkohärenten Rückpumplasers auf den $6^3P_0 \leftrightarrow 7^3S_1$ Übergang bei 404,7 nm für *lasing without inversion*. TU Darmstadt, August 2014
- S. HEPPE, Aufbau eines Überhöhungsresonators zur Frequenzverdopplung auf 253,7 nm. TU Darmstadt, Januar 2015
- S. BÜRKLE, Aufbau und Charakterisierung einer selbst-heterodynen Messmethode zur Bestimmung der Linienbreite von Lasersystemen. TU Darmstadt, Juli 2015

Wissenschaftliche Hausarbeiten

- S. BÜRKLE, Aufbau und Konzeption eines F-Praktikumsversuchs zur spektralen Charakterisierung von Laserstrahlung. TU Darmstadt, Oktober 2015

Danksagung

Abschließend möchte ich mich bei all jenen bedanken die mich in den letzten Jahren während dieser Arbeit begleitet und zu ihrem Gelingen beigetragen haben:

Als erstes möchte ich meinem Doktorvater **Prof. Dr. Thomas Walther** dafür danken, dass er mir dieses spannende und herausfordernde Thema anvertraut hat. Die zahlreichen anregenden Diskussionen und die Freiheiten bei der Umsetzung des Themas haben mich während der gesamten Arbeit hindurch motiviert. Besonders möchte ich mich auch für die zahlreichen Möglichkeiten zur Teilnahme an Konferenzen, hier insbesondere die CLEO in Kalifornien und einen Forschungsaufenthalt in China bedanken. Dies hat meine Zeit in der Arbeitsgruppe sowohl wissenschaftlich als auch persönlich stark bereichert.

Bei **Prof. Dr. Gerhard Birkel** bedanke ich mich herzlich für die Übernahmen des Zweitgutachtens.

Bei **Prof. Dr. Reinhold Walser** bedanke ich mich an dem anhaltenden Interesse an meiner Arbeit, den Diskussionen und ganz besonders für die Motivation einer theoriebezogenen Masterarbeit zu diesem Thema. In diesem Zuge danke ich **Martin Sturm** für die Übernahme der Masterarbeit und die Entwicklung und vor allem auch Weiterentwicklung der Simulation und die Geduld mir diese zu Erklären.

Mein Dank gilt auch der gesamten **Arbeitsgruppe Laser und Quantenoptik**. Die stets kollegiale Atmosphäre, die Hilfsbereitschaft und der Wissensaustausch waren eine große Bereicherung während meiner Zeit in der Gruppe. Besonders möchte ich mich bei meinen Mitdoktoranden **Sabine Euler, David Rupp, Holger John, Daniel Kiefer, Oleg Nikiforov, Peter Weigl, Tobias Beck, Vincenzo Talluto** und **Andreas Rudolf**, sowie den beiden wissenschaftlichen Mitarbeitern **Thorsten Führer** und **Matthias Sinther** für die tatkräftige Unterstützung in allen möglichen Bereichen bedanken. Hervorzuheben ist hierbei **Tobi**, der mich nicht nur in die Welt des Kletterns eingeführt hat, sondern schon während meiner Masterarbeit betreute und mir auch in der Zeit danach ständig mit Rat und Tat zur Seite stand. **Thorsten** möchte ich für den regen Erfahrungsaustausch bei der Entwicklung jeglicher elektronischer Schaltungen und die zahlreichen Hilfestellungen danken, wenn sich mein Linux-System mal wieder verselbstständigte. **Sabine** danke ich für die Unterstützung bei allen möglichen Latex Problemen und die vielen guten Gespräche.

Während meiner Zeit als Doktorand durfte ich zahlreiche Bachelor- und Masterstudenten betreuen, die alle ihren Teil zu diesem Projekt beigetragen haben: **Simon Rauch, Peter**

Weigl, Jan Teske, Daniel Kiefer, Johanna Heck, Simon Schmid, Stefan Heppe, Simon Bürkle und Jochen Schmitt. Mit Eurem Einsatz, sowie Euren Ideen und Einfällen habt ihr alle maßgeblich zum Gelingen dieses Projekts beigetragen, noch dazu hat mir die Betreuung viel Spaß gemacht.

Karen Böhling und **Christiane Walther** haben mit ihrer unkomplizierten Art immer für Licht im bürokratischen Dschungel der Universitätsverwaltung gesorgt. Besonders möchte ich **Karen** danken, dass sie sich mit mir in die geheimnisvolle Welt der Zollgebühren begeben hat.

Wenn dringend exotische elektronische Bauteile benötigt wurden, war immer auf **Herrn Baumann** und seiner schier endlosen Elektro-Fundgrube verlass, während **Herr Schmutzler** mit Komponenten und umfangreichen Wissen im IT-Bereich aushelfen konnte.

Dem gesamten Team der **Feinmechanischen Werkstatt** und insbesondere **Herrn Kalbfleisch** und **Herrn Weick** danke ich für die Umsetzung aller möglichen mechanischen Werkstücke. Egal wie komplex, jedes mechanische Problem wurde mit beeindruckendem Erfahrungsreichtum und Präzision gelöst.

Meinen Kommilitonen und Freunden seit Beginn des Studiums **Britta Leonhäuser, Markus Appel** und **Victor Brasch** möchte ich für die schöne Zeit danken die wir zusammen verbracht haben. Auch wenn sich manche von uns nach dem Master in die Schweiz und nach Frankreich verirrt, konnten wir immer in Kontakt bleiben und uns gegenseitig motivieren.

Außerhalb der Universität konnte ich in meinem **Freundeskreis** und bei meinen **Bandkollegen** den notwendigen Ausgleich finden. Ein ganz besonderer Dank gilt meiner **Familie**, die immer an mich geglaubt und in allen Situationen unterstützt hat. Ein ebenso großer Dank geht an meine Freundin **Helga** die immer an meiner Seite stand und mich selbst in den schwersten Zeiten aufmuntern konnte.