MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR QUANTENOPTIK

Hochauflösende Zweiphotonenspektroskopie am atomaren Wasserstoff

Claus Zimmermann

MPQ 155 Februar 1991

Dieser MPQ-Bericht ist als Manuskript des Autors gedruckt
Alle Rechte vorbehalten

This MPQ-report has been printed as author's manuscript
All rights reserved

Max-Planck-Institut für Quantenoptik
8046 GARCHING bei MÜNCHEN, Bundesrepublik Deutschland

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR QUANTENOPTIK

Hochauflösende Zweiphotonenspektroskopie am atomaren Wasserstoff

Claus Zimmermann

MPQ 155 Februar 1991

ZUSAMMENFASSUNG

Das Wasserstoffatom erlaubt, als einfachstes aller stabilen Atome, einmalig genaue Vergleiche von Theorie und Experiment. Durch spektroskopische Untersuchungen an optischen Übergängen lassen sich sowohl elementare physikalische Gesetze mit großer Genauigkeit testen als auch Naturkonstanten mit hoher Präzision messen. In der vorliegenden Arbeit ist der Aufbau und Betrieb einer Atomstrahlapparatur beschrieben, mit der der optische Übergang des Wasserstoffatoms vom $1S_{1/2}$-Grundzustand in den $2S_{1/2}$-Zustand mit einer relativen Auflösung von $Q = 2.1 \cdot 10^{10}$ beobachtet werden konnte. Die Breite der Resonanzlinie beträgt 60 kHz (bei 243 nm). Der $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergang ist damit die zur Zeit bestaufgelöste Resonanz am Wasserstoff überhaupt. Zukünftige Experimente zur Messung der Rydberg-Konstante und der Lamb-Verschiebung des $1S_{1/2}$-Grundzustands lassen sich dadurch mit einer bis zu hundertfach höheren Genauigkeit durchführen. Eine weitere Steigerung der Auflösung um zwei Größenordnungen ist mit der beschriebenen Apparatur prinzipiell möglich.

Der Übergang wird durch gleichzeitige Absorption zweier Photonen mit einer Wellenlänge bei 243 nm dopplerfrei angeregt. Die dazu notwendige kohärente Strahlung wird durch Frequenzverdoppelung in einem ß-Barium-Borat-Kristall hergestellt. Zur Steigerung der Konversionseffizienz befindet sich der Kristall in einem externen passiven Ringresonator, der die Leistung des Fundamentallichts um einen Faktor 20 resonant überhöht. Bei einer eingestrahlten Lichtleistung von 250 mW (bei 486 nm) können 4 mW ultraviolette Strahlung (bei 243 nm) erzeugt werden. Als Fundamentallichtquelle dient ein kontinuierlicher, durchstimmbarer Farbstofflaser (Coumarin 102), dessen Frequenz, mit Hilfe einer Hochfrequenz-Seitenbandmethode auf die Resonanz eines hoch-

stabilen optischen Referenzresonators stabilisiert ist. Die relative Frequenzabweichung für Mittelungszeiten zwischen 10 ms und 1 s ist dabei kleiner als 5 Hz. Zur Erzeugung der Wasserstoffatome wird das Wasserstoffmolekülgas aus einer Gasflasche in einer Gasentladung dissoziiert und über ein Rohr aus Teflon in eine Vakuumkammer geleitet. Nach Austritt aus einer gekühlten Aluminiumdüse bilden die Atome einen Atomstrahl, der parallel zu einer monochromatischen Stehwelle verläuft. Die Stehwelle wird in einem linearen optischen Resonator gebildet, der die eingestrahlte Leistung bei 243 nm um einen Faktor 10-15 zusätzlich resonant überhöht. Die umlaufende Leistung im Resonator beträgt 15-20 mW. Der Nachweis der angeregten Atome geschieht durch Mischen der Wasserstoffzustände $2S_{1/2}$ und $2P_{1/2}$ in einem schwachen elektrischen Feld und anschließendem Nachweis der dabei entstehenden Lyman-α-Photonen mit einem Photomultiplier.

Die mittlere Verweilzeit der Atome im Licht beträgt 4.3 µs, so daß die Auflösung des Übergangs durch die Energie-Zeit-Unschärfe auf 36 kHz beschränkt wird. Eine zusätzliche Verbreiterung der Resonanzlinie um 30 kHz aufgrund des relativistischen Doppler-Effekts wurde beobachtet. Darüberhinaus konnte der Laser auf die Frequenz des Wasserstoffübergangs stabilisiert werden. Die mittlere Frequenzabweichung beträgt 1 kHz bei einer Mittelungszeit von 5 min. Dies entspricht einer relativen Frequenzstabilität von $1.6 * 10^{-12}$. Die Absolutfrequenz des Wasserstoffübergangs wurde durch Vergleich mit einer genau vermessenen Resonanz von $^{130}Te_2$ bestimmt. Das Ergebnis stimmt mit früheren Messungen gut überein. Dort, wie auch in unserem Experiment, entsteht der Meßfehler hauptsächlich durch Unsicherheiten bei der Vermessung der Tellurresonanz. Eine verbesserte Absolutmessung der Wasserstoffübergangsfrequenz ist deshalb nur bei Verwendung eines genaueren Frequenzstandards möglich.

Weiterhin wurde eine Elektronenkanone konstruiert, mit der die Wasserstoffatome durch Stöße mit Elektronen vom Grundzustand in den $2S_{1/2}$-Zustand angeregt werden können. Dieser so erzeugte metastabile Wasserstoffstrahl wurde zunächst verwendet um den Detektor zu testen. Darüber hinaus läßt er sich in zukünftigen Experimenten für die Spektroskopie an angeregten Wasserstoffzuständen verwenden.

Das hier geschilderte Experiment bildet die Grundlage für eine Reihe geplanter Präzisionsmessungen, die sowohl auf die genauere Bestimmung von Naturkonstanten als auch auf einen Test der Quantenelektrodynamik abzielen. (Eine Beschreibung findet sich in Abschnitt 1.4.)

INHALTSVERZEICHNIS

1.	**Einleitung**	1
1.1	Zur Theorie des Wasserstoffatoms	4
1.2	Aktuelle Messungen am Wasserstoffatom	11
1.3	Thema der Arbeit	15
1.4	Zukünftige Messungen	18
2.	**Experimenteller Aufbau**	22
2.1	Laser und Optik bei 486 nm	23
2.2	Frequenzverdoppelung und UV-Optik	29
2.3	Gasentladung und Atomstrahl	39
2.4	Detektor für metastabilen Wasserstoff	42
3.	**Messungen**	45
3.1	Das $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Spektrum	45
3.2	Linienform und Zählrate	48
3.3	Messung der Absolutfrequenz	51
3.4	Stabilisierung des Lasers auf die Wasserstofflinie	54
3.5	Geschwindigkeitsselektive Spektren	57
4.	**Metastabiler Atomstrahl**	63
4.1	Elektronenkanone	63
4.2	Der metastabile Strahl	67
4.3	Channeltrondetektor	73

A. Anhang 77

A.1 Doppeltresonante Frequenzverdoppelung 78

A.2 Linienform und Zählrate des $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangs 84

A.3 Systematische Einflüsse auf den $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergang 92

A.4 Strahlgeometrie im Ringresonator 96

A.5 Schaltplan zur Stabilisierung des Ringresonators 99

Der im Anhang A.1 abgedruckte Artikel:
"Doubly Resonant Second Harmonic Generation in ß-Barium-Borate",
C. Zimmermann, R. Kallenbach, J. Sandberg, and T. W. Hänsch,
Opt. Commun. 71, 229 (1989) erscheint mit freundlicher Genehmigung
des Verlags.

1. EINLEITUNG

Bei der experimentellen Überprüfung einer physikalischen Theorie besteht eine der Schwierigkeiten darin, Systeme zu finden, die für den Experimentator wie für den Theoretiker in gleichem Maße zugänglich sind. Es gibt tatsächlich nur wenige Fälle, in denen dies möglich ist. Ein klassisches Beispiel hierfür ist das Wasserstoffatom. In der über 100-jährigen Geschichte seiner Erforschung war das Wechselspiel zwischen experimentellen Resultaten, die einer Erklärung bedurften, und neuer Theorien, die auf eine experimentelle Überprüfung warteten, besonders fruchtbar.

Man beginnt die Geschichte des Wasserstoffs üblicherweise mit den Untersuchungen von Balmer und Rydberg Ende der 80er Jahre des vorigen Jahrhunderts. Ihnen gelang es als erste, die diskrete Struktur des Wasserstoffspektrums durch eine empirische Formel zu beschreiben:

$$\frac{1}{\lambda} = R\left(\frac{1}{n_1^2} - \frac{1}{n_2^2}\right)$$

λ ist die Wellenlänge des optischen Übergangs, n eine natürlichen Zahl und R eine Konstante (Rydberg-Konstante). Nach dieser Gleichung lassen sich auch heute noch die Wellenlängen der Wasserstoffübergänge bis auf 4 Stellen richtig berechnen. Danach dauerte es mehr als 20 Jahre, bis es Niels Bohr mit der Entwicklung einer quantisierten, aber immer noch klassischen Theorie erstmals gelang, die Balmersche Formel theoretisch zu deuten und die Rydberg-Konstante R zur Masse und Ladung des Elektrons (m_e und e) und zur Planckschen Konstante h in Beziehung zu setzen:

$$R_\infty = \frac{m_e\, e^4}{8\, \varepsilon_0^2\, h^3\, c}$$

Die Bohrsche Theorie, nach der das Elektron nur auf solchen Bahnen den Atomkern umkreisen kann, deren Bahndrehimpuls ein Vielfaches von $h/2\pi$ beträgt, schien darüber hinaus eine Kardinalfrage der klassischen Theorie zu klären, nach der es zu beantworten galt, warum das Elektron nicht als beschleunigt bewegte Ladung seine Energie abstrahlt und in den Kern stürzt. Eine ausstehende Begründung für die willkürlich eingeführte Bohrsche Quantisierungsbedingung war durch die in den 20er Jahren von Schrödinger und Heisenberg in unterschiedlicher mathematischer Formulierung entwickelte Quantendynamik möglich. Mit ihrer völlig neuen Interpretation physikalischer Begriffe wie Ort und Impuls bildet sie zusammen mit der Relativitätstheorie die Grundlage der modernen Physik überhaupt. Die Grundstruktur des Wasserstoffatoms konnte jetzt zwar befriedigend erklärt werden, die ebenfalls seit langem bekannte Feinstruktur des Spektrums war damit aber noch nicht verstanden. Bereits 1887 beobachteten Michelson und Morley[1] eine Aufspaltung der Balmer-α Linie in zwei Komponenten, die 1916 von Sommerfeld als relativistische Korrektur zum Bohrschen Atommodell gedeutet wurde.[2] Eine erste quantenmechanische Interpretation bei Berücksichtigung des Elektronen-Eigendrehimpulses durch Goudsmit-Uhlenbeck und Thomas[2] bestätigte das Ergebnis von Sommerfeld. Die vollständige relativistische Theorie wurde 1926 von Dirac entwickelt und lieferte als Ergebnis sowohl eine korrekte Beschreibung der damals aktuellen Messungen als auch den Wert für das magnetische Moment des Elektrons. Gleichzeitig sagte die Theorie aber auch die zunächst schwer interpretierbaren Zustände negativer Energie voraus. Eine genaue experimentelle Untersuchung war deshalb umso interessanter. Bis in die Mitte der 40er

Jahre ergab sich jedoch kein klares Bild. Feinstrukturmessungen der Balmer-α-Linie schienen zunächst auf eine Abweichung von der Theorie hinzudeuten[3], mußten später aber korrigiert werden.[4,5] Die Hauptschwierigkeit bestand dabei in der Überwindung des Dopplereffekts, der die Auflösung der optischen Spektren begrenzte. Versuche, die Übergänge zwischen den Feinstruktur-Unterzuständen direkt mit einer Mikrowelle anzuregen, wurden zwar unternommen, blieben aber ohne eindeutiges Ergebnis.[6,7] Erst die während des zweiten Weltkrieges intensiv weiterentwickelte Radartechnik ermöglichte 1947 das sensationelle Experiment von Lamb und Retherford[58]. Durch Mikrowellenspektroskopie an einem Strahl metastabiler Wasserstoffatome konnte ein energetischer Unterschied der Zustände $2S_{1/2}$ und $2P_{1/2}$ von 1.0 GHz eindeutig gemessen werden. Dieses Ergebnis steht im Widerspruch zur Dirac-Theorie, nach der beide Zustände entartet sind, und gab Anlaß für eine intensive theoretische Aktivität, die zur Entwicklung der Quantenelektrodynamik durch Feynman, Schwinger und Tomonaga führte. Sie erklärt die Lambsche Verschiebung des $2S_{1/2}$-Niveaus durch eine Reihe von Effekten, die bei konsequenter Quantisierung des elektromagnetischen Feldes in Erscheinung treten, und sagte eine 8.2-mal größere Verschiebung auch für die Energie des $1S_{1/2}$-Zustands voraus. Durch Fehlen eines Vergleichniveaus kann diese jedoch nicht wie im Fall der $2S_{1/2}$-Verschiebung durch Mikrowellenspektroskopie gemessen werden, sondern ist nur durch eine optische Messung zugänglich. Es mußten zuerst neue spektroskopische Techniken gefunden werden, die die Begrenzung in der Auflösung optischer Übergänge durch den Doppler-Effekt überwinden. Die Erfindung des Lasers und die Entwicklung dopplerfreier Methoden Anfang der 70er Jahre brachte eine bis heute andauernde Serie immer genauerer Messungen mit sich, die die Voraussagen der Quantenelektrodynamik hervorragend bestätigten.

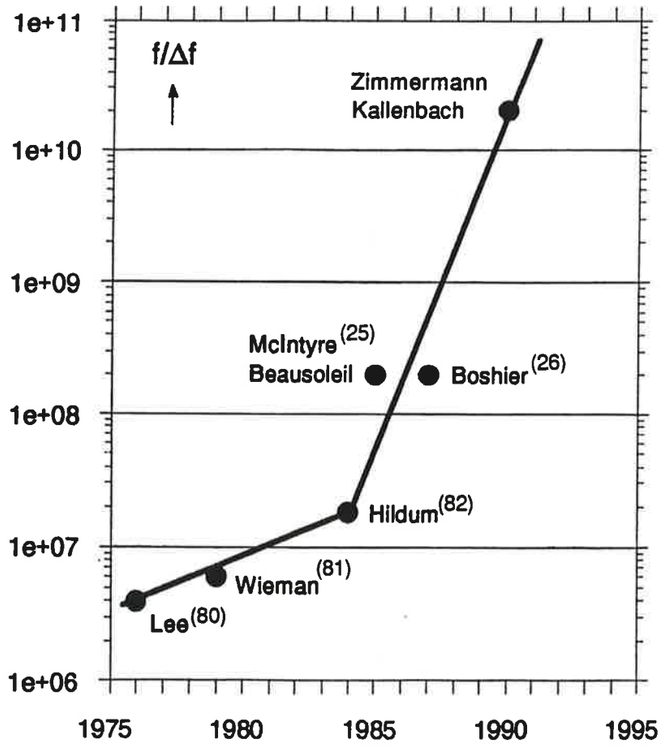


Abb.1.1 Auflösung des Wasserstoff $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangs. Die Zahlen in Klammern beziehen sich auf die Literaturangaben am Ende der Arbeit.

Bevor ich auf zwei neuere Experimente eingehe, ist es nützlich, sich zunächst einen Überblick über die Theorie des Wasserstoffatoms zu verschaffen.

1.1 Zur Theorie des Wasserstoffatoms [8,9]

Die Energie der Wasserstoffzustände kann als Summe der folgenden vier Teile geschrieben werden:

$$E(n,I,J,L,F) = E_{DC}(n,J) + E_{RM}(n,J) + E_{HFS}(n,I,J,L,F) + E_{LS}(n,J,L)$$

mit der üblichen Notation für die Quantenzahlen des Kernspins (I), des Bahndrehimpulses und des Gesamtdrehimpulses des Elektrons (L,J) sowie des Gesamtdrehimpulses des Atoms (F); n ist die Hauptquantenzahl.

1.1.1 Coulomb-Energie, $E_{DC}(n,J)$

$E_{DC}(n,J)$ ist die Energie, wie man sie aus der Dirac-Gleichung erhält. Sie beschreibt ein Elektron in einem Coulomb-Potential mit Zentrum im Koordinatenursprung. Die Bewegung des Kerns ist dabei nicht berücksichtigt. Weiterhin enthält sie die Spin-Bahn-Kopplung und relativistische Korrekturen, also die gesamten Feinstrukturbeiträge.

$$E_{DC}(n,J) = \frac{2Z^2}{N(N+n+\gamma-k)}\, c R_\infty$$

$$k = J \pm \frac{1}{2}$$

$$\gamma = \sqrt{k^2 - (Z\alpha)^2}$$

$$N = \sqrt{n^2 - 2(n-k)(k-\gamma)}$$

1.1.2 Korrektur aufgrund der endlichen Kernmasse, $E_{RM}(n,J)$

$$E_{RM}(n,J) \cong -\frac{m_e}{m_e+m_N}\left[1 - \left(\frac{m_N}{m_e+m_N}\right)^2 \frac{(Z\alpha)^2}{4n^2}\right] E_{DC}(n,J)$$

Um die Kernbewegung zu berücksichtigen, muß das Wasserstoffatom als relativistisches Zweikörperproblem behandelt werden. Eine Lösung ist jedoch nur näherungsweise möglich.[9,10] Obige Gleichung enthält die Korrekturen zur Dirac-Energie bis zur zweiten Ordnung in $Z\alpha$. Der erste Term entspricht dabei der Lösung der Dirac-Gleichung für ein fiktives Teilchen der reduzierten Masse μ. Anders als in der Schrödinger-Theorie ist dies jedoch nur eine erste Näherung. Der zweite Term läßt sich als Korrektur niedrigster Ordnung zur reduzierten Masse auffassen.

1.1.3 Hyperfeinstruktur, $E_{HFS}(n,I,J,L,F)$

Die Energie aufgrund der Wechselwirkung von Kernspin und Drehimpuls des Elektrons lautet:

$$E_{HFS}(n,J,L,F,I) = \frac{(Z\alpha)^2 Z\, g}{n^3} \frac{m_e}{m_p} (1+\delta)\, c\, R_\infty \frac{F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)}{J(J+1)(2L+1)}$$

g bezeichnet das anormale magnetische Moment des Protons. δ enthält eine Reihe von Korrekturen bedingt durch die endliche Kernmasse und aufgrund von Kernstruktureffekten und relativistischen Strahlungskorrekturen.[11] Die experimentelle Bestimmung der Hyperfeinaufspaltung ist wesentlich genauer als die theoretischen Berechnungen[12]:

$$E_{HFS}(n,J,L,F=J+1/2,I=1/2) = J/(2J+1)\, \Delta E_{HFS}(n,J,L)$$
$$E_{HFS}(n,J,L,F=J-1/2,I=1/2) = -(J+1)/(2J+1)\, \Delta E_{HFS}(n,J,L)$$

mit

$$\Delta E_{HFS}(n=1,J=1/2,L=0) = 1420{,}405751733(1)\ \text{MHz}\ [13]$$
$$\Delta E_{HFS}(n=2,J=1/2,L=0) = 177{,}55686(5)\ \text{MHz}\ [14]$$

1.1.4 Lamb-Verschiebung, $E_{LS}(n,J,L)$

Die Lamb-Verschiebung läßt sich schreiben als:

$$E_{LS}(n,J,L) = \frac{2}{\pi\alpha} \frac{(Z\alpha)^4}{n^3} c\, R_\infty\, F(Z\alpha)$$

mit der Funktion

$$\begin{aligned} F(Z\alpha) &= A_{40} + A_{41}\ln(Z\alpha)^{-2} + A_{50}(Z\alpha) \\ &+ (Z\alpha)^2 * \{A_{60} + A_{61}\ln(Z\alpha)^{-2} + A_{62}\ln^2(Z\alpha)^{-2}\} \\ &+ B_{40}\,\alpha + O(Z\alpha^2) \\ &+ m_e/m_p \{ C_{40} + C_{41}\ln(Z\alpha)^{-2} + C_{50}\, Z\alpha \} + O(\alpha m_e/m_p) \\ &+ m_e/m_p \{D_{40}\, m_e/\alpha m_p + D_{50}Z + D_{51}Z \ln(Z\alpha)^{-2})\} + O(Z^2\alpha m_e/m_p) \\ &+ N_0\, \alpha\, (r_p/r_e)^2 \end{aligned}$$

Bis auf den letzten können alle Summanden von E_{LS} auf die Form gebracht werden:

$$\alpha^r * (Z\alpha)^p * \ln^q(Z\alpha)^{-2} * (m_e/m_H)^s * m_e$$

multipliziert jeweils mit den Proportionalitätskonstanten $A_{pq},..,D_{pq}$. Die Terme mit den Koeffizienten A_{pq} und B_{pq} beschreiben Bindungs- und Strahlungskorrekturen aufgrund von Emission und nachfolgender Absorption eines oder zweier virtueller Photonen durch das Elektron (r=1 bzw. r=2 und s=0). Der Kern wird dabei wie in der Dirac-Theorie als unendlich schwer angenommen. Die Kernbewegung ist in den Termen mit s=1 berücksichtigt. Die Koeffizienten C_{pq} enthalten dabei die zusätzlichen Beiträge zu den Strahlungskorrekturen, die Koeffizienten D_{pq} die Beiträge zu den nichtstrahlenden Korrekturen. Der letzte Term, proportional zu N_0, ist keine quantenelektrodynamische Korrektur und wird der Lamb-Verschiebung nur wegen seiner invers kubischen Abhängigkeit von n zugerechnet. Er

beschreibt den Einfluß der endlichen Kerngröße und die damit verbundene Abweichung von einem reinen Coulomb-Potential. r_e bezeichnet dabei den klassischen Radius des Elektrons ($r_e=\alpha^2 a_o$) und r_p den mittleren Ladungsradius des Protons. Darüber hinaus gibt es noch kleine Beiträge aufgrund der Kernstruktur. Sie liegen bei einer Größenordnung von 100 Hz und sind hier nicht explizit berücksichtigt. A_{pq},..,D_{pq} und N_0 sind dimensionslose reelle Zahlen und beinhalten keine Naturkonstanten mehr. Die bestimmenden Größen für die Lamb-Verschiebung sind also, neben der Rydberg-Konstanten R_∞ und der Feinstrukturkonstanten α, das Massenverhältnis von Elektron und Proton (m_e/m_p) sowie das Verhältnis des mittleren Ladungsradius des Protons zum klassischen Elektronenradius (r_p/r_e).

Tabelle 1.1 zeigt die Größe, mit der die verschiedenen Terme zur Lamb-Verschiebung der Zustände $1S_{1/2}$ und $2S_{1/2}$ beitragen.[8]

	$1S_{1/2}$	$2S_{1/2}$	Koeffizienten
Selbstenergie	10.31680(10)	10.54680(10)	A_{pq}
Vakuumspolarisation	-0.26438	-026439	A_{40}^{SE}
Höhere Ordnungen	0.00125(1)	0.00125(1)	B_{40}
Strahlungsrückstoß	-0.01573	-0.01610	C_{pq}
strahlungsfreier Rückstoß	0.00297(3)	0.00336(3)	D_{pq}
endliche Kerngröße	0.00125(3)	0.00125(3)	N_0
Summe F(Za) =	10.04216(11)	10.27217(11)	

Tabelle 1.1 Zusammensetzung der Lamb-Verschiebung: Beiträge der einzelnen Effekte zur Funktion $F(Z\alpha)$.

Schließlich seien noch zwei weitere Veröffentlichungen erwähnt, die hier noch nicht berücksichtigt sind[68,69]. Die Autoren berechnen Kernrückstoßkorrekturen der Ordnung $(Z\alpha)^6 m_e^2/m_p$ und $\alpha(Z\alpha)^5 m_e^2/m_p$ zur Lamb-Verschiebung der Zustände mit n=2. Die Beiträge liegen in der Größenordnung von 1 kHz.

Für die Beiträge proportional zu A_{pq} - in der Tabelle aufgeteilt in Selbstenergie und Vakuumspolarisation - gibt es folgende anschauliche Interpretation.

Selbstenergie: Die Kopplung der Ladung des Elektrons an die Vakuumsfluktuationen des elektromagnetischen Feldes führt zu einer Fluktuation in der Lage des Elektrons. Diese Ortschwankungen sind wesentlich schneller als die Bahnbewegung, so daß das Elektron im Mittel als homogen geladene Kugel erscheint. Auf die Bindungsenergie zwischen dem Elektron und dem punktförmig angenommenen Kern hat das solange keinen Einfluß, wie der Kern nicht in die Ladungswolke des Elektrons eintaucht. Dann jedoch nimmt die Anziehungskraft ab und die Bindungsenergie verringert sich. Speziell für S-Zustände mit ihrer nicht verschwindenden Wellenfunktion am Ort des Kerns erhält man demnach eine positive Energieverschiebung. In der Sprechweise der Quantenelektrodynamik entsteht die Verschiebung durch den Unterschied zwischen der Elektronen-Selbstenergie im gebundenen und im ungebundenen Zustand.

Vakuumspolarisation: Dieser wesentlich kleinere Beitrag zur Lamb-Verschiebung rührt von den Vakuumsfluktuationen des Dirac-Feldes her, die man anschaulich als die ständige Erzeugung und Vernichtung von virtuellen Elektron-Positron-Paaren deutet. Im Feld des Kerns richten sich die Paare entsprechend ihres Dipolmomentes aus und schirmen die Kernladung teilweise ab. Die im Coulomb-Gesetz auftretende Kernladung beinhaltet diesen Effekt bereits und ist nur bei genügend großem Abstand zwischen

Elektron und Kern korrekt. Bei kleinen Abständen verringert sich die Abschirmung, und die Bindungsenergie nimmt entsprechend zu. Auch hier ist der Effekt für S-Zustände am größten, führt aber, anders als der Einfluß der Selbstenergie, zu einer negativen Energieverschiebung.

1.1.5 Fehlerbilanz

Um sich Klarheit darüber zu verschaffen, was man von einer Absolutmessung der $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangsfrequenz lernen kann, sind in Tabelle 1.2 die Fehler aufgeführt, mit denen die einzelnen Energieterme in die theoretische Bestimmung der Übergangsfrequenz eingehen.

	E_{DC}	E_{RM}	E_{LS}	Summe
R_∞	578	0.30	0.0	578
α	4.2	0.0	1.1	4.3
m_e/m_p	-	37	0.0	37
r_p/r_e	-	-	29	29
A_{60}	-	-	74	74
Summe	578	37	80	**581 kHz**

Tabelle 1.2 Fehler bei der theoretischen Berechnung der 1S-2S-Übergangsfrequenz. In der letzten Spalte stehen die Beiträge der Naturkonstanten, in der untersten Zeile die Beiträge der verschiedenen Energieterme. Eine Liste der verwendeten Naturkonstanten und deren Fehler findet sich in Ref.70.

Die größte Unsicherheit entsteht durch die Rydberg-Konstante im Ausdruck für die Coulomb-Energie E_{DC}. Ist diese besser bekannt, oder gelingt es, ihren Einfluß durch eine Vergleichsmessung zweier Wasserstoffübergänge zu eliminieren (siehe Abschnitt 1.4), wird die Unsicherheit der $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangsfrequenz hauptsächlich durch die theoretische Vorhersage der

Lamb-Verschiebung bestimmt. Die größte Ungenauigkeit entsteht dabei durch die näherungsweise Berechnung des Koeffizienten A_{60}. Darüber hinaus gibt es eine zusätzliche Unklarheit im Wert von A_{60}. Die von Mohr[15,16], Johnson und Soff[17] und Sapirstein[18,19] nach verschiedenen Methoden ermittelten Werte für A_{60} stimmen zwar im Rahmen des Näherungsfehlers überein, unterscheiden sich aber um 6 Standardab- weichungen von einer Rechnung von Ericksen[9]. Für die Energie des $1S_{1/2}$-Zustands entspricht dies einer Verschiebung von 0.32 MHz. Einen weiteren strittigen Punkt gibt es derzeit bei der experimentellen Bestim- mung des Protonenradius. Eine Messung neueren Datums von Simon et al.[20] widerspricht einer früheren Messung von Hand et al.[21] um 0.057 fm oder 5 Standardabweichungen. Die resultierende Frequenzverschiebung des $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangs beträgt 128 kHz.[8]

Glaubt man den Berechnungen von Mohr, Sapirstein und Johnson und Soff, so ließe sich durch eine Messung der Lamb-Verschiebung zunächst der strittige Protonenradius genauer bestimmen. Ist dieser Punkt geklärt, wäre ein Test der Quantenelektrodynamik bis zu einer Genauigkeit von 37 kHz möglich, begrenzt durch die Kenntnis des Elektron-Proton- Masseverhältnisses bei der Berechnung von E_{RM}. Man kommt damit in den Bereich des Fehlers, mit der die Berechnung von A_{60} behaftet ist (nicht zu verwechseln mit der Diskrepanz im Wert von A_{60}).

1.2 Aktuelle Messungen am Wasserstoffatom

Aus dem im letzten Abschnitt Gesagten wird deutlich, daß ein genauer Vergleich von Theorie und Messung eng mit der Kenntnis der beteiligten Naturkonstanten verbunden ist. Sie sind sozusagen die "Fitparameter" der verschiedenen Theorien, die bei der Beschreibung des Wasserstoffatoms eine Rolle spielen. Es ist deshalb wichtig, Experimente zu finden, mit denen die

einzelnen Energiebeiträge unabhängig voneinander gemessen werden können.

Ein Beispiel hierfür ist das Experiment der Gruppe um F. Biraben in Paris.[22] Ähnlich wie im Experiment von Lamb und Retherford werden die Atome zunächst durch Stöße mit Elektronen in den langlebigen $2S_{1/2}$-Zustand angeregt und durchlaufen dann eine Flugstrecke von etwa 1 m, bevor sie in einem Detektor für metastabile Atome nachgewiesen werden. Eine monochromatische Stehwelle, parallel zum Atomstrahl, induziert Zwei-Photonen-Übergänge in Zustände der Hauptquantenzahlen 8,10 und 12. Von dort aus zerfallen die Atome in den Grundzustand und können im Detektor nicht mehr nachgewiesen werden. Wegen der langen Lebensdauer der angeregten Zustände ließ sich eine instrumentell begrenzte Auflösung von 1.1 MHz erreichen (bei 760 nm). Bei der theoretischen Berechnung der Übergangsfrequenzen sind die Korrekturen aufgrund quantenelektrodynamischer Effekte sehr klein. Sie skalieren mit $1/n^3$ und können deshalb für Zustände mit n = 8,10 und 12 vernachlässigt werden. Die Lamb-Verschiebung des $2S_{1/2}$-Startniveaus ist mit den Methoden der Mikrowellenspektroskopie sehr genau vermessen.[2,3] Der Fehler der theoretischen Übergangsfrequenz wird somit von dem der Rydberg-Konstante dominiert, die dadurch bis auf eine relative Genauigkeit von $1.7 * 10^{-10}$ bestimmt werden konnte.

Umgekehrt lassen sich quantenelektrodynamische Korrekturen am besten an Zuständen mit niedriger Hauptquantenzahl beobachten. Im Experiment von Beausoleil et al. in Stanford[8,25,30] wurde dazu der $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergang spektroskopisch untersucht. Die Atome befinden sich dabei als Gas in einer Glaszelle und werden bei gleichzeitiger Absorption zweier Atome aus einer Stehwelle in den $2S_{1/2}$-Zustand angeregt. Durch Stöße der Atome untereinander zerfällt der Zustand unter Abstrahlung eines Lyman-α–Photons, das

in einem Photomultiplier nachgewiesen werden kann. Die Auflösung ist durch die Druckverbreiterung in der Zelle auf einige Megahertz begrenzt (bei 243 nm). Aus einer Absolutmessung der Übergangsfrequenz läßt sich die Lamb-Verschiebung des $1S_{1/2}$-Zustands mit einer relativen Genauigkeit von $2 * 10^{-4}$ ermitteln. Der Fehler ist damit rund 20 mal größer als die Unsicherheit des theoretisch berechneten Wertes und setzt sich zu etwa gleichen Teilen aus der Unsicherheit der Rydberg-Konstante und dem experimentellen Fehler der Messung zusammen. Bei einer Wiederholung des Experiments von Boshier et al. in Oxford[26,27] konnte der Meßfehler noch einmal halbiert werden.

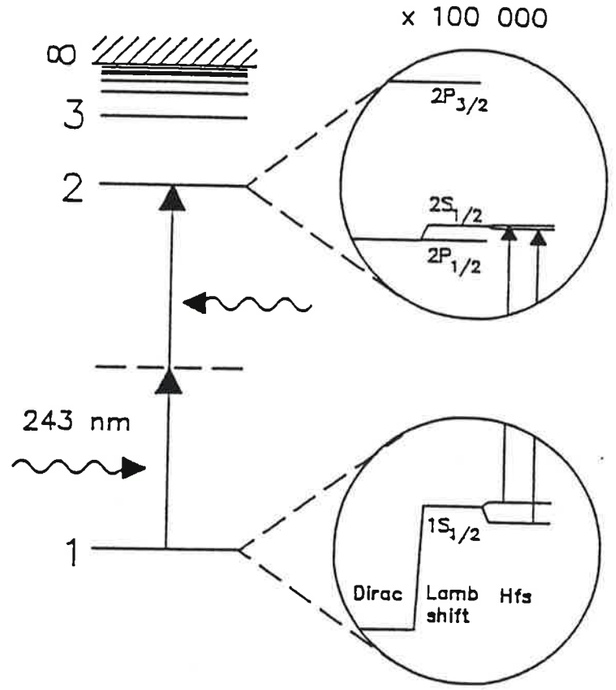


Abb. 1.2 Termschema des $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$ -Zwei-Photonen-Übergangs.

Neben seiner Bedeutung für eine Messung der $1S_{1/2}$-Lamb-Verschiebung besitzt der $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergang noch einige weitere interessante Eigen-

schaften. Zunächst ist der Zerfall des $2S_{1/2}$-Zustands in den Grundzustand durch einen Ein-Photonen-Prozess sowohl als elektrischer Dipolübergang als auch als elektrischer Quadrupolübergang verboten. Nur ein magnetischer Dipolübergang ist schwach erlaubt. Seine Intensität entspricht einer Lebensdauer von 2 Tagen. Da die Dipolzerfälle in den $2P_{1/2}$-Zustand wegen des geringen Energieabstandes ebenfalls sehr schwach sind (Lebensdauer 20 Jahre), ist ein Zwei-Photonen-Übergang in den $1S_{1/2}$-Grundzustand am wahrscheinlichsten.[10] Es werden dabei gleichzeitig zwei Photonen emittiert, deren Frequenzen in der Summe gerade die Frequenz des Übergangs ergeben. Für solche Prozesse sind Übergänge mit $\Delta F=0$ erlaubt und mit $\Delta F=1$ verboten. Die Lebensdauer aufgrund des Zwei-Photonenzerfalls beträgt 1/7 s und setzt einer Präzisionsmessung des $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangs erst bei einer Auflösung von $3.6*10^{-16}$ eine prinzipielle Grenze. Umgekehrt ist der Über- gang von $1S_{1/2}$ nach $2S_{1/2}$ durch gleichzeitige Absorption zweier Photonen gleicher Frequenz möglich. Die Wellenlänge, mit der der Übergang angeregt werden kann, verlagert sich damit aus dem experimentell schwierigen Bereich des Vakuums-UVs in den ultravioletten Bereich bei 243 nm. Werden weiterhin bei einem Übergang beide Photonen aus entgegengesetzten Richtungen absorbiert, ist die Übergangsfrequenz sogar nahezu unabhängig von der Geschwindigkeit des Atoms, da sich der lineare Doppler-Effekt für beide Photonen in der Summe gerade aufhebt. Damit ist das Problem der Doppler-Verbreiterung zumindest in erster Ordnung automatisch gelöst. Gegenüber anderen dopplerfreien spektroskopischen Methoden hat der Zwei-Photonen-Übergang noch den Vorteil, daß, anders als z.B. bei der Sättigungsspektroskopie, alle Geschwindigkeitsklassen zum Signal beitragen.

In allen drei oben erwähnten Experimenten wird der Meßfehler zu etwa 3/4 von der Ungenauigkeit des zur Verfügung stehenden sekundären Frequenz-

standards bestimmt. Eine Absolutmessung durch direkten Vergleich mit dem Cäsium-Primärstandard ist jedoch mit aufwendigen Frequenzketten verbunden, die in einer Anzahl von Teilerstufen die optischen Frequenzen von einigen hundert Terrahertz mit der des Cäsiumübergangs vergleichen ($\nu_{Cäsium}$ = 9.192 631 770 GHz, rel. Unsicherheit: $1.5 * 10^{-14}$ [28]). Es gibt allerdings eine Anzahl scharf vermessener Resonanzen z.B. des Tellurmoleküls $^{130}Te_2$ bei 486 nm oder des Jodmoleküls I_2 bei 639 nm, mit denen die Wasserstoffübergänge mit interferometrischen Methoden verglichen werden können. Die Genauigkeit dieser Methoden und die Genauigkeit mit der die Vergleichsmoleküle vermessen werden können, liegen dabei etwa in demselben Bereich. Bei Linienbreiten von einigen Megahertz beträgt der relative Fehler für Jod $1.6 * 10^{-10}$ [29] und für Tellur $5.8 * 10^{-10}$ [30]. Man ist damit an einem Punkt angekommen, an dem einerseits die Genauigkeit der Messungen nur noch weniger als eine Größenordnung von der Unsicherheit der theoretischen Vorhersagen entfernt ist, andererseits eine weitere Steigerung der Meßgenauigkeit mit den bisherigen Methoden kaum noch möglich ist.

1.3 Thema der Arbeit

Das gemeinsame Thema der Promotionsarbeit von Reinald Kallenbach[31] und der vorliegenden Arbeit bestand im Aufbau und der Erprobung einer Apparatur, mit der die Resonanzlinie des $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangs mit einer verbesserten Auflösung beobachtet werden kann. Angestrebt war eine Verringerung der bisher beobachteten Linienbreite von einigen Megahertz um 2-3 Größenordnungen. Dazu war es nötig, einen Farbstofflaser bei 486 nm mit ausreichender spektraler Reinheit zu entwickeln. Dies ist wesentlicher Bestandteil der Arbeit von Reinald Kallenbach und wird dort ausführlich beschrieben. [31,77] Die Frequenzstabilität wird durch eine schnelle Regelung erreicht, die den Laser an einen hochstabilen Referenzresonator anbindet.

Die Frequenzabweichung beträgt für Meßzeiten zwischen 10 ms und 1 s weniger als 4 Hz mit einem Minimum der Allanvarianz von 1 Hz bei 0.3 s. Weiterhin findet sich dort ein Experiment, in dem mit Hilfe eines zweiten Farbstofflasers durch "intra cavity" Frequenzverdoppelung in β-Barium-Borat bis zu 30 mW kohärente durchstimmbare ultraviolette Strahlung bei 243 nm hergestellt werden konnte. Der zweite Laser war dabei auf den ersten phasenstabilisiert und hatte dadurch diegleiche spektrale Reinheit. Wegen noch nicht geklärter mangelhafter Qualität des UV-Strahls wurde dieser Aufbau bisher jedoch noch nicht verwendet.

In der vorliegenden Arbeit ist eine Variante beschrieben, bei der das UV-Licht in einem externen passiven Resonator hergestellt wird. Die Leistung des Fundamentallichts ist darin etwa 20-fach resonant überhöht und es ist möglich, einige Milliwatt ultraviolettes Licht mit guten Strahleigenschaften herzustellen. Eine wesentliche Verbesserung der Konversionseffizienz ist zu erwarten, wenn zusätzlich auch das verdoppelte Licht resonant überhöht wird. Diese Technik ist für den Fall unkritischer 90°-Phasenanpassung speziell aus Experimenten zur Erzeugung "gequetschten" Lichts bekannt.[32,33] Die Erweiterung dieser Technik für winkelabgestimmte Phasenanpassung und kurze Wellenlängen war möglich und ist in einer Veröffentlichung beschrieben, die dem Anhang dieser Arbeit beigefügt ist. Wegen UV-induzierter Schäden in der Antireflexbeschichtung des Kristalls gelang es jedoch nicht, die theoretisch möglichen Leistungen von einigen 10 mW zu erreichen. Im Wasserstoff-Experiment haben wir die weniger aufwendige einfach-resonante Technik verwendet.

Anders als im Stanford Experiment werden in unserem Experiment die Atome in einem Atomstrahl angeregt. Zwischen zwei Spiegeln bildet der Laserstrahl eine stehende Welle aus, die von den Atomen unter möglichst

flachem Winkel durchquert wird. Am Ende des Atomstrahls werden die angeregten Atome in einem Detektor nachgewiesen.

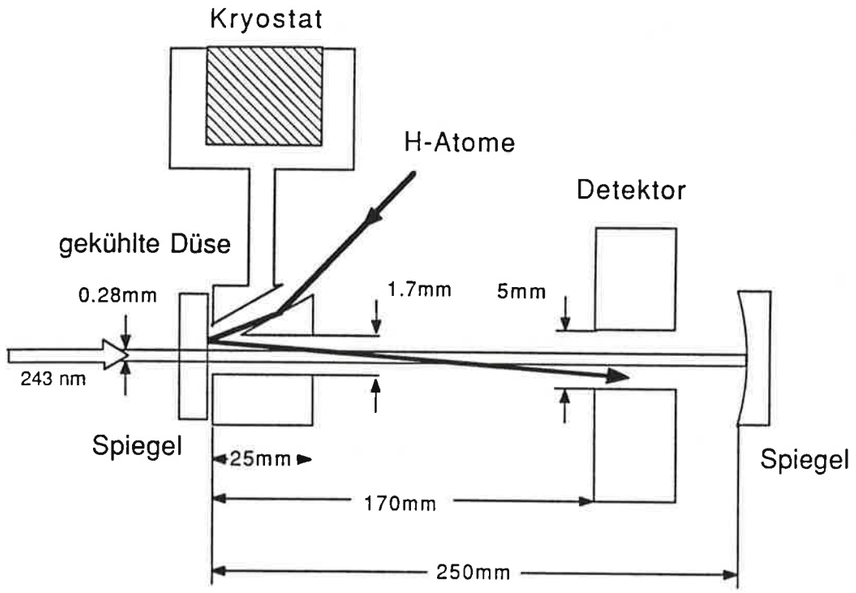


Abb.1.3 Anregungsgeometrie des Wasserstoffs im Atomstrahl.

Durch die longitudinale Anregungsgeometrie wird die Wechselwirkungszeit zwischen Licht und Atomen verlängert, die gemäß der Energie-Zeit-Unschärfe die Auflösung begrenzt. Der zweite für unser Experiment wichtige Verbreiterungsmechanismus ist der relativistische Doppler-Effekt, der, als Folge der Zeitdilatation in bewegten Systemen, zu einer geschwindigkeitsabhängigen Rotverschiebung der atomaren Resonanzen und damit zu einer inhomogenen Verbreiterung führt.[75,76] Dem wird Rechnung getragen durch eine gekühlte Düse, in der die Atome durch Stöße mit der Wand thermalisieren und abgebremst werden. Bei Verwendung von flüssigem Helium als Kühlmittel sollte der Doppler-Effekt damit auf 1 kHz reduziert werden können. Bisher haben wir die Resonanz jedoch nur bei Zimmertemperatur bzw. 170 K beobachtet. Die Linienbreite des beobachteten

Übergangs beträgt 60 kHz (bei 243 nm). Neben dem Aufbau des Atomstrahls und der UV-Optik bestand ein anderer Teil meiner Arbeit in der Konstruktion einer Elektronenkanone, mit der ein Strahl metastabiler Wasserstoffatome erzeugt werden kann. Damit wurden verschiedene Detektorvarianten getestet und Erfahrungen im Hinblick auf das im folgenden Abschnitt erwähnte 1S-2S/2S-4S Vergleichsexperiment gesammelt.

1.4 Zukünftige Messungen

Am Max-Planck-Institut für Quantenoptik in Garching werden zur Zeit drei Experimente vorbereitet, in denen die verbesserte Auflösung des $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$- Übergangs für eine Präzisionsmessung zur Anwendung kommt.

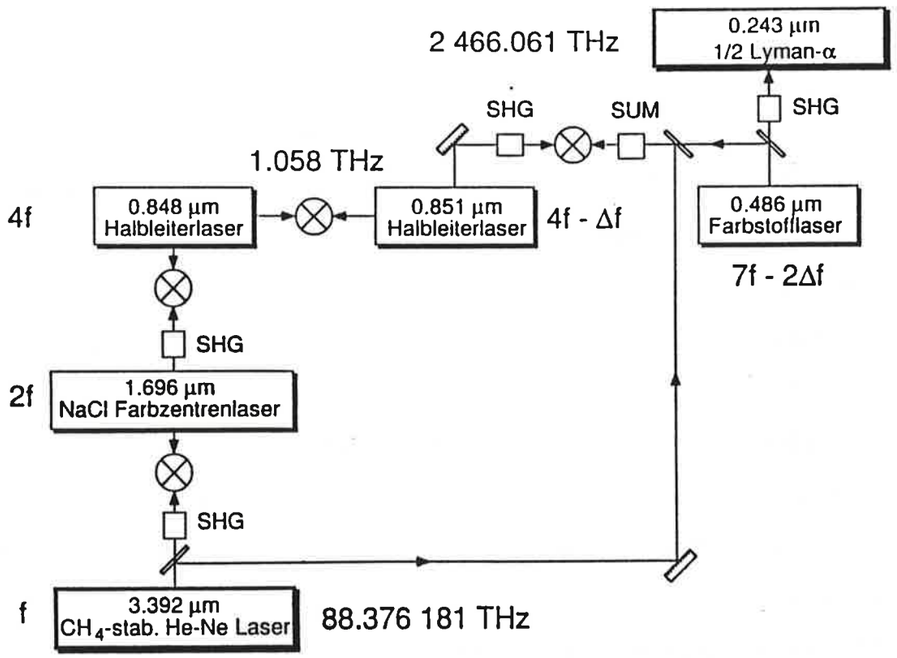


Abb.1.4 Geplante Frequenzkette zur Präzisionsspektroskopie des 1S-2S-Übergangs von atomaren Wasserstoff.

Um die Ungenauigkeit des Tellur-Sekundärstandards zu überwinden, wird eine Frequenzkette aufgebaut, mit der sich der Wasserstoff-Übergang zwar nicht mit der Cäsiumuhr, aber immerhin mit dem Methanstandard vergleichen läßt. Seine Frequenz bei 88 THz ist bis auf einen relativen Fehler von etwa 10^{-13} bekannt.[34] Gelingt es, die Frequenzkette über eine Meßzeit von 5 min fehlerfrei zu betreiben, läßt sich damit die $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$- Übergangsfrequenz bis auf einen Fehler von 1 kHz genau vermessen.

Im zweiten Experiment wird der $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergang mit einem zweiten möglichst scharfen Wasserstoff-Übergang verglichen. Dadurch ist es möglich, die Lamb-Verschiebung zu messen, ohne die Rydbergkonstante genau zu kennen. Wegen der diskreten Struktur des Termschemas kann man immer Frequenzdifferenzen bilden, bei denen sich die Coulomb-Anteile gerade wegheben. Solche kombinierten Frequenzen enthalten dann nur die Beiträge der Lamb-Verschiebung und der Hyperfeinstruktur. Mit diesem Konzept konnten Hänsch et al. durch gleichzeitige Beobachtung des $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangs und der Balmer-β-Linien (2S -> 4P, 2P -> 4S,D) bereits 1975 die $1S_{1/2}$-Lamb-Verschiebung direkt messen.[35] Bei dieser ersten Lasermessung der $1S_{1/2}$-Lamb-Verschiebung überhaupt wurde außerdem von einer Eigenart der Rydberg-Formel Gebrauch gemacht, nach der das Verhältnis der beiden Übergangsfrequenzen gerade 1/4 beträgt. Die Strahlung zur Anregung des $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangs bei 243 nm wurde durch Frequenzverdoppelung eines gepulsten Farbstofflasers bei 486 nm erzeugt, der damit gerade im richtigen Frequenzbereich zur Anregung des Balmer-β-Übergangs liegt. In Garching verwenden wir als Referenzlinie den $2S_{1/2}$-$4S_{1/2}$-Übergang, der als dopplerfreier Zwei-Photonen-Prozeß mit einem stabilisierten Titan-Saphir-Laser angeregt werden kann. Die natürliche Linienbreite beträgt 690 kHz. Damit sollte es möglich sein, die $1S_{1/2}$-Lamb-Verschiebung bis auf 50 kHz zu vermessen, was eine 20-fache Verbes-

serung der bisherigen Genauigkeit bedeutet. Damit ist es wahrscheinlich möglich, Klarheit in die strittigen Werte für den Radius des Protons und den Koeffizienten A_{60} zu bringen (siehe Abschnitt 1.1.5). Es ist dann auch der Fehler der theoretischen Lamb-Shift-Rchnungen erreicht. Ein genauer Vergleich von Theorie und Experiment ist dann nur bei einer verbesserten theoretischen Rechnung möglich.

Als drittes ist eine Messung der Isotopieverschiebung zwischen Wasserstoff und Deuterium geplant. Der Unterschied in den $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangsfrequenzen von 168 GHz kann unter Verwendung eines neuartigen elektrooptischen Modulators durchgeführt werden, der es erlaubt, die Messung mit einer im Mikrowellenbereich üblichen extremen Genauigkeit durchzuführen.(36) Resultat wäre eine Neubestimmung des Elektron/Proton Masseverhältnisses und der Differenz zwischen den Ladungsradien von Proton und Deuteron.

Darüber hinaus wird versucht, die Auflösung des $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangs noch weiter zu steigern. Durch Kühlen der Atome sollte sich mit der vorhandenen Apparatur die Linienbreite bis auf 1 kHz reduzieren lassen. Mit Hilfe geschwindigkeitsselektiver Methoden der zeitauflösenden Spektroskopie sind eventuell sogar Linienbreiten von 100 Hz möglich. Bei dieser Präzision wird es möglich, den Unterschied im g-Faktor des Elektrons bei verschieden starker Bindung an den Kern zu untersuchen. Der sonst magnetfeldunabhängige $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergang wird dadurch um

$$\Delta\nu = 1/8\ \alpha^2/h\ g_e \mu B = 180 * B \quad \text{kHz T}^{-1}$$

verschoben.(37) In Experimenten, in denen die Atome nicht im Strahl, sondern in einer magnetischen Falle spektroskopiert werden, ist dies wegen

der intrinsischen Feldinhomogenität der Falle ein störender Effekt, der die Resonanzlinie verbreitert.(74) Im Strahl dagegen ließe sich bei einem genügend homogenen Magnetfeld dieser Effekt leichter exakt vermessen.

Es sind noch eine Reihe weiterer Themen denkbar, auf die zukünftige Experimente abzielen können. Es gibt z.B. theoretische Überlegungen, nach denen die Selbstenergie des Elektrons und damit die Lamb-Verschiebung im Wasserstoff beeinflußt werden kann, wenn sich das Atom zwischen zwei gegenüberliegenden ideal leitenden planparallelen Platten befindet.(38) Numerische Berechnungen sagen für einem Plattenabstand von 1 µm eine Verschiebung des $1S_{1/2}$-Zustand von 3.5 MHz voraus. Darüber hinaus läßt sich bei genügend hoher Meßgenauigkeit die alte Frage untersuchen, ob die Quantenmechanik wirklich linear ist, oder ob in einer Energiegleichung nicht bisher unbekannte Terme proportional zu Ψ^2 eine Rolle spielen.(39)

Gelänge es, Antiwasserstoff in geeigneter Weise zu präparieren, könnte man sich auch mit spektroskopischen Methoden der Frage nähern, ob seine Masse die gleiche ist wie die des Wasserstoffs. Als letztes sei noch erwähnt, daß es Spekulationen darüber gibt, ob die Naturkonstanten wirklich konstant sind. Hochgenaue Messungen über längere Zeiträume, vielleicht sogar Generationen, könnten darüber Aufschluß geben.

2.EXPERIMENTELLER AUFBAU

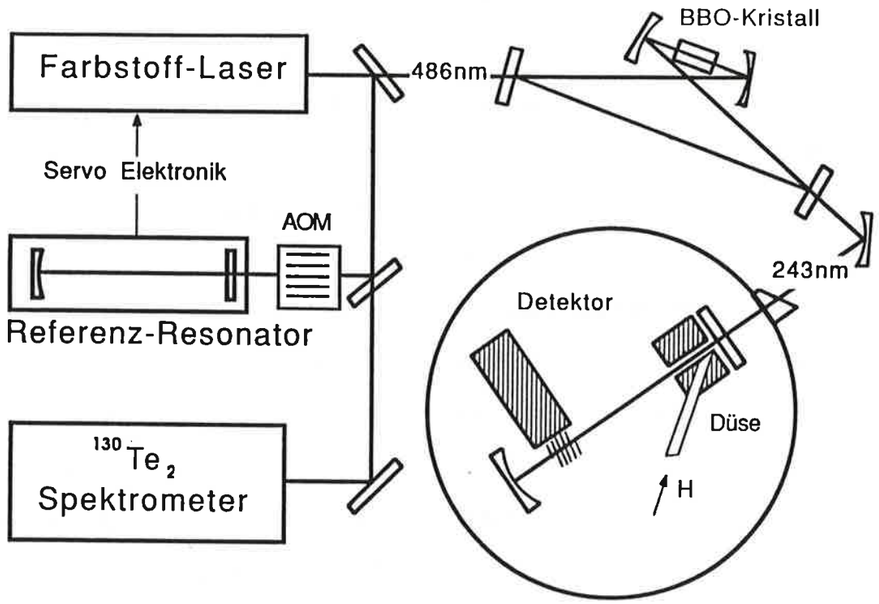


Abb. 2.1 Experiment zur Präzisionsspektroskopie des 1S-2S-Übergangs von atomaren Wasserstoff.

Abbildung 2.1 zeigt eine Übersichtsskizze des Experiments. Die zur Anregung der Wasserstoffatome notwendige Strahlung bei 243 nm erzeugen wir mit einem "Single Mode" Farbstoff-Ringlaser bei 486 nm und anschließender optischer Frequenzverdoppelung in einem nichtlinearen Kristall. Da die Frequenzstabilität des kommerziellen Lasers für die angestrebte Auflösung bei weiten zu schlecht ist, wird der Laser mit einer verbesserten Regelung auf die Resonanz eines hochstabilen Resonators stabilisiert. Die Absolutfrequenz des Lasers messen wir mit einem Aufbau zur Sättigungsspektroskopie von $^{130}Te_2$. Im Bereich um 486 nm ist das Spektrum von $^{130}Te_2$ bis auf eine relative Genauigkeit von $5.8*10^{-10}$ bekannt. Zur Verbesserung der Umwandlungseffizienz geschieht die Frequenzverdop-

pelung in einem externen passiven Ringresonator, der auf die Frequenz des Lasers stabilisiert ist. Die Anregung des Wasserstoffs findet in einem Stehwellenresonator für 243 nm innerhalb einer Atomstrahl-Vakuumkammer statt. Eine gekühlte Düse lenkt die Atome auf eine Bahn entlang des optischen Strahls. Am Ende des Atomstrahls zählt ein Detektor die angeregten Atome.

Anregung und Nachweis der Atome sind zeitlich getrennt, d.h., einer Anregungsperiode mit ausgeschaltetem Detektor folgt eine Nachweisperiode, in der der Lichtstrahl unterbrochen und der Detektor aktiviert ist. Damit wird zum einen der durch das Anregungslicht verursachte intensive Signaluntergrund vollständig unterdrückt, zum anderen können so bei entsprechend gesetzten Zeitfenstern einzelne Atomgeschwindigkeitsklassen ausgefiltert werden. Die Linienform der Wasserstoffresonanz, hauptsächlich bestimmt durch die Geschwindigkeitsverteilung der Atome, kann dadurch in ihrer Form beeinflußt werden. Ein IBM AT-kompatibler "Personal Computer" steuert den Laser und nimmt die Spektren auf (Tellur und Wasserstoff). In den folgenden Abschnitten sind die einzelnen Teile des Aufbaus genauer beschrieben.

2.1 Laser und Optik bei 486 nm

Die Entwicklung des hochstabilen Lasers ist wesentlicher Bestandteil der Doktorarbeit von Reinald Kallenbach und ist dort zusammen mit dem Tellurspektrometer ausführlich beschrieben. [31] Der Vollständigkeit halber sei hier ein kurzer Überblick gegeben.

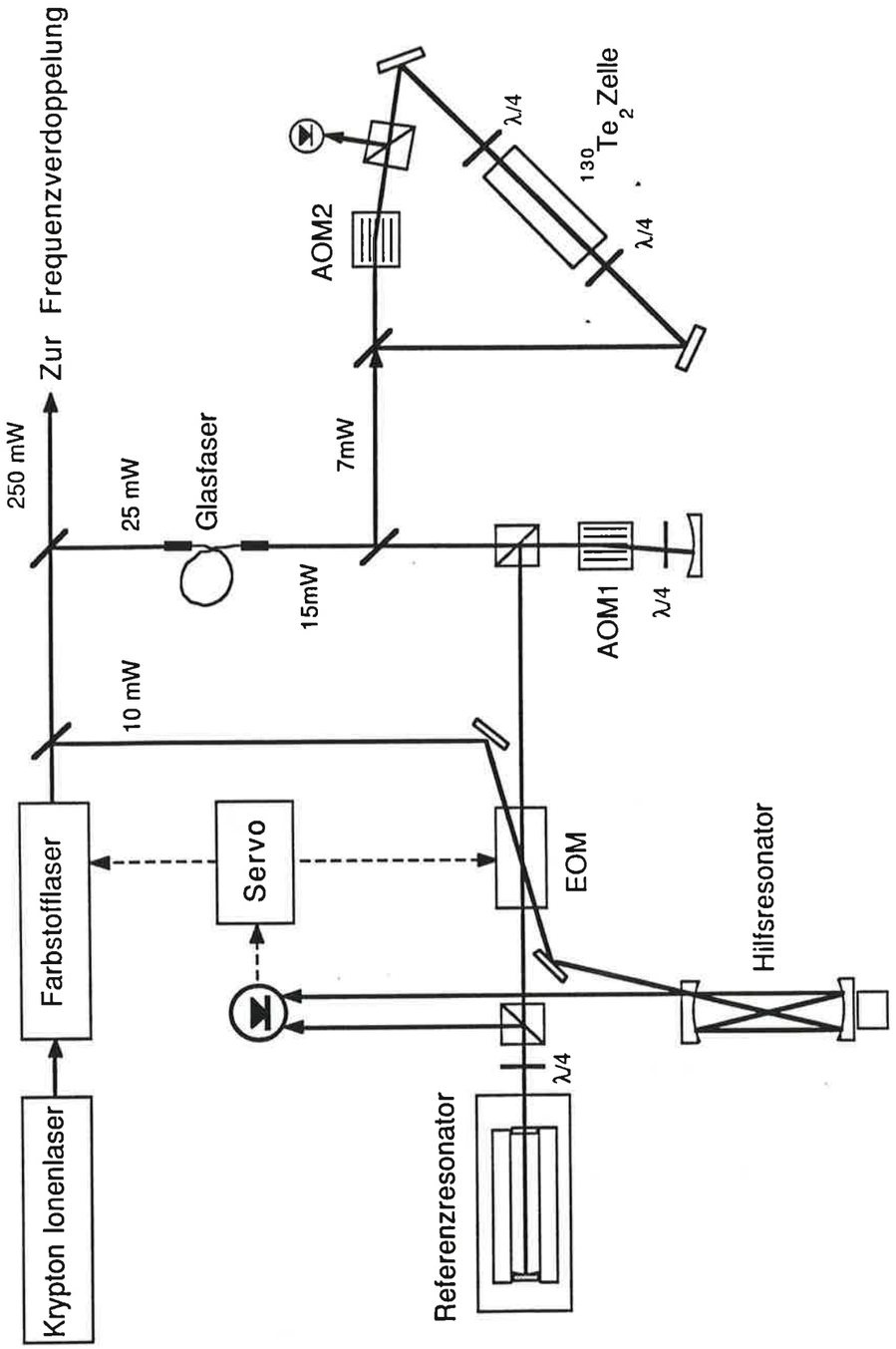


Abb.2.2 Farbstofflaser und Optik bei 486nm.

Kernstück des optischen Aufbaus im Blauen (Abb.2.2) ist ein kommerzieller "single mode" Dauerstrich-Farbstoffringlaser (Coherent 699-21, Coumarin 102, 300 mW Ausgangsleistung), der im violetten Frequenzbereich (413/415nm) mit 5 W Lichtleistung von einem Krypton-Ionenlaser gepumpt wird. Die Stellelemente der kommerziellen Stabilisierung des Farbstoff-lasers, bestehend aus einem auf einer Piezokeramik montierten Spiegel und einer galvanisch angetriebenen Brewster-Platte, wurden um einen elektro-optischen Modulator erweitert. Damit lassen sich diejenigen hochfrequenten Störungen ausregeln, die hauptsächlich durch Schwankungen der optischen Weglänge und Turbulenzen im Farbstoffstrahl verursacht werden und die die Linienbreite des kommerziell stabilisierten Lasers auf ca.1 MHz aufweiten. Zusätzlich wurde das kommerzielle Farbstoffzirkulationssystem durch eine Spezialanfertigung ersetzt (Fa. Radian Dyes Chemie, Wermelskirchen), deren verbesserte Farbstoffdüse aus hochpoliertem Edelstahl einen stabileren Farbstoffstrahl erzeugt.[40] Die Düse mit einer Schlitzbreite von 0.2 mm muß mit einem Druck von 12 bar betrieben werden.

Als Frequenzreferenz für die Laserstabilisierung dienen wahlweise ein käuflicher optischer Spektrumanalysator (piezoabgestimmtes Fabry-Perot Etalon der Fa. Burleigh, temperaturstabilisiert, konfokal, freier Spektral-bereich 300 MHz, Finesse 250), mit dem der Laser über 1 GHz durch-gestimmt werden kann, oder ein hochstabiler Resonator, mit dem die eigentliche Messung durchgeführt wird. Dieser Referenzresonator (Finesse ca.1000) besteht aus einem 46 cm langen runden Zerodurblock (Durchmesser 10 cm), auf dessen Enden zwei hochreflektierende dielektrische Spiegel geklebt sind (Reflektivität > 99.7%). Der Block wird von drei weiteren Zerodurstangen gehalten, die wiederum auf O-Ringen und Stahlkugeln in einem Aluminiumzylinder gelagert sind. Der Zylinder hängt an fünf Stahl-

drähten im Inneren einer Vakuumkammer. Die Kammer wird erschütterungsfrei mit einer Ionengetterpumpe auf $5*10^{-7}$ mbar evakuiert.

Da die Resonanzfrequenzen des Referenzresonators festliegen, wird der Laser mit Hilfe eines akustooptischen Modulators (AOM1) durchgestimmt. Der AOM verschiebt die Frequenz des zur Stabilisierung abgezweigten Laserstrahls. Die dabei auftretende Beugung wird durch zweimaliges Durchlaufen des AOM nach Reflektion an einem gekrümmten Spiegel kompensiert. Der Laser läßt sich so um den doppelten AOM-Frequenzbereich (135-285 MHz) über 300 MHz kontinuierlich durchstimmen. Für größere Frequenzschritte muß auf verschiedene longitudinale Moden des Resonators stabilisiert werden.

Zur Erzeugung eines Fehlersignals für den Regelkreis wird mit einem optischen Mischverfahren die Phase des am Resonator-Einkoppelspiegel reflektierten Lichts gemessen.(41) Diese Phase ist in erster Ordnung linear abhängig von der Frequenzverstimmung des Lasers relativ zum Resonator. Als Referenzstrahlen zur Phasenmessung werden dem Laserstrahl mit Hilfe eines elektrooptischen Phasenmodulators (EOM) Seitenbänder aufmoduliert, deren optische Frequenz weit genug von der Resonatorfrequenz entfernt liegen, um mit frequenzunabhängiger Phase reflektiert zu werden. Seitenbänder und Träger mischen auf einer schnellen Photodiode, deren Signal in einem elektronischen Diodenmischer mit der Seitenband- Modulationsfrequenz demoduliert wird. Das so erzeugte Fehlersignal bedient sowohl die kommerzielle Stellelektronik für Brewster-Platte und Piezospiegel als auch den Treiber für den EOM im Laserresonator. Die gesamte Regelung hat eine Bandbreite von einigen MHz ("unity gain" bei 6 MHz). Aus dem Frequenzspektrum des Fehlersignals bei geschlossener Regelschleife läßt sich die Allen-Varianz der Regelung bestimmen. Danach folgt der Laser für

Meßzeiten zwischen 10 ms und 1 s in seiner Frequenz dem Referenzresonator innerhalb einer Standardabweichung von < 5Hz.

Das Tellur-Sättigungsspektrometer benutzt eine auf 513 °C geheizte $^{130}Te_2$ Gaszelle (Länge 7.8 cm) und ähnelt weitgehend dem Aufbau im Stanfordexperiment(30), von dem wir auch die Eichung des Spektrums übernommen haben.(78) Allerdings sind bei uns, anders als im Stanfordexperiment, Sättigungs- und Probenstrahl in der Zelle im gleichen Drehsinn zirkular polarisiert . Dadurch läßt sich mit Hilfe eines Polarisationsstrahlteilers der Probenstrahl vom koaxial verlaufenden Pumpstrahl ohne die Verluste eines 50% Strahlteilers trennen. Eine Photodiode mißt die Intensität des Probenstrahls. Mit einem Lock-In-Verstärker wird nur der Anteil nachgewiesen, der mit der Leistung des Pumpstrahls variiert. Ein mit 49,2 MHz betriebener akustooptischer Modulator (AOM2) moduliert den Pumpstrahl im Takt von 70 kHz.

Einige Probleme bereitet die Richtungsänderung des Farbstofflaserstrahls bei Justage des Laserresonators. Speziell die thermische Drift des Pumplaserstrahls zwingt zur gelegentlichen Justage des Farbstofflasers. Um nicht jedesmal den gesamten Aufbau nachjustieren zu müssen, benutzen wir eine Glasfaser, bei der dann nur die Einkoppelung korrigiert werden muß. Der Strahlengang des Hilfsresonators ist wegen dessen konfokaler Geometrie weit weniger empfindlich.

Die Einstellung der Laserfrequenz für eine Messung des 1S-2S-Übergangs (F=1) geschieht nach folgendem "Fahrplan" :
Zunächst wird mit einem kommerziellen Wellenlängen-Interferometer (Burleigh Wavemeter WA 20-VIS) die Wellenlänge auf 6 Stellen genau eingestellt und der Laser dabei auf eine geeignete longitudinale Mode des

piezogesteuerten Hilfsresonators stabilisiert. Danach wird ein Tellurspektrum über 1 GHz aufgenommen (maximale Durchstimmgeschwindigkeit 50 MHz/s). Der Durchstimmbereich ist gerade groß genug, um das Spektrum (Abb.2.3) eindeutig identifizieren zu können.

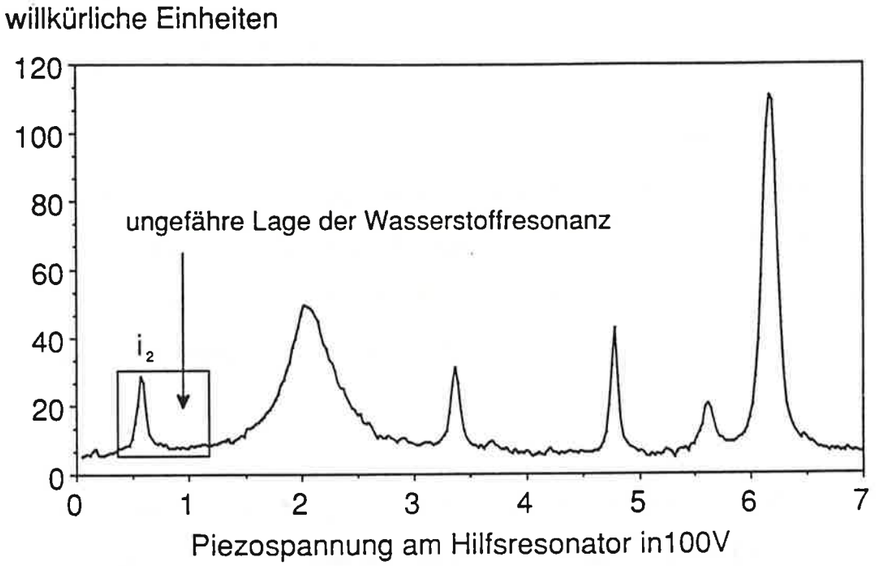


Abb.2.3 Spektrum von $^{130}Te_2$ im Bereich um 486 nm.

Die bekannte Lage der Tellurresonanzen mit Linienbreiten von ca.10 MHz ermöglicht eine schnelle Frequenzbestimmung bis auf ca. 5 MHz. Unter Berücksichtigung der systematischen Frequenzverschiebung des Tellurspektrums um die halbe AOM-Frequenz (1/2*49.2 MHz) erwartet man die Wasserstofflinie ca. 3 Linienbreiten rechts (d.h. bei größeren Wellenlängen) von der Tellur-i_2-Linie.(30) Nach Einstellen dieser Frequenz erfolgt das Umschalten der Stabilisierung auf den Referenzresonator. Der Laserstrahl auf den Referenzresonator wird dazu freigegeben, und der Strahl zum

Hilfsresonator geblockt. In 20 kHz-Schritten wird jetzt der AOM1 verstimmt und die Wasserstoffresonanz gesucht (max. Schrittgeschwindigkeit 10/s). Mit einiger Übung läßt sich mit diesem Vorgehen die Wasserstoffresonanz bis auf 5 MHz einkreisen, so daß eine Messung mit 250 Schritten von je 20 kHz meistens zum Erfolg führt. Das ganze Verfahren dauert ca. 10 min. Die Stabilisierung auf den Hilfsresonator ist nicht sehr zuverlässig. Kurze Ausfälle der Regelung und damit verbundenes Springen der Laserfrequenz sind relativ häufig (ca. einmal in 2 Minuten), wohingegen bei Stabilisierung auf den Referenzresonator Ausfälle nur bei Störungen etwa durch laute Geräusche oder auftretende Fehler vorkommen (Dejustage des optischen Aufbaus, Nachlassen der Laserleistung etc.). Auch gegen die schlagenden Geräusche der Kryopumpe, mit der die Atomstrahlapparatur evakuiert wird, ist die Laserregelung immun.

2.2 Frequenzverdoppelung und UV-Optik

Die Frequenzverdoppelung geschieht in einem ß-Barium-Borat-Kristall (6x5x5 mm^3). Dieses Material erlaubt als einziges kontinuierliche Frequenzverdoppelung bei 486 nm mit UV-Leistungen im Milliwattbereich. Andere Kristalle wie Urea oder Lithiumformat, deren Transmission ebenfalls weit genug ins UV hineinreicht und mit denen die zur effizienten Verdoppelung nötige Phasenanpassung möglich ist, erleiden bei den angestrebten UV-Leistungen optischen Schäden und sind nur in gepulsten Experimenten oder im Nanowattbereich mit Erfolg verwendet worden.(30,42) Im Stanford-Experiment mußte deshalb auf die Methode der Frequenzmischung zurückgegriffen werden: Die Strahlung zweier Laser, ein Farbstofflaser bei 790 nm und ein Argon-Ionenlaser bei 351 nm, wurden in einem KDP-Kristall zu 243 nm addiert. Das seit 1986 erhältliche ß-Barium-Borat macht dieses aufwendige Verfahren glücklicherweise überflüssig.

ß-Barium-Borat ist ein harter klarer Festkörper, einachsig doppelbrechend, transparent bis 190 nm und leicht hygroskopisch.[43,44,45] Die Abhängigkeit der Brechungsindizes von der Wellenlänge ist genau vermessen.[43] Da der Einfluß der Temperatur auf die Brechungsindizes nur sehr gering ist, erfolgt die Phasenanpassung unter Ausnutzung der Doppelbrechung durch Abstimmen des Winkels zwischen einfallendem Fundamentallicht und optischer Achse des Kristalls (56° bei 486 nm). Der Kristall ist vom Hersteller (INRAD Corp., Northvale, New Jersey) so geschnitten, daß bei dieser Orientierung die Ein- und Austrittsflächen senkrecht zum optischen Strahl stehen. Die Oberfächen sind optisch poliert und mit einer Antireflexbeschichtung vergütet, die von INRAD mit einer Reflexion von < 0.3% sowohl für 486 nm als auch für 243 nm spezifiziert war. Die Transmission wurde von uns gemessen und betrug für 486 nm ca. 1% und für 243 nm 11%. Diese unbefriedigende Transmission im ultravioletten Bereich kann nur zum kleinen Teil mit Verlusten im Kristall erklärt werden und weist auf zusätzliche Verluste in der Beschichtung hin. Unbeschichtete Kristalle leiden unter Luftfeuchtigkeit, werden matt und sollten entweder beheizt oder unter einer Schutzgasatmosphäre betrieben werden. In unserem Fall ist das unnötig, da die Beschichtung den Kristall auf den empfindlichen Stirnseiten ausreichend versiegelt.

Bei einer Kristallänge von 6 mm erreicht man optimale Verdoppelung bei einer Fokussierung des Fundamentallichts auf einen Strahldurchmesser im Kristall von 35 µm, was einem konfokalen Parameter von 4 mm entspricht.[45,46,47] Die Geometrie des Resonators, bestehend aus zwei planen und zwei gekrümmten dielektrischen Spiegeln, ist entsprechend eingestellt. Die Berechnung des Strahlprofils im Resonator findet sich im Anhang.

Als planen Einkoppelspiegel benutzen wir einen kommerziellen Farbstofflaserspiegel mit einer Transmission von 1,8% bei 486 nm. Der in Umlaufrichtung erste gekrümmte Hochreflektor ist auf einem Piezoelement montiert und dient als Stellelement für die Regelung des Resonators auf die Frequenz des einfallenden Lichts.

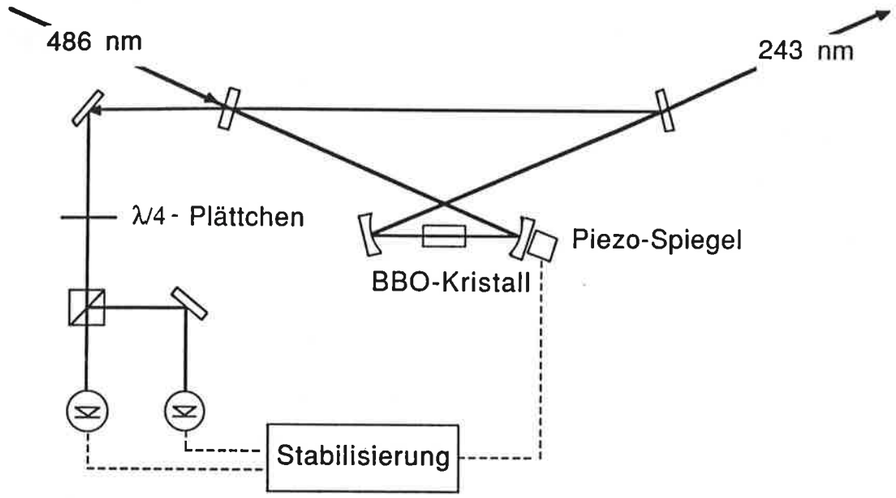


Abb2.4 Resonator zur Frequenzverdoppelung des blauen Laserlichts

Er entspricht in seiner Bauart und seiner Frequenzcharakteristik dem Piezo-Spiegel im Farbstofflaser (Coherent "tweeter"). Der zweite gekrümmte Spiegel ist eine Spezialanfertigung der Firma Laseroptik (Garbsen) und reflektiert 95% im UV und 99.7% bei 486 nm. Das UV-Licht wird über den zweiten Planspiegel ausgekoppelt. Seine Transmission bei 243 nm beträgt 85% und seine Reflektion im Blauen >99.7% (ebenfalls Fa.Laseroptik). Die gesamten Verluste eines Umlaufs belaufen sich auf 2% und führen zu einer Linienbreite der Resonanz von 1.5 MHz bei einem freien Spektralbereich von

300 MHz und einer Finesse von 200. In Resonanz wird ca. 90% der eingestrahlten Leistung in den Resonator eingekoppelt, so daß bei 250 mW eingestrahlter Lichtleistung ca. 12.5 W im Resonator umlaufen.

Nach einigen Minuten reduziert sich die Leistung allerdings auf ca. 5 W. Der Grund dafür liegt in einer Beschädigung der Antireflexbeschichtung durch das UV-Licht. Dabei scheint es sich um zwei verschiedene Effekte zu handeln. Startet man mit der maximal möglichen UV-Leistung von 16 mW (bei 350 mW Fundamentallicht), erfolgt nach einer knappen Minute ein Zusammenbruch auf ca. 0.5 mW verbunden mit einer entsprechenden Reduktion des im Resonator umlaufenden blauen Lichts. Dieser Vorgang ist irreversibel. Bei einer anfänglichen UV-Leistung von 6 mW beobachtet man dagegen eine allmähliche Abnahme der Leistung während einiger Minuten, die sich dann bei ca. 2 mW stabilisiert. Leichtes transversales Verschieben des Kristalls führt wieder zur ursprünglichen Leistung. Dabei haben wir, trotz über einjährigen Betriebs bisher keine dauerhaft beschädigte Stelle im Kristall beobachtet. Wir nehmen daher an, daß die Schädigung mit der Zeit ausheilt.

Mit einem unbeschichteten Kristall mit Lichteinfall im Brewster-Winkel wurde von einer Gruppe in Hannover mit einem Argon-Ionenlaser über 1 W UV-Leistung erzeugt, allerdings bei 244 nm.[48] Derselbe unbeschichtete Kristall stand unserem Labor für ein Experiment zur Verfügung, in dem durch "intracavity" Frequenzverdoppelung in einem zusätzlichen Farbstofflaser stabil über 30 mW bei 243nm erreicht werden konnte.[31] Aufgrund des wesentlich geringeren technischen Aufwands benutzen wir jedoch weiterhin den beschichteten Kristall im oben beschriebenen Aufbau. Die 2 mW UV-Leistung, die sich damit stabil erzeugen lassen, haben sich zumindest vorläufig als ausreichend erwiesen.

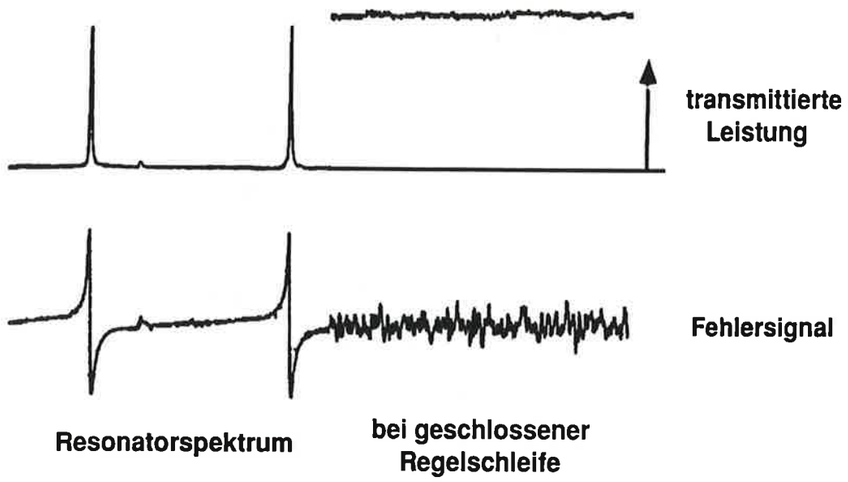


Abb2.5 Lichtleistung im Verdoppelungsresonator bei kontinuierlicher Veränderung des Spiegelabstandes und bei geschlossener Regelschleife.

Eine Regelschleife stabilisiert die Resonanz des Verdoppelungsresonators auf die Frequenz des Fundamentallichts. Das Fehlersignal wird ähnlich wie bei der Laserstabilisierung durch Phasenmessung erzeugt.[71] Die Polarisation des eingestrahlten Lichts ist dazu leicht gekippt relativ zur ordentlichen Polarisationsrichtung im Kristall. Die dadurch entstehende außerordentliche Komponente erleidet neben der zusätzlichen Brechung einen Phasenversatz gegenüber der ordentlichen Polarisation und kann deshalb nicht gleichzeitig resonant sein. Sie wird deshalb mit konstanter Phase am Einkoppelspiegel reflektiert, während die Phase der reflektierten ordentlichen Komponente von der Differenz der Laserfrequenz zur Resonatorfrequenz linear abhängt (in erster Ordnung). Die Kombination aus λ/4-Plättchen, Polarisationsstrahl-

teiler und den beiden in Differenz geschalteten Photodioden mißt die relative Phasenlage der beiden Polarisationskomponenten. Das Photodiodensignal wird elektronisch integriert und über einen Hochspannungsverstärker dem Piezoelement zugeführt. Die Schaltung ist dem Stanford-Experiment entnommen und ist in Ref. 79 ausführlich beschrieben. Ein unkommentierter Schaltplan befindet sich im Anhang. Abbildung 2.5 zeigt die transmittierte Leistung und das Fehlersignal des Verdoppelungsresonators.

Der ausgekoppelte UV-Strahl weist aufgrund der Doppelbrechung ein stark astigmatisches Strahlprofil auf, das sich jedoch mit einer Linse und einem gekrümmten Spiegel unter schrägem Einfall weitgehend kompensieren läßt. Die Brennweite der Linse beträgt 30 cm und der Krümmungsradius des Spiegels 10 cm. Nach Bündelung durch die Linse beträgt der Abstand zwischen den beiden Brennpunkten des astigmatischen Strahls ca. 20 mm. In den Brennpunkten weist das Strahlprofil eine stark elliptische Form auf. Die langen Achsen der Ellipsen stehen dabei senkrecht zueinander. Zwischen den beiden Foki gibt es eine Stelle, an der das Strahlprofil kreisförmig erscheint. An dieser Stelle ist der gekrümmte Spiegel aufgestellt. Den richtigen Kippwinkel für den Spiegel findet man durch Beobachtung des Strahlprofils im Abstand von einigen Metern hinter dem Spiegel. In unserem Fall erscheint der Strahl bei einem Einfallswinkel von 50° kreisförmig. Der Abstand zwischen Linse und Spiegel ist kritisch im Bereich von 0.5 mm. Der Kippwinkel muß mit einer Genauigkeit etwa 2° eingestellt werden.

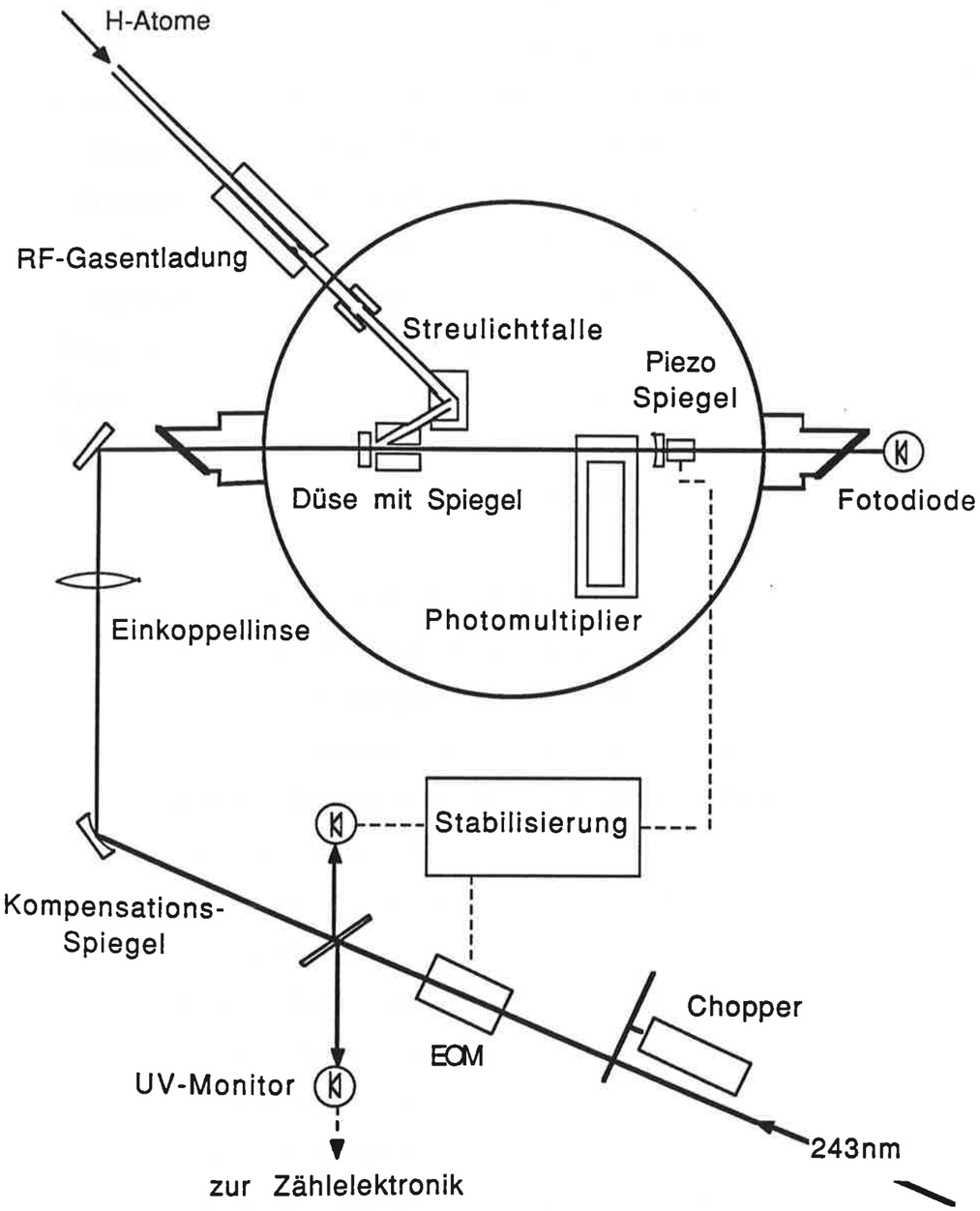


Abb.2.6 Strahlengang des UV-Lichts.

Nach einer weitere Linse (f=10 cm) gelangt das Licht durch ein Brewster-Fenster in die Atomstrahlapparatur und wird dort in einen Stehwellen-resonator eingekoppelt. Der plane Einkoppelspiegel transmittiert 4%, der gekrümmte Auskoppler ca 0.5% (Radius 50 cm). Die Resonatorgeometrie ist bei einem Spiegelabstand von ca. 25 cm nahezu konfokal. Damit erreicht man eine hohe Lichtintensität über die ganze Länge des Strahls. Anders als im sichtbaren Spektralbereich erreichen die Verluste durch Rayleigh-Streuung an den Spiegeloberflächen bei 243 nm bereits Werte von einigen Prozent. Mit 4% ist die Transmission des Einkoppelspiegels eigentlich zu knapp bemessen, optimal wären 7%. Die Finesse des Resonators beträgt ca. 80 und die umlaufende Leistung 15 bis 20 mW. Von der eingestrahlten Leistung werden 25% am Einkoppler reflektiert.

Die Wahl der dielektrischen Spiegel ist noch aus einem zweiten Grund kritisch. Einige Beschichtungsmaterialien zeigen im Vakuum bei UV-Leistungen von einigen Milliwatt optisch induzierte Absorptionsverluste. In einer Testapparatur haben wir dazu Versuche mit verschiedenen dielek-trischen Materialien durchgeführt. Untersucht wurden Beschichtungen bestehend aus den Kombinationen Aluminiumoxid-Siliziumdioxid, Hafniumoxid-Siliziumdioxid und Kryolith-Lanthanfluorid. Alle Spiegel zeigen dasselbe qualitative Verhalten. Bei Abpumpen auf 10^{-2} mbar und gleichzeitiger Belichtung mit UV sinkt die Finesse des Resonators um einen Faktor 2 bis 5. Höhere UV-Leistung oder längeres Belichten durch Stabilisieren der Resonanz beschleunigen den Vorgang. Wird nur während der Finessemessung kurz belichtet, läßt sich keine Reduktion der Finesse beobachten. Bei Fluten des Resonators mit Luft oder Sauerstoff steigt die Finesse auf den anfänglichen Wert. Auch dazu ist UV-Licht nötig. Periodisches Durchstimmen über einige longitudinale Resonanzen ist ausreichend, um den Schaden in ca.1 Minute auszuheilen. Ohne UV-Licht

oder durch Fluten mit Stickstoff oder Argon lassen sich die Verluste nicht beheben. Um Verunreinigungen auf den Oberflächen auszuschließen, haben wir die Testapparatur gründlich mit Azeton ausgespült und mit einer Turbo-Molekularpumpe betrieben, ohne damit das Verhalten der Spiegel verändern zu können. Die gezielte Verunreinigung des Vakuums mit verschiedenen Fetten und Gummiteilen zeigte ebenfalls keinen Einfluß. Als Ursache für die auftretenden Schäden vermuten wir die Entstehung von Sauerstoff-Fehlstellen in den Oxidverbindungen durch eine Verschiebung des Sauerstoffgleichgewichts beim Evakuieren. Dadurch bilden sich Farbzentren, die im UV-Bereich absorbieren. Der Einfluß des UV-Lichts während des Ausheilens an sauerstoffhaltiger Atmosphäre läßt sich verstehen entweder als beschleunigte Diffusion bei lokaler Erwärmung der geschädigten Stelle oder durch UV- induzierte Umwandlung von O_2 zu Ozon, das durch die höhere chemisch Agressivität leichter mit der Beschichtung reagiert. Beides sind Vermutungen und bedürfen weiterer Untersuchungen. In unserem Experiment ließ sich das Problem durch die Verwendung von nichtoxidischen Schichten lösen. Die letztendlich verwendeten Spiegel mit Fluoridbeschichtungen stammen von der Firma TecOptic (Isle of Man) und zeigen bis zu Leistungen von 30 mW keinerlei UV-Empfindlichkeit. Das Verhalten für höhere Leistungen haben wir nicht untersucht.

Der Resonator ist mechanisch starr mit dem pneumatisch gelagerten Tisch verbunden, der den gesamten optischen Aufbau trägt. Die Haltevorrichtung ragt vom Tisch in die Atomstrahl-Vakuumkammer hinein und ist mit zwei flexiblen Membranbälgen aus Edelstahl abgedichtet. Mechanische Vibrationen der Kammer und der Pumpe übertragen sich so nur geringfügig auf den Tisch. Störungen des Lasers lassen sich nur bei ausgeschalteter Stabilisierung beobachten. Trotzdem ist es günstig, während einer Messung die zum Evakuieren der Kammer verwendete Kryopumpe kurzzeitig auszu-

schalten, hauptsächlich um die Frequenzstabilität des UV-Resonators zu verbessern.

Zur Stabilisierung des UV-Resonators ist der Auskoppelspiegel auf ein piezoelektrisches Röhrchen geklebt (ø15 mm, Länge10 mm, Wandstärke 0.51mm). Zur Vermeidung von Streufeldern wird das Piezoelement nur mit 250 Volt betrieben, wobei die äußere Elektrode elektrisch auf Masse liegt. Die Länge des Resonators läßt sich damit um 0.6 µm bzw. 5 freie Spektralbereiche durchstimmen. Das Fehlersignal wird wie bei der Laserstabilisierung mit der Seitenband Mischmethode erzeugt (siehe Abschnitt 2.1). Der verwendete elektrooptische Modulator (EOM1 in Abb. 2.2) ist baugleich mit dem als Stellelement dienenden EOM im Laserresonator und transmittiert 90% des UV-Lichts.

Während der Messung wird der UV-Strahl im Takt von 10 kHz periodisch unterbrochen (siehe Abschnitt.3.5). Kommerzielle mechanische Chopper sind dazu zu langsam, was einen Eigenbau nötig machte. Mit einem elektrischen Motor (30000 min^{-1}) für Spielzeugrennautos und dem Zahnrad einer alten Kuckucksuhr (ø 4 cm, 70 Zähne) lassen sich Frequenzen bis 40 kHz erreichen. Durch die spitz zulaufende Form der Zähne ist außerdem das Zeitverhältnis aus Hell- und Dunkelperiode kontinuierlich einstellbar, je nach radialem Abstand des Laserstrahls von der Zahnradachse. Eine schnelle Photodiode im transmittierten Licht steuert einen einfachen Eigenbau-"Gate-Synthesizer" an, mit dem Triggerpulse einstellbarer Länge und Verzögerung erzeugt werden. Die Regelung des Resonators mit einer Bandbreite von ca. 1 kHz wird durch das Zerhacken des Lichtstrahls erst ab Frequenzen unter 2 kHz gestört. Abbildung 2.7 zeigt das am Auskoppelspiegel transmittierte Licht bei "gechopptem" UV-Strahl und geschlossener Regelschleife zusammen mit dem Spektrum des Resonators.

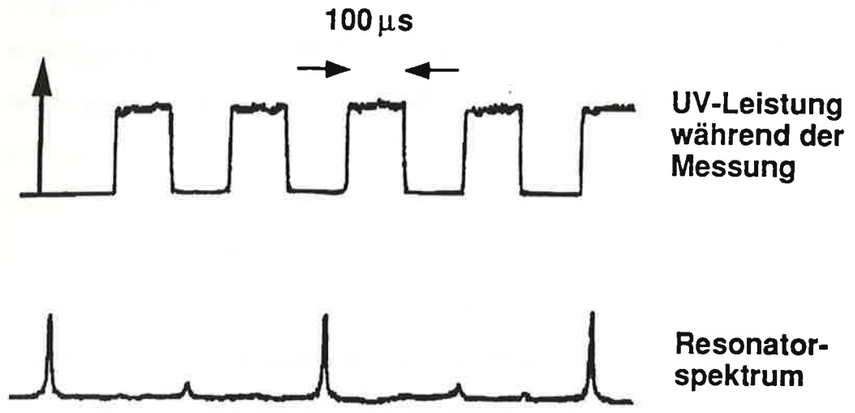


Abb.2.7 Lichtleistung im UV-Resonator bei kontinuierlicher Veränderung des Spiegelabstandes und bei geschlossener Regelschleife und eingeschaltetem Chopper.

2.3 Gasentladung und Atomstrahl

Molekularer Wasserstoff aus einer Gasflasche wird mit einem Palladiumfilter gereinigt[49] und über ein Nadelventil mit einer Teflon-Rohrverbindung in ein Glasröhrchen geleitet (Pyrexglas, Länge 20 cm, Innendurchmesser 6 cm), das sich im letzten Viertel zu einem 1 mm langen Kanal verengt (Innendurchmesser von 0,5 mm). Das Röhrchen befindet sich im Inneren eines mit 30 W betriebenen Mikrowellenresonators mit einer Resonanz von 2.45 Ghz. Es wird zur Kühlung mit Wasser umspült. An einem Ende hat man über eine Öffnung im Resonator Einblick auf das Röhrchen. Dort transportiert ein Luftstrom aus einer Pressluftleitung die anfallende Wärme ab. Ab einem Druck größer 0.5 mbar läßt sich im Glasröhrchen eine tiefrote Gasentladung zünden, in deren Licht die sichtbaren Balmer-Übergänge mit einem Taschenspektrometer direkt beobachtet werden können. Mit diesen

Typ von Gasentladung erreicht man bei störungsfreiem Betrieb üblicherweise nahezu 100% Dissoziation von H_2 zu atomaren Wasserstoff.(50) Bei unzureichender Kühlung, zu hohem Druck (>10 mbar) oder verschmutztem Röhrchen treten im Spektrum über den gesamten sichtbaren Bereich breite Wasserstoff-Molekülbanden auf, die die Entladung gelblich fahl leuchten lassen.

Verunreinigungen in der Gasentladung entstehen insbesondere bei Verwendung falscher Materialien für die Wasserstoffleitung. Gummi oder Silikonschläuche gasen aus und führen zu einem metallisch glänzenden Belag in dem Entladungsröhrchen. In unserem Aufbau verwenden wir nur Pyrexglas, Teflon und Edelstahl. Die Teile wurden mit Seifenlauge im Ultraschallbad gereinigt. Verschmutzte Entladungsröhrchen lassen sich auch mit scharfen Säuren kaum reinigen. Am besten tauscht man sie aus.

Unmittelbar hinter der kanalförmigen Verengung ragt das Entladungsröhrchen, abgedichtet mit einem O-Ring, in die Vakuumkammer (siehe Abb. 2.6). Ein 15 cm langes Teflonrohr mit 6 mm Innendurchmesser leitet den atomaren Wasserstoff zu einer als Streulichtfalle dienenden Steckkupplung, von der ein weiteres kurzes Teflonrohr (Länge 3 cm, Innendurchmesser 3 mm) die Verbindung zu einem gekühlten Aluminiumquader herstellt (25 x 25 x 20 mm^3). Der Quader sitzt im Resonator direkt vor dem Einkoppelspiegel und erlaubt über eine Längsbohrung (ø1.7 mm) den Durchtritt des UV-Strahls. Der Spiegel, der den Quader fast berührt, schließt die Bohrung an einem Ende ab und bildet die Rückwand der Düse. Der Wasserstoff gelangt in diese Düse über einen schrägen seitlichen Stichkanal, der die Atome direkt auf die Spiegeloberfläche lenkt. Von dort wird ein Teil der Atome auf eine Bahn entlang des Laserstrahls gestreut. Die Aluminiumdüse, thermisch durch eine Teflonplatte isoliert, ist mechanisch am Resonatorrahmen befestigt und

steht über ein geflochtenes Kupferband in thermischer Verbindung zu einem Kryostat im Deckel der Vakuumkammer. Die Düse kann so mit flüssigem Stickstoff auf 150 K abgekühlt werden. Mit dieser vorläufigen Konstruktion wurden die ersten Spektren aufgenommen. Inzwischen hat sich herausgestellt, daß eine Rückwand der Düse nicht unbedingt nötig ist. Zur Zeit experimentieren wir mit einer Variante, bei der die Atome in den Längskanal über einen rechtwinkligen Stichkanal in der Mitte des Quaders gelangen und die Düse dann an beiden Enden des Längskanals verlassen. Für zukünftige Messungen läßt sich der Kryostat auch mit flüssigem Helium betreiben und erlaubt, bei zusätzlichem Abpumpen des Heliumdampfs, Temperaturen bis 2K (superflüssiges Helium). Bei verbesserter thermischer Ankopplung sollte die Düse damit auf einige Kelvin abzukühlen sein.

Die Vakuumkammer (Höhe 45 cm, ø 50 cm) wird mit einer Kryopumpe (Leybold RPK-10000 E) evakuiert, deren spezifizierte Pumpleistung von 20000 l/s bei eingeschalteter Gasentladung einen gemessenen Enddruck von $5*10^{-6}$ mbar ermöglicht. Dem entspricht einem Wasserstoff-Atomfluß von $5*10^{-17}$ s^{-1}. Der Druck in der Gasentladung wird mit einem Membran-Manometer in der Wasserstoffzuleitung 30 cm vor dem Entladungsröhrchen gemessen und beträgt üblicherweise 2 mbar. In der Vakuumkammer wird der Druck mit einer Ionisationsmeßröhre gemessen (Leybold Ionivac).

Zur Überwachung der Gasentladung und der Konzentration von atomarem Wasserstoff in der Vakuumkammer ist seitlich hinter der Düse ein Massenspektrometer angeflanscht. Abbildung 2.7 zeigt ein typisches Spektrum. Der Dissoziationsgrad im Atomstrahl läßt sich damit jedoch nicht messen, da die Wasserstoffatome am Meßkopf des Spektrometers rekombinieren und einen erhöhten H_2-Partialdruck erzeugen, der die Messung verfälscht. Für eine vernünftige Messung des Verhältnisses von H zu H_2 im Strahl muß das Massenspektrometer differentiell gepumpt werden.(50)

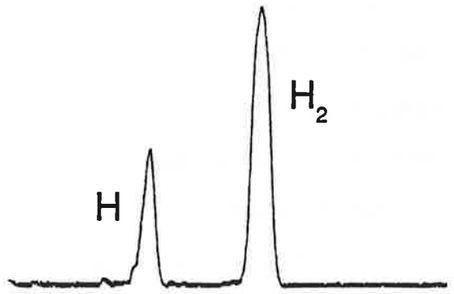


Abb.2.7 Massenspektrum des Wasserstoffgases in der Vakuumkammer.

2.4 Detektor für metastabilen Wasserstoff

Der Detektor zum Nachweis angeregter Wasserstoffatome (Abb. 2.8) besteht im wesentlichen aus einem Photomultiplier (EMI541J) mit einem Maximum der Nachweiseffizienz bei 123 nm (10% Quanteneffizienz laut Hersteller). Die Empfindlichkeit nimmt für längere Wellenlängen schnell ab und beträgt bei 243 nm ca. 10^{-8} (von uns gemessen). Im Sichtbaren ist die Katode völlig unempfindlich. Der Photomultiplier befindet sich in der Vakuumkammer im Inneren eines geerdeten Aluminiumrohrs, das die Hochspannung abschirmen soll. Auf das Eintrittsfenster (ø10 mm) an der Stirnseite der Multiplierröhre ist von hinten die Katode aufgedampft, die zur Vermeidung von Streufeldern elektrisch auf Masse gelegt ist. Das Signal wird über einen Hochpaß (1 nF, 50 Ω) an der Anode bei +2,8 kV abgegriffen. Ein Maschennetz aus Edelstahl ist über die Stirnfläche gespannt und verhindert das Aufladen des Fensters und der nichtleitenden Fensterfassung durch Elektronen aus der Gasentladung oder aus der Elektronenkanone des Massenspektrometers. Das Netz hat eine Maschenweite von 0.05 mm und transmittiert 75%.

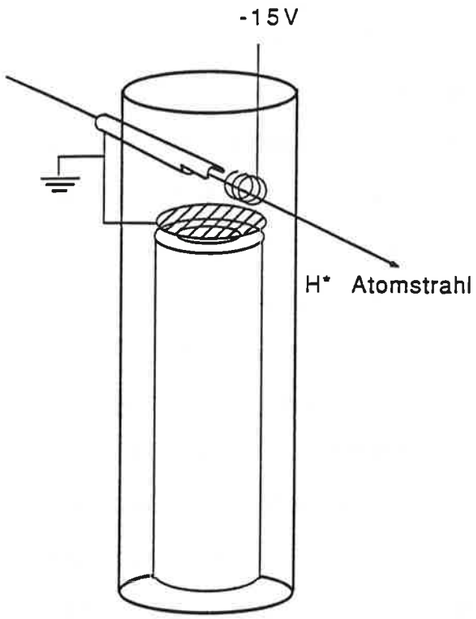


Abb.2.8 Detektor zum Nachweis der metastabilen Wasserstoffatome.

Die Atome gelangen in einem 3 cm langen geerdeten Kupferröhrchen mit einem Innendurchmesser von 5 mm unmittelbar vor das Fenster des Photomultipliers. In der Verlängerung des Röhrchens befindet sich im Abstand von 1 mm eine Spule aus Silberdraht mit 5 Windungen und 5 mm Innendurchmesser. An der Spule liegt eine Spannung von 15 V an, so daß sich zwischen dem Röhrchen und der Spule ein statisches elektrisches Feld ausbildet, in dem der metastabile $2S_{1/2}$-Zustand mit den $2P_{1/2}$-Zustand mischt. Der Übergang in den Grundzustand ist nun nicht mehr paritätsverboten, und die angeregten Atome zerfallen unter Aussendung eines Lyman-α- Photons. Auf den letzten 6 mm ist das Röhrchen an der dem Photomultiplier zugewandten Seite seitlich offen. Einem Teil der Photonen,

die unmittelbar am Ende des Röhrchen entstehen, würde sonst der Weg zum Multiplier versperrt werden. Alle Teile des Detektors sind, soweit ihre Funktionen es zulassen, mit einer elektrisch leitenden Graphitemulsion besprüht. Kontaktspannungen und durch Verunreinigungen der Oberflächen verursachte Spannungen lassen sich so weitgehend beheben. Zur besseren Übersichtlichkeit sind in Abbildung 2.8 die Abstände zwischen Photomultiplier, Abschirmnetz und Eintrittsröhrchen zu groß dargestellt. Tatsächlich wird der Abstand zwischen Atomstrahl und Katode hauptsächlich dadurch bestimmt, daß das Eintrittsfenster in der Stirnfläche um etwa 7 mm versenkt angebracht ist. Der erfaßte Raumwinkel beträgt daher ca. 6%. Mit der Quanteneffizienz des Multipliers und der Transmission des Abschirmnetzes von 75 % erwartet man eine Nachweiseffizienz des Detektors von $4.5 * 10^{-3}$. Die gemessene Zählrate steigt ab 3 V Quenchspannung kontinuierlich an, sättigt ab etwa 10 V und bleibt bis zu hohen Spannungen von über 70 V konstant. Alle Spektren aus Kapitel 3 sind mit einer konstanten Spannung von 15 V aufgenommen.

Die Photomultiplierpulse werden mit einem Diskriminator in Normpulse umgewandelt und einem der beiden Eingänge eines UND-Gatters zugeführt. Der andere Eingang wird vom "Gate-Synthesizer" des Choppers angesteuert. Er aktiviert den Zählvorgang, nachdem der Chopper den UV-Strahl unterbrochen hat. Einige Mikrosekunden bevor der Chopper öffnet, wird der Zählvorgang wieder unterbrochen. Die Aktivierung des Zählers nach Unterbrechung des Lichts läßt sich außerdem bis um die Hälfte der Chopperperiode verzögern. Ein CAMAC-Einschub zählt die Ausgangspulse des UND-Gatters.

3.MESSUNGEN

In diesem Kapitel stellen wir zunächst das gemessene Wasserstoffspektrum vor und analysieren dessen Linienform. Die Absolutfrequenz wird durch Vergleich mit dem Tellurspektrum bestimmt und mit früheren Messungen verglichen. Es folgt ein Experiment, bei dem der Laser über eine Regelschleife auf die Frequenz des Wasserstoffübergangs stabilisiert wird. Das Driftverhalten des Referenzresonators kann man so direkt messen. Außerdem läßt sich der Meßfehler ermitteln, durch den zukünftige hochgenaue Absolutmessungen von unserer Apparatur begrenzt werden. Im letzten Abschnitt des Kapitels werden der Einfluß des Choppers und Effekte bei zeitlich verzögertem Nachweis diskutiert.

3.1 Das 1S-2S Spektrum

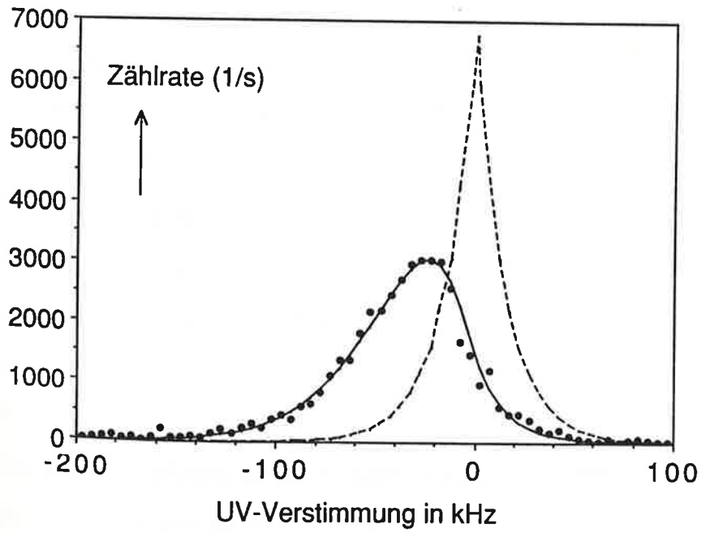


Abb.3.1 Zwei-Photonenresonanz des Wasserstoff 1S-2S (F=1) Übergangs

Abbildung 3.1 zeigt die Resonanzlinie des1S-2S-Übergangs zwischen den Hyperfein-Niveaus mit F=1. Die Schrittweite zwischen zwei Meßpunkten beträgt 5 kHz (bei 243 nm). Pro Schritt wurden die Detektorpulse 100 ms lang gezählt. Die Periodendauer des Choppers betrug 200 µs. Hell und Dunkelzeit waren gleich lang. Bei einem Abstand zwischen Düse und Detektor von 17 cm und einer mittleren thermischen Geschwindigkeit von 1885 m/s entspricht die mittleren Flugzeit der Atome etwa der Hellzeit. Die Düse war auf 170 K gekühlt, die umlaufende UV-Leistung im Resonator betrug 20 mW. Der Signalhintergrund durch Streulicht bei 243 nm ist durch die zeitliche Trennung von Anregung und Nachweis vollständig unterdrückt. Ein geringes Rauschen von 10 s^{-1} kommt vom Streulicht aus der Gasentladung. Die Qualität des Spektrums ist deshalb hauptsächlich durch das Schrotrauschen des Detektors begrenzt. Längere Zählzeiten von 0,5 s und mehr führen zwar zu einem glatteren Spektrum, allerdings macht sich dann die Drift des Lasers bereits bemerkbar und verzerrt die Linienform. Ein geringes Rauschen von weniger als 10 s^{-1} wird von Lyman-α-Strahlung aus der Gasentladung verursacht. Der Signalhintergrund durch Streulicht bei 243 nm ist vollständig unterdrückt. Die Zählrate im Resonanzmaximum liegt bei Zimmertemperatur routinemäßig zwischen **500 s^{-1}** und **1000 s^{-1}**. Die hohe Zählrate von **3000 s^{-1}** des Spektrums in Abbildung 3.1 hängt zum Teil mit der längeren Verweilzeit der gekühlten Atome im Licht zusammen, darüber hinaus lag die UV-Leistung im Resonator mit 20 mW etwas über dem Durchschnitt.

Die Linienbreite (FWHM) des Übergangs beträgt **60 kHz (bei 243nm)**. Ins Verhältnis gesetzt zur Absolutfrequenz des UV-Lichts erhält man für die Güte der Resonanzlinie einen Wert von

$$\mathbf{Q = 2.1 * 10^{10}}.$$

Der $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergang ist damit die zur Zeit bestaufgelöste Resonanz am Wasserstoff überhaupt. Der bisher schärfste optische Übergang des Wasserstoffatoms wurden zwischen den Zuständen $2S_{1/2}$ und $10D_{5/2}$ (F=0) beobachtet und hatte eine Güte von $Q=3.6*10^8$.[22] Auch die Güte des Wasserstoffmasers wird um etwa das 10-fache überschritten[72,73].

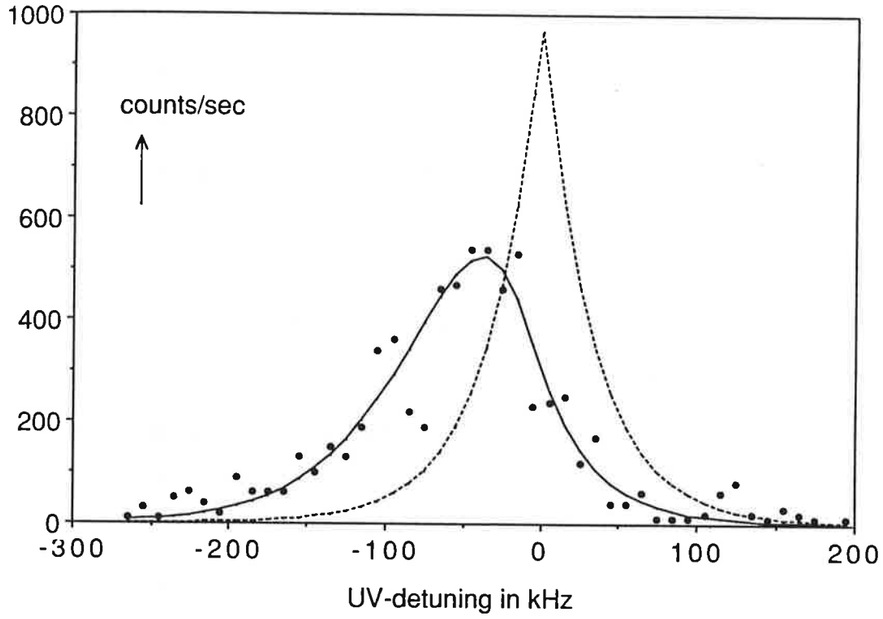


Abb.3.2 Zwei-Photonenresonanz des Wasserstoff 1S-2S (F=0) Übergangs

Abbildung 3.2 zeigt den Übergang zwischen den Niveaus mit F=0, gemessen bei Raumtemperatur mit 0.5 s Zählzeit, 10 kHz Schrittweite (bei 243 nm) und 15 mW UV-Leistung. Die Linienform ist qualitativ dieselbe wie die des F=1 Übergangs, der allerdings wegen der 3-fachen Entartung der Niveaus entsprechend intensiver ist. Aufgrund der geringeren Zählrate ist das F=0-Spektrum stärker verrauscht. Wegen der langsamen Durchstimmgeschwindigkeit, bedingt durch längere Zählzeiten, addiert sich die Drift des Lasers zu der Frequenzverstimmung durch den AOM und führt zu einer

scheinbar größeren Linienbreite. Nimmt man kurz hintereinander zwei Spektren einmal "von links" und einmal "von rechts" auf, d.h. mit positiver bzw. negativer AOM-Verstimmung, so erhält man für das arithmetische Mittel der Linienbreiten wieder einen Wert von ca. 60 kHz.

3.2 Linienform und Zählrate

Wegen der simultanen Absorption zweier Photonen aus entgegengesetzten Richtungen spielt der lineare Doppler-Effekt für einen Zwei-Photonen-Übergang keine Rolle. Die in Gaszellen übliche Druckverbreiterung aufgrund von Kollisionen der Atome untereinander kann man im Atomstrahl ebenfalls vernachlässigen. In unserem Experiment ist die Linienform deshalb hauptsächlich durch die Wechselwirkungszeit zwischen Atom und Licht, also die Energie-Zeit-Unschärfe (Durchflugsverbereiterung), und durch den relativistischen Doppler-Effekt bestimmt. Letzterer kommt dadurch zustande, daß, vom Laborsystem aus betrachtet, die Zeit im Ruhesystem des Atoms abhängig von dessen Geschwindigkeit langsamer abläuft. Die Resonanz des Atoms erscheint deshalb um $\Delta\omega=(v/c)^2\,\omega/2$ "rotverschoben", unabhängig von der Richtung der Geschwindigkeit. Dies führt zu einer asymmetrisch inhomogen verbreiterten Linienform. Es gibt noch eine Reihe zweitrangiger systematischer Effekte, alle von der Größenordnung unter 1 kHz. Sie sind im Anhang kurz zusammengefaßt.

Eine vollständige mathematische Beschreibung der Linienform ist wegen der notwendigen Lorentz-Transformation etwas kompliziert, läßt sich aber durch folgende Überlegung stark vereinfachen: Nimmt man an, daß die meisten Atome die Stehwelle unter einem flachen Winkel kreuzen und nur sehr wenige den ganzen Weg im Laserstrahl zurücklegen, so hängt die Verweildauer der Atome im Licht und damit die Durchflugsverbereiterung

hauptsächlich von deren Geschwindigkeitskomponente transversal zum Strahl ab. Der nur vom Geschwindigkeitsbetrag abhängige relativistische Doppler-Effekt wird dagegen von der longitudinalen Geschwindigkeitskomponente dominiert, die man näherungsweise mit dem Geschwindigkeitsbetrag gleichsetzen kann. Dadurch läßt sich zunächst für jede longitudinale Geschwindigkeitsklasse die Durchflugsverbreiterung separat berechnen. Die Gesamtlinienform ergibt sich dann als Konvolution dieser durchflugsverbreiterten Linien, jeweils verschoben um den ihrer longitudinalen Geschwindigkeit entsprechenden relativistischen Doppler-Effekt und gewichtet mit einer Maxwellschen Geschwindigkeitsverteilung. Diese Rechnung ist im Anhang durchgeführt. Danach läßt sich die Form der Resonanz durch zwei Parameter Δf und Δr beschreiben. Δf ist, gemäß der Unschärferelation, gerade die mittlere Frequenzunschärfe und Δr die mittlere relativistische Dopplerverschiebung (beide in Kreisfrequenzen). In Abbildung 3.1 ist die berechnete Form der Resonanz als durchgezogene Linie eingezeichnet. Durch Variation der Parameter Δf und Δr wurde die theoretische Linienform mit einer χ^2-Fitprozedur an das gemessene Spektrum angepaßt.[53] Die beste Übereinstimmung erhält man für die Parameter $\Delta r = 2\pi * 15.5(4)$ kHz und $\Delta f = 2\pi * 18.0(9)$ kHz entsprechend einer mittleren longitudinalen Geschwindigkeit von $\mathbf{\langle v_l \rangle = 1700(40)\ m/s}$ und einer mittleren transversalen Geschwindigkeit von $\mathbf{\langle v_t \rangle = 36(2)\ m/s}$. Die zu $\langle v_l \rangle$ gehörende thermische Geschwindigkeit v_0 beträgt 1500 m/s und entspricht einer Temperatur von 136(4) K. Die Abweichung von der in der Düse gemessenen Temperatur ist ein Hinweis auf die in Abschnitt 3.5 besprochenen Choppereffekte. Durch die zeitliche Trennung von Anregung und Nachweis werden die langsamen Atome stärker gewichtet als die schnellen. Dies führt zu einer Verschiebung der Maxwellverteilung zu niedrigeren Temperaturen hin.

Neben der asymmetrischen Verbreiterung bewirkt der relativistische Doppler-Effekt eine Verschiebung des Maximums um 21.6 kHz. Diesen Wert erhält man ebenfalls aus der Fitprozedur. Setzt man in den theoretischen Ausdruck $\Delta r = 0$, so ergibt sich die Linie, wie man sie ohne relativistischen Doppler-Effekt erwarten würde (unterbrochene Linie in Abb.3.1). Sie stimmt in ihrem Maximum mit der Lage der atomaren Resonanz im Ruhesystem des Atoms überein und veranschaulicht den starken Einfluß des relativistischen Doppler-Effekts.

Bei der Bestimmung der theoretisch erwarteten Zählrate benötigt man den Wert der Atomdichte im Detektor. Er ist jedoch schwierig abzuschätzen, da die Kollimation des Strahls durch die Düse und der Dissoziationsgrad der Wasserstoffatome im Strahl eine Rolle spielen. Wir können aber umgekehrt die experimentelle Zählrate benutzen, um die Dichte der Atome im Detektor zu bestimmen. Unter Verwendung von Gleichung A.5 im Anhang erhält man:

$$\mathbf{N = 1.6 * 10^{9}\ cm^{-3}}$$

mit den Werten

R_{exp}	=	$3000\ s^{-1}$	Zählrate
η	=	$4.5 * 10^{-3}$	Empfindlichkeit des Detektors
P	=	20 mW	UV-Leistung
w_o	=	140 µm	optische Strahltaille
L	=	17 cm	Länge des Atomstrahls
v_t	=	32 cm/s	transversale Geschwindigkeit
$K(\Omega_{max})$	=	0.52	Maximum der Resonanzfunktion $K(\Omega)$

Eine völlig unkollimierte Atomquelle mit einem Gesamtfluß $\Phi = 5 * 10^{17}\ s^{-1}$ und einer Kosinusförmigen Richtungsverteilung, wie man sie von thermischen Öfen her kennt, erzeugt im Abstand von 17 cm eine Dichte von

$N = \Phi * 2/(\langle v_l \rangle \pi L^2) = 6.5 * 10^{9}\ cm^{-3}$. Die Abweichung vom experimentellen Wert um einem Faktor 4 ist auf folgende nur grob bestimmbare Einflüsse zurückzuführen.

-) Für den Dissoziationsgrad in der Düse kann man einen Wert von 20%-40% erwarten [50] (siehe auch Abschnitt 2.4).
-) Der periodische Nachweis führt mindestens zu einer Halbierung der Zählrate, da der Detektor nur die Hälfte der Zeit aktiviert ist.
-) Ein Teil der Atome kann durch Störfelder im Eintrittsrohr des Detektors zerfallen. Verschmutzung des Röhrchens durch nichtleitende Stoffe ist schwer kontrollierbar.
-) Weniger wichtig sind Stöße mit dem Restgas. Für Atome mit permanentem Dipolmoment liegt der Stoßwirkungsquerschnitt im Bereich von $10^{-13}\ cm^2$ [54], was bei einem Restgasdruck von $5 * 10^{-7}$ mbar zu einer Stoßrate von $350\ s^{-1}$ führt. Die mittlere Flugzeit der Wasserstoff-atome beträgt ca. 0.1 ms, so daß nur etwa jedes dreißigste Wasserstoff-atom mit einem Restgasatom kollidiert. Für Stöße der Wasserstoffatome untereinander ist der Wirkungsquerschnitt 10mal kleiner [54], die Dichte aber 10mal größer. (Der Druck bei Betrieb mit Wasserstoff beträgt $5 * 10^{-6}$ mbar.) Man erhält also wieder eine Reduzierung des Signals von nur wenigen Prozent.

Berücksichtigt man den summarischen Einfluß dieser Effekte mit einem Faktor 10, so beträgt die gemessene Atomdichte etwa das doppelte der Dichte, die eine unkollimierte Atomquelle im Detektor erzeugt. Dies läßt sich als Hinweis auf eine Fokussierung des Atomstrahls durch die Düse werten.

3.3 Messung der Absolutfrequenz

Für eine Messung der Absolutfrequenz des Wasserstoff-Übergangs (F=1) gibt

es zur Zeit keinen optischen Sekündär-Frequenzstandard mit hinreichender Genauigkeit. Die genaueste Frequenzbestimmung ist nach wie vor nur durch Vergleich mit der Tellur-i_2-Linie möglich. In früheren Messungen ist das ausführlich geschehen[25,26], so daß man sich von unserem Experiment für die 1S-2S-Übergangsfrequenz zur Zeit noch keinen genaueren Wert erhoffen kann.

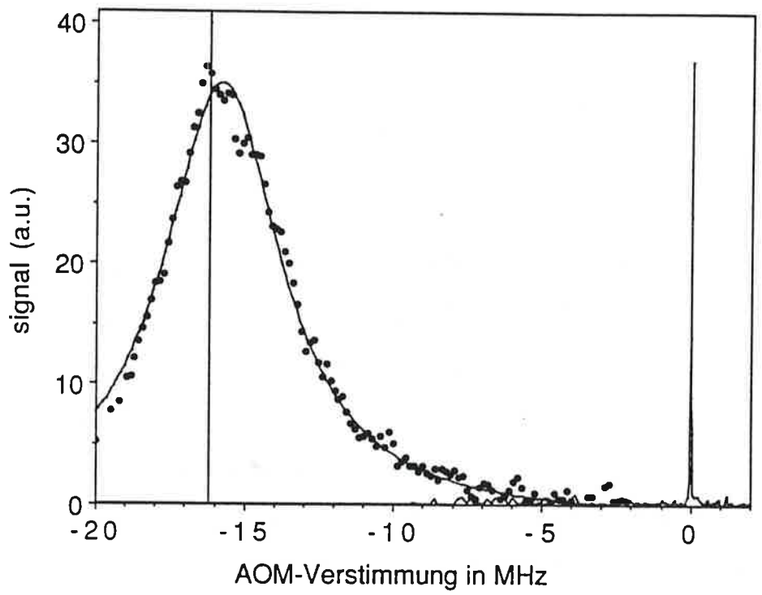


Abb3.3 Die Lage der Wasserstoffresonanz (F=1) relativ zur Tellur i_2-Eichlinie

Abbildung 3.3 zeigt die Lage der Wasserstoffresonanz (F=1) relativ zur Tellur-i_2-Linie. Beide Resonanzen wurden in einem Durchlauf aufgenommen. Die Tellurlinie ist nach einem χ^2-Verfahren durch eine Lorentz-Funktion angepaßt (durchgezogene Linie). Der Einfluß der Nachbarlinien ist nicht berücksichtigt. Wir messen für den Abstand zwischen der Wasserstoff-resonanz und dem Zentrum der Lorentz-Kurve einen Wert von

15.75(4) MHz

als Frequenzdifferenz am AOM. Wegen des doppelten Durchgangs durch den AOM beträgt die optische Differenzfrequenz 32.09 MHz bei 486 nm. Dazu addiert sich noch eine systematische Verschiebung des Tellurspektrums von 0.5 * 49.21 = 24.605 MHz. Sie wird durch den mit einer Frequenz von 49.209 MHz betriebenen AOM im Tellurspektrometer verursacht (AOM2). Für den Frequenzabstand zwischen beiden Resonanzen erhält man somit den Wert von **56,70(4) MHz** (bei 486 nm). Zum Vergleich ist in Abbildung 3.3 die Lage der Tellurlinie relativ zum Wasserstoff eingezeichnet, wie sie im Stanford-Experiment gemessen wurde [25,30] (vertikale unterbrochene Linie). Die dort ermittelte Differenzfrequenz beträgt 57.12(38) MHz. Legt man die Stanford-Eichung der i_2-Linie zugrunde, lautet unser Wert für die Absolut-frequenz des $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangs **1233 030 552.4(1.2) MHz** (bei 243 nm).

Der größte Fehler, mit dem unsere Messung behaftet ist, entsteht durch die Abhängigkeit der Tellurresonanz von der Temperatur der Zelle. Die Verschiebung der Resonanzfrequenz beträgt für die i_2-Linie 4.2 kHz/°C [30]. Bei einer angenommenen Unsicherheit von 10° entsteht so ein Fehler von 420 kHz. Dazu addiert sich noch die Unsicherheit aufgrund der Drift des Referenzresonators (13 kHz), der Drift der AOM2-Frequenz (20 kHz) und dem Fehler bei der Fitprozedur (34 kHz). Der Gesamtfehler von 422 kHz ist damit etwas größer als in der Stanford-Messung. Auch dort entsteht der Fehler durch die Unsicherheit in der Temperatur. Für eine genauere Messung ist es nötig, die Temperatur der Tellurzelle unmittelbar vor und nach der Aufnahme eines kombinierten Tellur-Wasserstoff-Spektrums zu überprüfen. Dies geschieht durch die Absorptionsmessung einer dopplerverbreiterten Resonanzlinie (Nr.1284 im $^{130}Te_2$-Atlas [51]). Bei der gewünschten Temperatur von 513 °C beträgt die Absorption 23%.[30] Diese Eichung wurde von uns nur einmal eine Wochen vor der Aufnahme der Wasserstoff-

spektren durchgeführt. Wie eingangs erwähnt, bringt jedoch ein genauerer Vergleich der Wasserstofflinie mit der Tellur-i_2-Linie keine wesentliche Verbesserung, da deren Absolutfrequenz ebenfalls mit einem Fehler von 360 kHz behaftet ist.(30)

3.4 Stabilisierung des Lasers auf die Wasserstofflinie

Die hohe Auflösung der Wasserstoffresonanz läßt sich verwenden, um die Frequenzstabilität des Lasers zu messen. Speziell die durch eine Messung des Fehlersignals unzugänglichen Frequenzdriften mit Zeitkonstanten im Bereich von Sekunden und Minuten sollen im Folgenden untersucht werden. Es zeigte sich bei den ersten Messungen schnell, daß die Driften deutlich größer sind als vermutet. In Abbildung 3.4 ist ein Spektrum aufgenommen, bei dem der Laser nur durch die Drift des Referenzresonators über die Wasserstoffresonanz gestimmt wird. Die x-Achse ist deshalb eine Zeitskala. Man hat also mit Driften im Bereich von kHz/s zu rechnen.

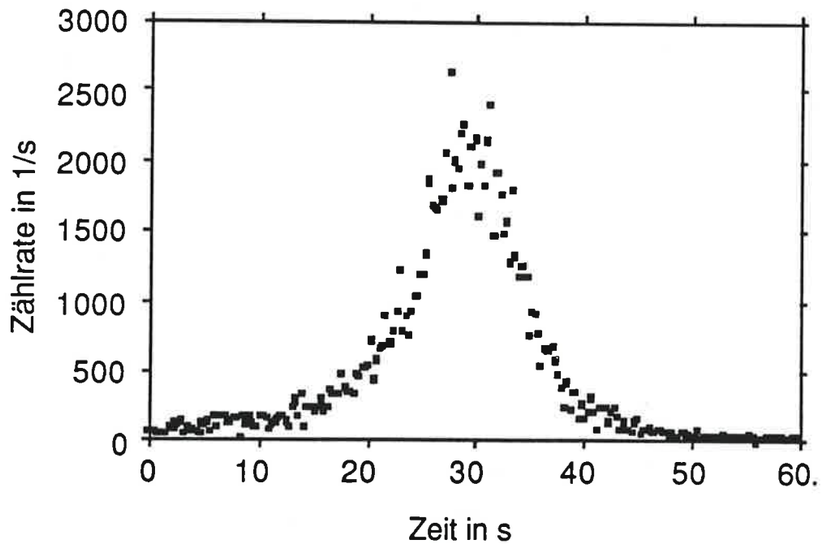


Abb.3.4 Wasserstoffresonanz aufgenommen mit Hilfe der Frequenzdrift des Lasers

Um den Laser über längere Zeit auf der Wasserstoffresonanz zu halten, kann man diese Drift durch stetiges Verstimmen der AOM-Frequenz mit dem Meßcomputer ständig korrigieren. Zweckmäßigerweise geschieht das in einer Regelschleife. Zur Erzeugung eines Fehlersignals verstimmt der Computer den AOM um 1 kHz nach "rot", anschließend um 1 kHz nach "blau" und bildet dann die Differenz der bei beiden Frequenzen gemessenen Zählraten. Die so numerisch gebildete Ableitung der Wasserstofflinie hat einen Nulldurchgang im Maximum der Resonanz und kann als Fehlersignal verwendet werden. Die Differenz der Zählraten (typischerweise 30 Ereignisse bei geschlossener Regelschleife und Zählzeiten von 0.5 s) wird mit 100 multipliziert und als Korrektur zur momentanen Frequenz addiert. Dies entspricht der Intergration bei analogen Regelkreisen.

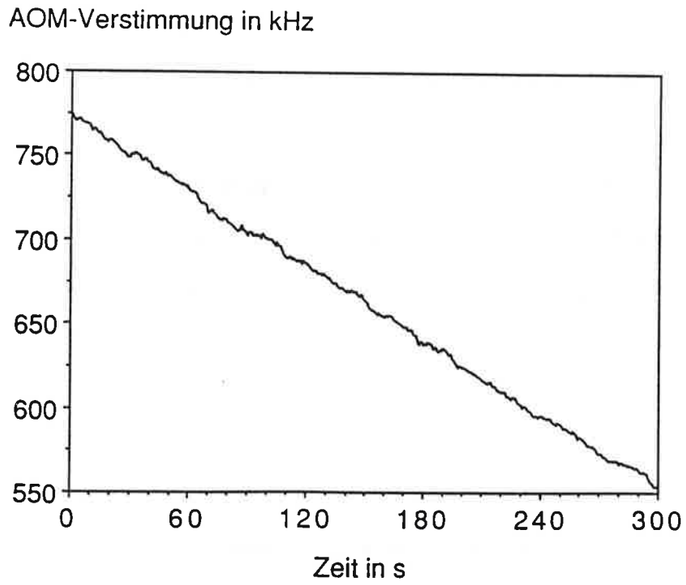


Abb.3.5 Frequenzverstimmung des AOM bei geschlossener Regelschleife.

Im zeitlichen Verlauf der AOM-Frequenz bei geschlossener Regelschleife zeigt sich jetzt direkt die Drift des Referenzresonators (Abb. 3.5). Sie variiert von Tag zu Tag zwischen 1 kHz/s und 6 kHz/s, hat aber immer dasselbe Vorzeichen. Es entspricht einer stetigen Verringerung des Spiegelabstands. Eine langsame Schrumpfung wird üblicherweise auf Relaxationseffekten im Zerodur zurückgeführt: amorphes Zerodur kristallisiert im Zeitraum von Jahren langsam aus und veringert dabei sein Volumen.[52] Allerdings ist die hier gemessene Resonatordrift viel zu groß, um ausschließlich damit erklärt werden zu können. Vermutlich spielen ähnliche Schrumpfungseffekte auch im Epoxydharz eine Rolle, mit dem die Spiegel auf den Zerodurhalter aufgeklebt sind. Die Schwankung der linearen Drift führen wir auf thermische Fluktuationen zurück, die von unterschiedlichen Temperaturen im Labor bei Tag und Nacht und je nach Wetter angetrieben werden. Eine wesentliche Veringerung der Drift erhoffen wir uns von einer Befestigung der Spiegel durch optisches Kontaktieren und von einer elektronischen Regelung, die die Temperatur der Resonatorkammer konstant hält.

Die gemessene Resonatordrift (Abb.3.5) läßt sich sehr gut durch eine Gerade anpassen. Nach der Methode der kleinsten Quadrate erhält man für den Fehler der Geradensteigung Werte von besser als 5 Hz/s. Wesentlich größer ist der Fehler Δb für den Achsenabschnitt. Δb läßt sich als Funktion der Mittelungszeit t schreiben, wenn man nur einen Teil der Messung bis zu einer festen Zeit t durch eine Gerade anpaßt.

$\Delta b(t)$ ist in Abbildung 3.6 aufgetragen und läßt sich interpretieren als die Standardabweichung der Laserfrequenz von der Wasserstoffresonanz bei einer Mittelung über eine Zeit t. Dieser Fehler sinkt für Zeiten von länger als 5 Minuten unter 1 kHz.

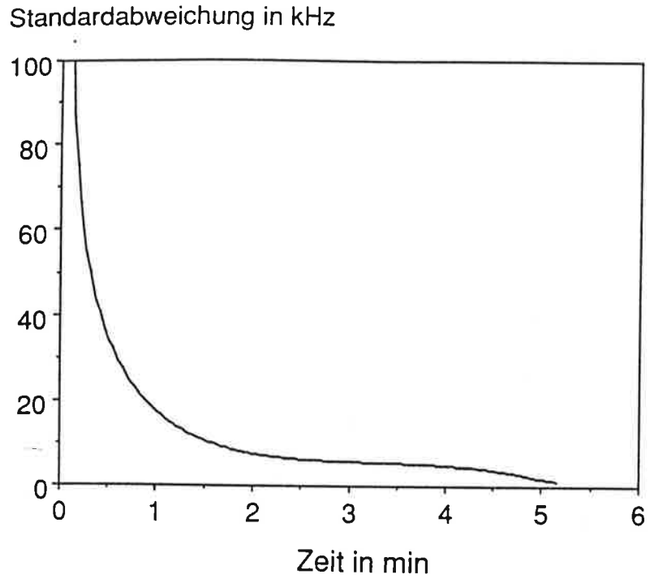


Abb.3.6 Standardabweichung der Laserfrequenz vom Maximum der Wasserstoffresonanz als Funktion der Mittelungszeit.

Damit ist eine Messung der 1S-2S-Übergangsfrequenz mit einer relativen Genauigkeit von 10^{-12} prinzipiell möglich. Momentan ist die Genauigkeit durch das Schrotrauschen des Detektors begrenzt. Dieses Intensitätsrauschen von ca. 60 s^{-1} bei Zählraten von 2000 s^{-1} und Zählzeiten von 0.5 s wird von der Regelung direkt in Frequenzrauschen umgesetzt. Längere Zählzeiten sind wiederum wegen der Resonatordrift nicht möglich.

3.5 Geschwindigkeitsselektive Spektren

Die zeitliche Trennung von Anregung und Nachweis läßt sich verwenden, um die Linienbreite der Wasserstoffresonanz weiter zu reduzieren: Wartet man mit dem Nachweis, bis die schnellen Atome den Detektor passiert haben, tragen nur die langsamen Atome zum Signal bei. Um eine genauere Vorstellung der auftretenden Effekte zu bekommen, ist im Anhang eine Rechnung durchgeführt, die eine mit der Chopperfrequenz harmonisch oszillierende

Lichtintensität mit berücksichtigt. Eine quantitativ genaue Beschreibung der rechteckförmigen Modulation durch den Chopper ist damit nicht zu erwarten. Für eine qualitative Beschreibung der Choppereffekte ist die Rechnung jedoch sehr instruktiv.

Wir interessieren uns zunächst für den Beitrag einer longitudinalen Geschwindigkeitsklasse zum Gesamtfluß der angeregten Atome durch den Detektor. Die Lichtintensität soll mit $\cos^2(\alpha/2*t)$ variieren. α ist die Kreisfrequenz des Choppers. Zunächst erhält man durch die Modulation zwei Seitenbänder. Für $\alpha << v_t/w_o$ können sie vernachlässigt werden, da sie noch innerhalb der durchflugsverbreiterten Resonanzlinie liegen und nicht aufgelöst werden. Der Einfluß des Choppers wird dann durch eine Funktion $Z(t,v_z)$ beschrieben, die als zusätzlicher Wichtungsfaktor zur longitudinalen Geschwindigkeitsverteilung zu multiplizieren ist.

$$Z(t,v_z) = \frac{1}{8}\{3 + 4\,K_1 \sin(\alpha t + \varphi_1) + K_2 \sin(2\alpha t + \varphi_2)\}$$

mit

$$K_1 = \frac{\lambda}{\sqrt{\alpha^2 + \lambda^2}} \qquad K_2 = \frac{\lambda}{\sqrt{(2\alpha)^2 + \lambda^2}}$$

$$\varphi_1 = \arctan\left(\frac{\lambda}{\alpha}\right) \qquad \varphi_2 = \arctan\left(\frac{\lambda}{2\alpha}\right)$$

und $\lambda = v_z/L$ (reziproke Flugzeit zwischen Düse und Detektor).

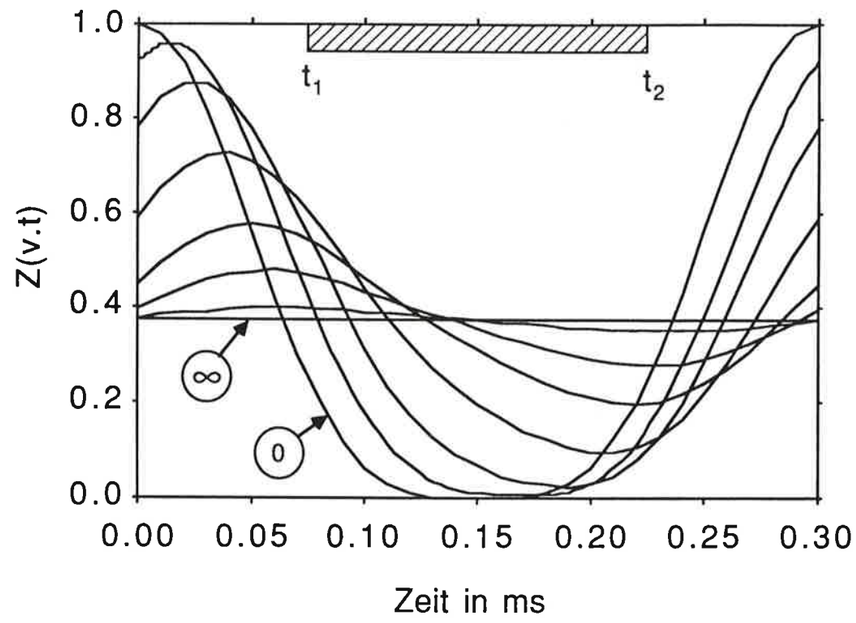


Abb.3.7 Wichtungsfunktion $Z(t,v_z)$ für verschiedene longitudinale Geschwindigkeitsklassen ausgedrückt in Flugzeiten $\tau = L/v_z$. τ variiert zwischen dem 0.1- und dem 6.4-fachen der Anregungszeit. Die mit 0 und ∞ markierten Kurven sind die Grenzwerte für $\tau \to 0$ und $\tau \to \infty$.

Abb.3.7 zeigt die Funktion $Z(t,v_z)$ für verschiedene Flugzeiten τ. Die mit 0 und ∞ markierten Kurven sind die Grenzwerte für $\tau \to 0$ und $\tau \to \infty$. In den Kurven dazwischen ist τ ein Vielfaches der Anregungszeit: $\tau = x * \tau_a$ mit x=0.1, 0.2, 0.4, 0.8, 1.6 und 6.4 ; ($\tau_a = 1/2 * 2\pi/\alpha$). Man kann zwei Effekte ablesen:

-) Der Fluß der angeregten Atome ist im Takt der Chopperfrequenz moduliert. Die Modulationstiefe ist für langsame Atome geringer als für schnelle.
-) Die angeregten Atome erscheinen am Detektor mit einer geschwindigkeitsabhängigen Verzögerung.

Beide Effekte lassen sich verwenden, um schnelle Atome auszufiltern. Dazu muß Detektor mitberücksichtigt werden. Er soll zunächst im Gegentakt

betrieben werden, d.h.,immer dann ausgeschaltet sein, wenn das Licht eingeschaltet ist. Den Wichtungsfaktor, mit dem eine Geschwindigkeitsklasse zur Zählrate beiträgt, erhält man durch Mittelung von $Z(t,v_z)$ über die Zeit, in der der Detektor aktiviert ist.

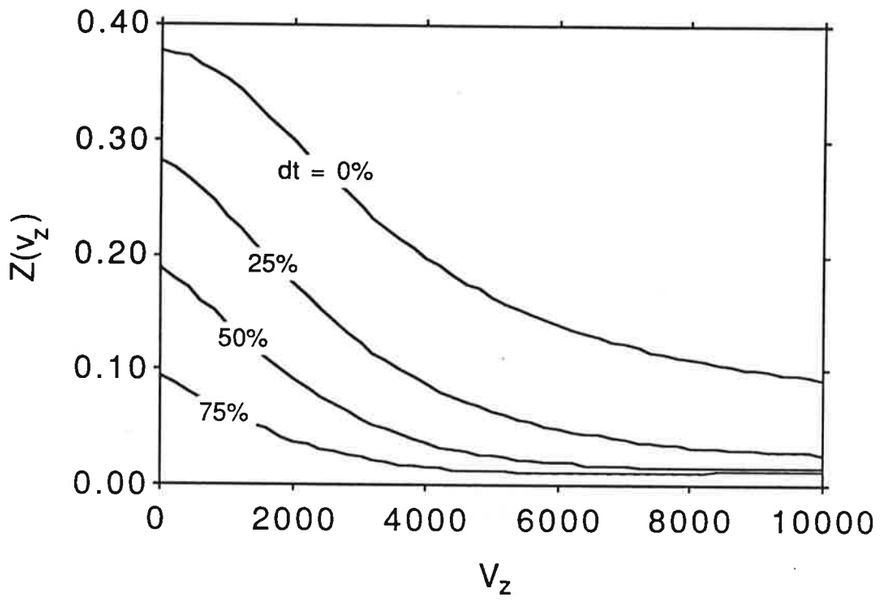


Abb.3.8 Wichtung der longitudinalen Geschwindigkeiten nach Berücksichtigung der Detektorphase. Aufgetragen ist der zeitliche Mittelwert von $Z(t,v_z)$.

Das Ergebnis ist in Abb.3.8 zu sehen. Die vier Kurven unterscheiden sich voneinander im Zeitpunkt t_1, an dem der Detektor eingeschaltet wird. Die Abschaltzeit t_2 liegt fest ($t_2=3/2*\pi/\alpha$). Die Einschaltverzögerung dt ist relativ zur Anregungszeit τ_a angegeben $dt=1-(t_2-t_1)/\tau_a$. Die schnellen Atome werden auch ohne verzögerte Detektion in ihrem Beitrag stark gedämpft. Dies ist auf die geringe Modulationstiefe von $Z(t,v_z)$ für langsame Atome zurückzuführen. Sie reagieren dadurch weniger empfindlich auf zeitliche Effekte. Mit wachsender Verzögerung nimmt die Dämpfung für hohe Geschwindigkeiten weiter zu. Das Zentrum der Geschwindigkeitsverteilung wird so auf Kosten der Zählrate zu kleineren Werten hin verschoben. Der Fall ohne verzögerte

ohne verzögerte Detektion läßt sich noch etwas genauer betrachten, wenn man für t_1 den expliziten Wert $t_1 = 1/4 * 2\pi/\alpha$ einsetzt. Das Mittelungsintegral über $Z(t,v_z)$ kann dann geschrieben werden als:

$$< Z(v_z) > \; = \; \frac{1}{2\pi} \left(0.17 + \frac{1}{1 + (\lambda/\alpha)^2} \right)$$

Man erhält für die Wichtung eine Lorentz-Funktion mit einem Maximum bei $v_z = 0$ und einer Breite, die gerade der Chopperfrequenz entspricht.

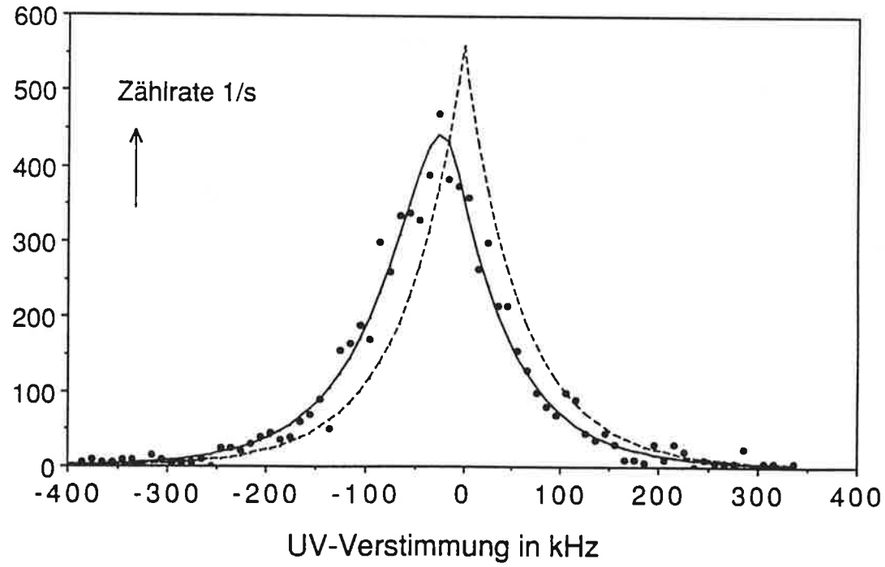


Abb.3.9 Wasserstoffresonanz (F=1) aufgenommen mit Verzögerung zwischen Anregung und Nachweis von 50µs. Die Länge der Anregungperiode betrug 150µs, die der Nachweisperiode 100µs.

Eine systematische experimentelle Untersuchung der Choppereffekte steht noch aus und kann nicht mehr in diese Arbeit aufgenommen werden. Wir

haben jedoch einige erste Spektren mit zeitlich verzögertem Nachweis aufgenommen und einen deutlichen Einfluß auf die Linienform festgestellt. Abbildung 3.9 zeigt ein typisches Spektrum. Es wurde bei Raumtemperatur mit einer Verzögerungszeit von 50 µs und einer Anregungszeit von 150 µs aufgenommen.

Die Asymmetrie durch den relativistischen Doppler-Effekt ist fast völlig verschwunden, ohne daß jedoch die Linienbreite dadurch wesentlich reduziert wurde. Aus dem Vergleich mit der Funktion für die theoretische Linienform (Gl. A.5) erhält man eine mittlere transversale Geschwindigkeit von $\langle v_t \rangle = 120$ m/s und eine mittlere longitudinale Geschwindigkeitsverteilung von $\langle \Delta v_l \rangle = 1410$ m/s entsprechend einer Temperatur von 95 K. Diese Werte dürfen nicht allzu ernst genommen werden, da im Ausdruck für die theoretische Linienform die Choppereffekte nur durch die Parameter der Maxwellschen Geschwindigkeitsverteilung berücksichtigt werden können. Der genaue Verlauf von $Z(t,v_z)$ geht dabei nicht mit ein.

4. METASTABILER ATOMSTRAHL

Zur Erprobung und Entwicklung eines empfindlichen Detektors für metastabile Wasserstoffatome haben wir die in Abschnitt 2.4 beschriebene Atomstrahlapparatur vorübergehend um eine Elektronenkanone erweitert, mit der die Wasserstoffatome auf einfache Weise durch Elektronenstoß in den $2S_{1/2}$-Zustand angeregt werden können. Darüber hinaus dienten die in diesem Kapitel beschriebenen Versuche dazu, Erfahrungen zu sammeln für ein in Vorbereitung befindliches Experiment zur Präzisionsspektroskopie der 2S-4S-Übergänge (siehe Einleitung). Der Aufbau der Elektronenkanone orientiert sich hauptsächlich an der Konstruktion von Garreau et al.[57], wie sie im Pariser Wasserstoffexperiment verwendet wurde und dem Experiment von Lamb und Retherford. [58]

4.1 Elektronenkanone

Eine Skizze der Anordnung ist in Abb.4.1 zu sehen. Nach Austritt aus einem Teflonrohr mit 3 mm Innendurchmesser durchqueren die in der Gasentladung dissoziierten Wasserstoffatome unter einem Winkel von 20° einen vorne offenen kanalförmigen Metallkäfig. Durch Stöße mit Elektronen werden einige Atome angeregt und auf die Achse des Käfigs gelenkt.[58] Die Elektronen diffundieren aus einem elektrisch beheizten Wolframdraht von 0.1 mm Durchmesser, der im Abstand von etwa 1 mm parallel zum Käfig verläuft. Die Länge des Drahtes beträgt 3 cm, der Heizstrom 1.5 A und die Heizspannung 2.6 V. Der Draht befindet sich gegenüber dem geerdeten Käfig auf einem einstellbaren Potential zwischen 0 und +30 V. Die Elektronen werden in Richtung Käfig beschleunigt und durchqueren ihn dann mit einer definierten kinetischen Energie.

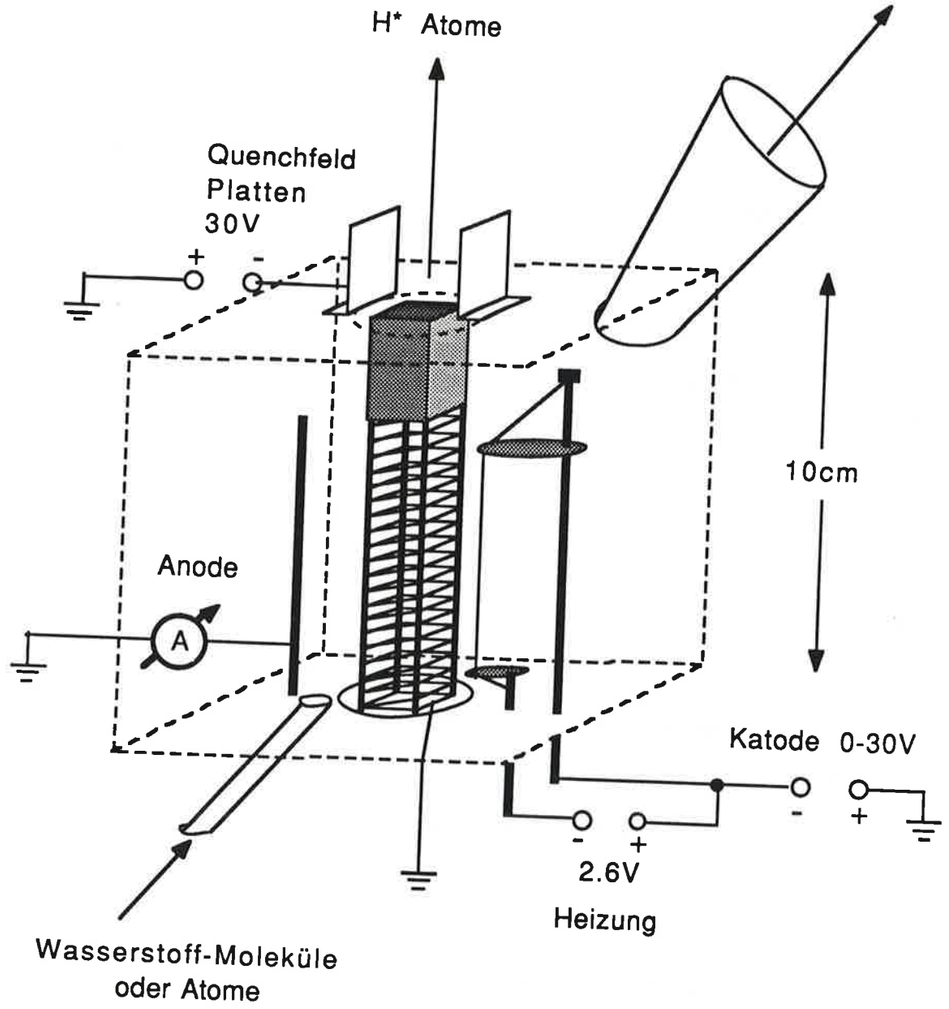


Abb.4.1 Aufbau zur Anregung von Wasserstoff durch Stöße mit Elektronen.

Das Innere des Käfigs ist feldfrei. Dies ist wichtig, da die angeregten Atome sonst durch Mischen der 2S-und 2P-Zustände sofort wieder zerfallen. Auf der dem Draht gegenüberliegenden Seite des Käfigs dient eine 3 cm lange Messingschraube als Anode. Sie ist über ein Ampèremeter elektrisch mit Masse verbunden. Der gemessene Strom ist proportional zum Fluß der Elektronen durch den Käfig. Der gesamte Aufbau ist umgeben von einem quadratischen Kasten aus Messingblech mit einer Austrittsöffnung für die metastabilen Atome und einer Öffnung gegenüber dem Eintrittsrohr, aus der die nicht stoßenden Atome schnell aus der Anregungszone abfließen können. Der Kasten fängt den Großteil der Elektronen ein und schirmt die Apparatur vor den elektrischen Feldern um den Heizdraht herum ab. Hinter dem Austrittsloch für die metastabilen Atome erzeugen zwei im Abstand von 1 cm gegenüberstehenden Platten (1x1 cm^2) ein elektrisches Quenchfeld (kurz Testfeld), mit dem die Anregung der Atome testweise abgeschaltet werden kann. Alle elektrischen Zuleitungen bestehen aus lackiertem Kupferdraht und befinden sich in geflochtenen Abschirmhüllen aus versilbertem Kupferdraht.

Die ganze Anordnung ist auf einer Grundplatte befestigt, die wiederum auf den für den Einkoppelspiegel verwendeten justierbaren Spiegelhalter des UV-Resonators geschraubt ist. Durch ein Loch in der Grundplatte können die metastabilen Atome mit einem Laserstrahl longitudinal angeregt werden.

Bis auf den Käfig bestehen alle Teile aus Messing. Der Käfig wurde aus 0.3 mm starkem Silberdraht um vier M4-Messinggewindestangen gewickelt. Der Drahtabstand beträgt 1 mm. Es ist entscheidend, den Aufbau frei von Isolatoren zu halten, die sich durch Elektronenbeschuß aufladen und Störfelder im Käfig produzieren. Eine einzige nicht geerdete Schraube kann bereits zum Zerfall aller metastabilen Atome führen, bevor sie das Gehäuse

verlassen können. Alle Teile müssen außerdem im Ultraschallbad von Fett und Handschweiß mit Aceton gereinigt werden.

Ein gutes Maß für die Stärke von Störfeldern ist die Strom- Spannungs-Charakteristik (Abb.4.2). Bei Verwendung korrodierter oder schlecht gereinigter Metallteile kann sich eine Gegenspannung aufbauen, so daß erst bei einer Katodenspannung von einigen Volt ein Anodenstrom zu fließen beginnt. Im optimalen Zustand kann man schon bei 0 V einen Diffusionsstrom messen, zusätzlich angetrieben durch den Spannungsabfall längs des Heizdrahtes. Oberhalb von 10 V steigt der Strom nicht weiter an. Der Heizdraht als Elektronenquelle sättigt hier. Bei höherem Heizstrom setzt die Sättigung bis zu 10V später ein, was aber die Lebensdauer des Drahtes drastisch reduziert. Die Elektronenkanone wird bei Katodenspannungen oberhalb von 10 V betrieben, bei der der Elektronenfluß nicht mehr mit der Spannung variiert.

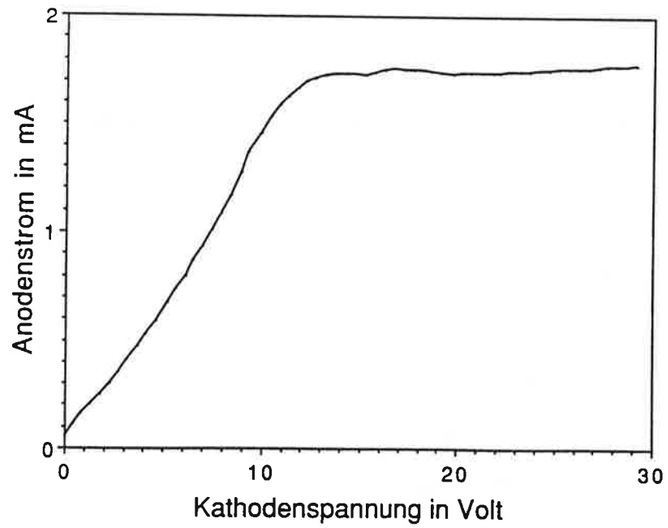


Abb.4.2 Strom-Spannungs-Charakteristik der Elektronenkanone.

4.2 Der metastabile Strahl

Bei der Kollision von Wasserstoff mit Elektronen können die metastabilen Atome auf zwei Arten entstehen. Ab einer Elektronenenergie von 10.3 eV beginnt die Anregung atomaren Wasserstoffs entsprechend der Reaktion $H + e \rightarrow H^* + e$. Der Wirkungsquerschnitt für diesen Prozeß hat bei 11.6 eV eine charakteristisches Maximum von $0.163(20) * \pi * a_0^2$ und fällt dann bis etwa 1000 eV langsam auf die Hälfte ab. (59) Bei rechtwinkligem Stoß mit Elektronen einer Energie von 12 eV beträgt die mittlere Ablenkung für Atome bei Zimmertemperatur etwa 20°. Die Streuung um diesen Mittelwert ist jedoch ebenso groß, so daß nur ein Teil der metastabilen Atome die Elektronenkanone durch das Austrittsloch verlassen können.(58) Die Erzeugung metastabiler Atome durch Stöße mit molekularem Wasserstoff nach der Reaktion $H_2 + e \rightarrow H + H^* + e$ ist ebenfalls möglich und beginnt bei 14.9 eV (60). Der Wirkungsquerschnitt steigt bis 20 eV stark an und bleibt dann bis 30 V nahezu konstant. Die Geschwindigkeitsverteilung der beiden resultierenden Wasserstoffatome ist in deren gemeinsamen Schwerpunktsystem räumlich isotrop (61). Ein Teil der Anregungsenergie geht während der Dissoziation in kinetische Energie über, so daß die mittlere Geschwindigkeit der metastabilen Atome etwa 7000 m/s beträgt (61).

Die Energieabhängigkeit beider Prozesse läßt sich durch die Aufnahme eines Anregungsspektrums (Abb.4.3) messen. Aufgetragen ist die Zählrate des Detektors gegen die Katodenspannung bei ein- bzw. ausgeschalteter Gasentladung. Der verwendete Detektor basiert auf dem Nachweis von Lyman-α-Photonen aus dem Zerfall der metastabilen Atome in einem Quenchfeld. Er ist im Abschnitt 4.3 genauer beschrieben. Die Zählrate wird bei jeder Spannung einmal mit und einmal ohne Quenchfeld aufgenommen und nur die Differenz als Signal aufgetragen. Der Untergrund von Lyman-α-Photonen, die in der Elektronenkanone z.B. ab 10.2 V durch Anregung des

kurzlebigen 2P-Zustands oder ab 11.5 V durch Fluoreszenz von H_2-Molekülen entstehen[58], wird so effektiv unterdrückt. Elektronen aus der Elektronenkanone und Wasserstoffionen, die ab 15.4 V in der Reaktion $H_2 + e \rightarrow H_2^+ + 2e$ und ab 18 V in der Reaktion $H_2 + e \rightarrow H^+ + H + 2e$ entstehen[60], werden als geladene Teilchen vom Quenchfeld beeinflußt und können das Signal weiterhin stören.

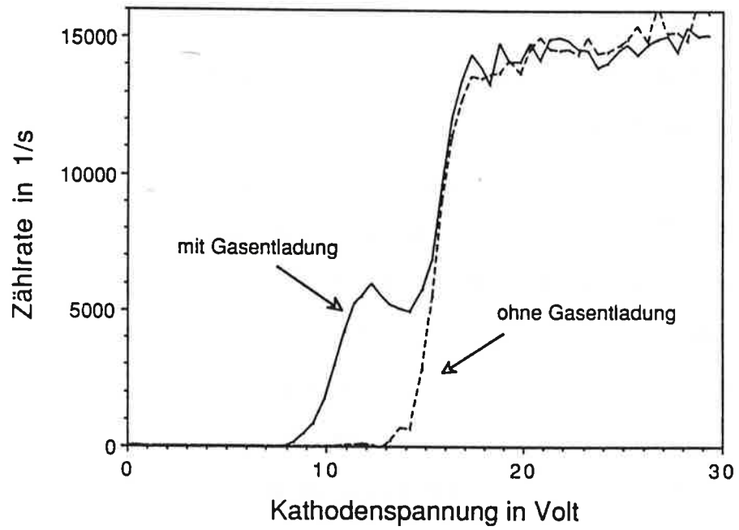


Abb.4.3 Anregungsspektrum: Zählrate in Abhängigkeit der Katodenspannung.

Bei eingeschalteter Gasentladung erkennt man bei 12 V die charakteristische Resonanz der Anregung von atomarem Wasserstoff. Dazu addiert sich ab 15 V das Signal der metastabilen Atome aus der Reaktion unter Beteiligung der H_2-Moleküle. Es ist etwa gleich intensiv. Bei einem Vergleich der Zählraten für beide Prozesse ist neben dem schwer meßbaren Dissoziationsgrad in der Anregungsregion die unterschiedliche Geschwindigkeitsverteilung der metastabilen Atome zu berücksichtigen: Die Eintrittsöffnung des Detektors

und die Austrittsöffnung der Elektronenkanone kollimieren den Atomstrahl und blenden unterschiedlich viele Atome aus. Auf eine entsprechende numerische Analyse haben wir hier verzichtet. Bei ausgeschalteter Gasentladung ist die Resonanz bei 12 V verschwunden. Trotz fehlender metastabiler Atome aus der Reaktion mit atomaren Wasserstoff ist die Rate für Spannungen ab 17 V etwas größer als bei eingeschalteten Gasentladung. Dies ist nur teilweise mit dem um das 1.5-fache erhöhten Fluß von H_2-Molekülen zu erklären. Möglicherweise spielen hier Wasserstoffionen eine Rolle. [60]

Eine Abschätzung für die Geschwindigkeit der metastabilen Atome ist möglich, wenn man die Rate der metastabilen Atomen in Abhängigkeit des Testfeldes mißt (Abb.4.4).

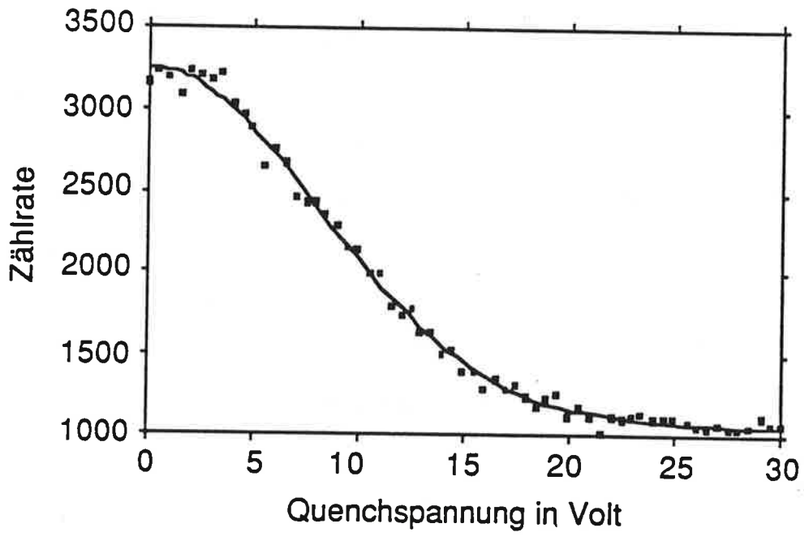
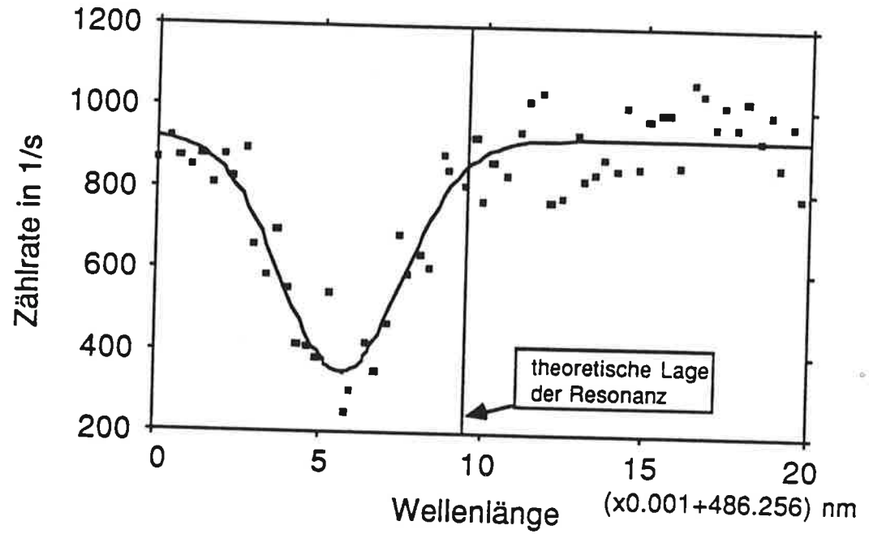


Abb.4.4 Reduktion der Metastabilen-Rate durch das Testfeld. Die Anregung erfolgte bei 12 V und eingeschalteter Gasentladung.

Die Wahrscheinlichkeit, ein metastabiles Atom nach Durchlaufen des Testfeldes immer noch im angeregten Zustand zu finden, ist unter der Annahme eines exponentiellen Zerfalls im Feld proportional zu $1-\exp(-\gamma * L/v)$. Die Zerfallskonstante γ hat den Wert $2780*(U/a)^2\ cm^2\ V^{-2}\ s^{-1}$ (10) wobei U die Spannung und a der Abstand zwischen den beiden Elektroden ist. Der Quotient aus Elektrodenlänge L und Atomgeschwindigkeit v entspricht der Aufenthaltsdauer im Feld. Durch Anpassen der theoretischen Kurve an die gemessenen Punkte erhält man für die Geschwindigkeit einen Wert von 2500 m/s. Diese Geschwindigkeit kann aber nur ein Schätzwert sein, da die Geschwindigkeitsverteilung der Atome sowie Randeffekte für den Feldverlauf zwischen den Elektroden nicht berücksichtigt sind.

Ein weiterer Test des metastabilen Atomstrahls ist durch optische Anregung der 2S-4P-Resonanz möglich. Die Wellenlänge des Übergangs bei 486 nm kann mit dem zur Verfügung stehenden Farbstofflaser leicht erzeugt werden. Die in den 4P-Zustand angeregten Atome sind mit einer Lebensdauer von 12.4 ns (10) nicht mehr metastabil und zerfallen in den Grundzustand, bevor sie im Detektor nachgewiesen werden können. Die Zählrate im Detektor nimmt entsprechend ab. Durch eine Blende von 1 mm Durchmesser im Abstand von 4 cm vom Detektor wird der Atomstrahl kollimiert. Die Blende ist vollständig von einem Laserstrahl mit 100 mW Leistung ausgeleuchtet. Zur Verringerung des Untergrundes wird wie bei der Messung des Anregungsspektrums die Differenz der Zählraten bei an- und abgeschaltetem Quenchfeld gebildet.



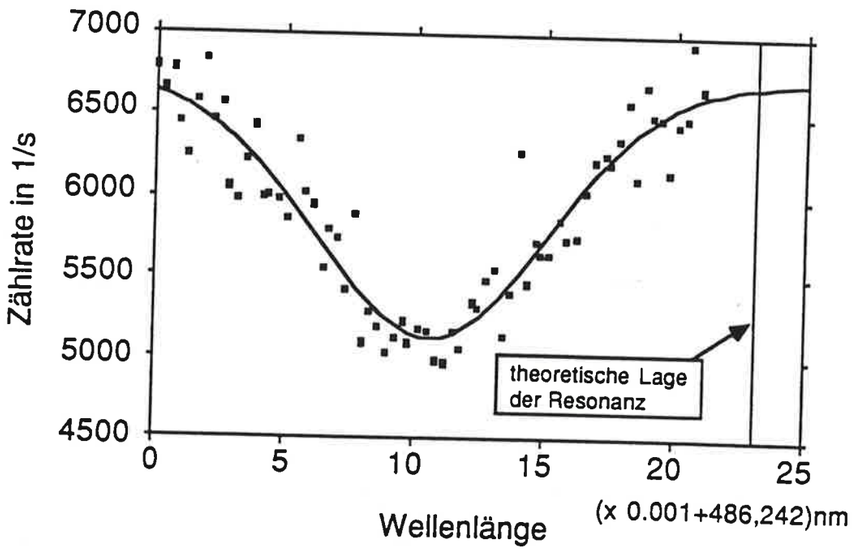


Abb.4.5 Reduktion der Metastabilen-Rate durch Anregung des 2S-4P-Übergangs.
a) bei eingeschalteter Gasentladung und einer Katodenspannung von 12 V.
b) bei ausgeschalteter Gasentladung und einer Katodenspannung von 17 V.
Die senkrechte Linie zeigt die theoretische Wellenlänge der Übergänge.(9)

Die Resonanzlinien lassen sich gut durch Gauß-Funktionen beschreiben (durchgezogene Linie). Durch Anpassung der Kurvenparameter mit Hilfe einer χ^2-Fitprozedur erhält man für die volle Breite bei halbem Maximum 4.5(6) GHz bei eingeschalteter Gasentladung (Abb. 4.5a) und 11.0(1.2) GHz bei ausgeschalteter Gasentladung (Abb.4.5b). Die Verschiebungen betragen 4.5(2) GHz bzw. 15.7(4) GHz. Bei einer theoretische Beschreibung der Linienform muß sowohl die Doppler-Verbreiterung als auch die Leistungs-verbreiterung berücksichtigt werden. Tatsächlich ist eine deutliche Abnahme der Metastabilenrate erst dann zu erwarten, wenn die Leistungs-verbreiterung etwa der Doppler-Verbreiterung entspricht. Andernfalls wird nur ein geringer Bruchteil der atomaren Geschwindigkeitsverteilung in den 4P-Zustand angeregt. Erklärt man die Abweichung des beobachteten Resonanzmaximums von der Lage der theoretischen Resonanzwellenlänge ausschließlich durch die Doppler-Verschiebung, erhält man für Fall a) in Abb. 4. 5 eine mittlere Geschwindigkeit von $v_o = 2200$ m/s , und für Fall b) $v_o = 7700$ m/s. Beide Werte stimmen mit den theoretisch erwarteten Werten überein.

Interessant ist die etwa doppelt so große maximale Abnahme des Signals in Spektrum b) gegenüber Spektrum a). Damit bestätigt sich die hohe Rate von metastabilen Atomen aus der Reaktion mit den H_2-Molekülen. Der wesentlich größere Untergrund in Spektrum b) erhärtet außerdem die Vermutung eines quenchfeldabhängigen Störsignals z.B. durch geladene Teilchen.

Um die Intensität des Atomstrahls zu bestimmen, wurde zunächst die Divergenz gemessen, mit der der Strahl die Austrittsöffnung der Elektronen-kanone verläßt. Mit zwei elektrischen Mikrometerschrauben konnte der Spiegelhalter, auf dem die Kanone montiert war, um zwei rechtwinklig zueinander stehende Achsen gekippt werden. Der Winkel zwischen den

beiden Positionen, bei denen die Zählrate um die Hälfte abgenommen hat, betrug für beide Kipprichtungen 12° oder umgerechnet auf den Raumwinkel $4 * 10^{-2}$ sr. Mit dem im Abschnitt 2.4 beschriebenen Detektor wurde der Fluß der metastabilen Atome gemessen, wobei der Detektor im 7 cm Abstand von der Elektronenkanone einen Raumwinkel von $5 * 10^{-3}$ sr erfaßt. Bei eingeschalteter Gasentladung und für eine Katodenspannung von 12 V betrug die maximale Zählrate 7000 s^{-1}. Durch Multiplikation mit der Nachweiseffizienz des Detektors von 1/200 und dem Verhältnis der beiden Raumwinkel erhält man für die Zahl an metastabilen Atomen, die pro Sekunde die Austrittsöffnung der Elektronenkanone verlassen, den Wert $1 * 10^{-7}$ s^{-1}.

4.3 Channeltrondetektor

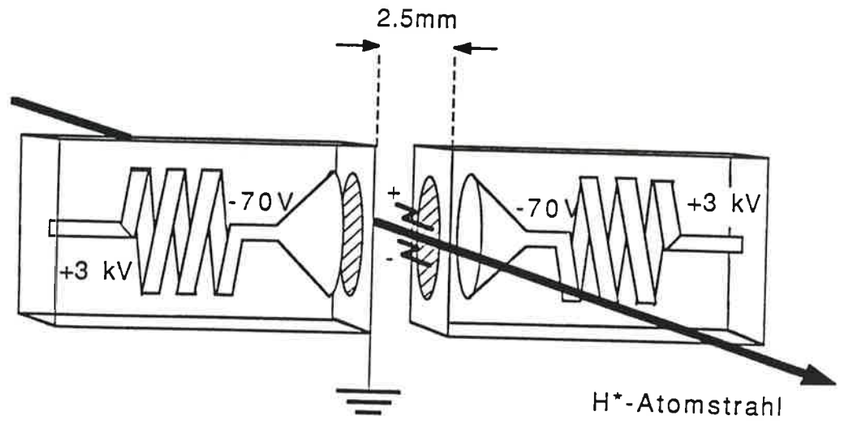


Abb.4.6 Channeltrondetektor für metastabilen Wasserstoff.

Um den in Abschnitt 2.4 beschriebenen Detektor weiter zu verbessern, haben wir versucht, mit einem Paar sich gegenüberliegender Channeltron-Elektromultiplier den ganzen Raumwinkel um eine Quenchfeldregion herum zu erfassen (Abb.4.6). Die beiden Channeltrons vom Typ CEM 4039 der Firma Galileo (Sturbridge, Mass.) befinden sich jedes in einem geerdeten Metallkästchen (53 x 25 x 25 mm^3). Die Trichteröffnungen mit einem Durchmesser von 10 mm sind durch ein Edelstahlnetz abgeschirmt (Maschenweite 0.05 mm). Der Abstand zwischen den Channeltrontrichtern ist in Abb.4.6 stark übertrieben dargestellt, um den Blick auf die Quenchfeldregion zu ermöglichen. Das Quenchfeld bildet sich zwischen zwei Silberdrähten aus, die mit vakuumtauglichem Klebstoff (Torr Seal) auf den Deckel eines der Abschirmkästchen geklebt sind und oberhalb und unterhalb des Atomstrahls parallel verlaufen. Sie sind umgekehrt gepolt , so daß die Anordnung im Fernfeld elektrisch neutral erscheint. Der Signaluntergrund aufgrund geladener Teilchen soll damit verringert werden. Die für Lyman-α-Strahlung zunächst unempfindlichen Trichter der Channeltrons sind mit einer 1 µm dicken Schicht aus Kaliumjodid versehen. Die Quanteneffizienz wird dadurch auf einen Wert von 20-40% erhöht [55]. Die Beschichtung ist leicht hygroskopisch. Der Detektor sollte deshalb in einem Exikator möglichst unter Vakuum aufbewahrt werden. Die übliche Luftfeuchtigkeit, der der Detektor während des Einbaus in die Apparatur einige Stunden lang ausgesetzt ist, scheint jedoch nicht zu schaden, solange man es vermeidet den Detektor direkt anzuatmen.

In Abb. 4.7 ist der Effekt der Beschichtung für metastabile Atome, die bei 12 V durch Anregung atomaren Wasserstoffs entstehen, deutlich zu sehen. Für metastabile Atome aus Anregung molekularen Wasserstoffs bei Spannungen ab 15 V ändert sich die Empfindlichkeit des Detektors jedoch

nicht. Beide Channeltrons erfassen zusammen einen Raumwinkel um die Quenchfeldregion von 45% von 4π. Multipliziert mit einer Quanteneffizienz von maximal 40% ist für den Detektor eine Nachweiseffizienz von etwa 20% zu erwarten, was die Effizienz des in Abschnitt 2.4 beschriebenen Detektors um das 40-fache übertrifft.

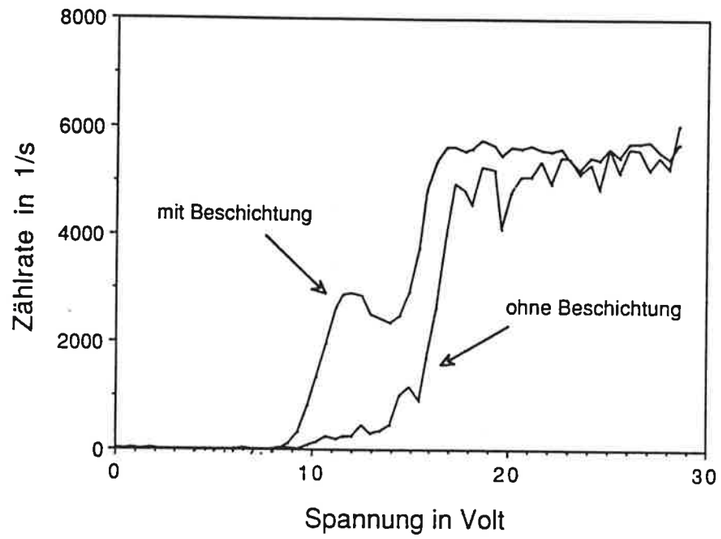


Abb.4.7 Sensibilisierung durch Kaliumjodid: Anregungsspektrum bei Verwendung des Channeltrondetektors vor und nach der Beschichtung der Channeltrons mit Kaliumjodid. Bei beiden Kurven ist die Gasentladung eingeschaltet.

Bei Aufnahme des Spektrums in Abb.4.7 war der Channeltrondetektor in 15 cm Abstand von der Elektronenkanone entfernt montiert. 4 cm vor dem Detektor befand sich eine Blende mit 1.8 mm Durchmesser. Der Raumwinkel, der vom Detektor erfaßt wird, beträgt somit $\sim (1.8/110)^2 = 2.7 * 10^{-4}$ sr. Für eine Vergleichsmessung war der Photomultiplierdetektor gleichzeitig zwischen Elektronenkanone und Blende montiert. Wegen seiner größeren

Eintrittsöffnung ist der von ihm erfaßte Raumwinkel rund 20mal größer. Trotzdem übertrifft im Maximum der Resonanz bei 12 V die Zählrate des Channeltrondetektors die des Photomultipliers um das Doppelte. Dadurch bestätigt sich die optimistische Abschätzung einer Nachweisempfindlichkeit von 20%.

Für die Messung der 1S-2S-Zwei-Photonenresonanz ist der Channeltron-detektor in dieser Form leider nicht geeignet: Trotz ihrer geringen Empfind-lichkeit für Strahlung bei 243 nm sättigen die Channeltrons während der Anregungsperiode durch Streulicht im UV-Resonator. Nach der Anregungs-periode sind die Channeltrons dann für etwa 10 ms "blind", bis sich an der Oberfläche des Channeltronkanals die zum Betrieb notwendige Elektronen-dichte wieder aufgebaut hat [56]. Chopperfrequenzen von 100 Hz sind aber nicht möglich, da dadurch die Stabilisierung des UV-Resonators gestört wird (siehe Abschnitt 2.2). Der Channeltrondetektor kann jedoch für das in Vor-bereitung befindliche Experiment zur hochgenauen Spektroskopie des 2S-4S-Übergangs verwendet werden.

ANHANG

A.1 Doppeltresonante Frequenzverdoppelung

DOUBLY-RESONANT SECOND-HARMONIC GENERATION IN β-BARIUM-BORATE

C. ZIMMERMANN, R. KALLENBACH, T.W HÄNSCH
Max-Planck-Institut für Quantenoptik, D-8046 Garching bei München, Fed. Rep. Germany

and

J. SANDBERG
Department of Physics, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, MA 02139, USA

Received 21 November 1988

We describe a versatile tunable continuous wave ultraviolet source for spectroscopy. An angle-tuned β-barium-borate frequency doubler is placed inside a doubly resonant build-up cavity. By compensating for double refraction, this scheme provides efficient second harmonic generation in a pure TEM_{00} mode.

1. Introduction

Frequency doubling in nonlinear crystals is a common technique to generate coherent radiation in a frequency range where direct laser sources do not exist. To increase the conversion efficiency, the crystal may be placed in the laser cavity or in an external cavity that is locked on resonance with the fundamental light [1]. Since the second harmonic power generated with this method is proportional to the square of the fundamental power passing through the crystal, the conversion efficiency is greatly enhanced over single pass methods. Another technique to improve the conversion efficiency utilizes resonant enhancement of the second harmonic light [1,2]. The presence of an external field at the harmonic frequency will increase the power radiated by the nonlinear polarization if the external field is of the proper phase. The field which builds up in a cavity resonant for the second harmonic effectively provides such an external field. Under these conditions, the second harmonic may be predominantly generated in a TEM_{00} mode, even in the presence of double refraction, since the cavity may be adjusted to allow resonance for only the TEM_{00} mode. Under certain conditions, the simultaneous application of both methods, or doubly-resonant second-harmonic generation, is possible. The main difficulty is to maintain simultaneous resonance for the fundamental and the second harmonic waves and to satisfy the phase relationship between the standing wave fields necessary for optimum nonlinear coupling between the modes [3,4]. To solve this problem the birefringence of the crystal in combination with the dispersion of the air in the cavity can be used.

Doubly resonant second harmonic generation and doubly resonant subharmonic generation have been reported in connection with experiments for the observation of sqeezed light [5,6]. In these experiments the crystal and the frequencies are chosen such that temperature controlled 90° phase matching can be applied. In this work we extend the doubly resonant second harmonic generation to the case of angle tuned phase matching. The presence of double refraction reduces the coupling between the two standing waves and demands a special cavity geometry but it also opens an easy way to control the resonance of the second harmonic wave. This technique is theoretically described and experimentally demonstrated with β-barium-borat at 488 nm. It turns out, that even for large double refraction the conversion efficiency may exceed that of single resonance methodes if the round trip losses for the second harmonic can be reduced to less than 10%. This

0 030-4018/89/$03.50 © Elsevier Science Publishers B.V.
(North-Holland Physics Publishing Division)

is especially attractive in cases when only low fundamental input power is available. A theoretical analysis of the coupling parameter between the two modes also shows that for large double refraction the necessary intensity of the fundamental light in the crystal can be made much smaller compared to the conventional method. For crystals with a low damage threshold, this can be important.

2. Experimental considerations

Before we start with the theoretical description it is useful to consider some of the complications which appear in an external cavity that is resonant for both the fundamental and the second harmonic wave. The experimental situation is sketched in fig. 1. A negative uniaxial birefringent crystal is placed inside a cavity whose input coupling mirror M1 at the left side is partially transmitting for the fundamental and highly reflecting for the second harmonic wave. At the right side, the output coupler M2 is highly reflecting for the fundamental and partially transmitting for the second harmonic wave. The polarization of the fundamental wave is chosen such that it propagates through the crystal as an ordinary beam. The second harmonic wave builds up as an extraordinary beam and propagates in the crystal with a certain angle to the cavity axis due to double refraction. Since this "walk off" changes direction if the beam propagation is reversed, a plano concave cavity can be used to obtain a closed round trip for both the ordinary and the extraordinary beam.

To achieve resonance, the total phase collected during one round trip has to be a multiple of 2π. This

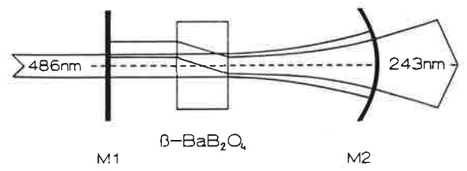


Fig. 1. Angle-tuned second-harmonic generation in a doubly resonant cavity. The walk off of the extraordinary beam requires a plano concave geometry.

can be controlled by small changes of the mirror separation with a piezo element. For simultaneous resonance of both waves two such phase conditions have to be satisfied, and since the phase shifts at the mirrors are in general different for the two frequencies, simply changing the mirror separation is not sufficient. An additional element is needed to compensate for this difference in the mirror phase shifts. This can be the doubling crystal itself. By tilting the crystal around an axis parallel to the polarization of the fundamental wave the index of refraction is changed only for the second harmonic wave. By changing the microscopic mirror distance and by tilting the crystal, the two resonances can be controlled independently.

A second way to compensate for the different mirror phase shifts is to use the dispersion of air. At one atmosphere, the difference in the index of refraction of air for a wave at an optical frequency and its second harmonic is large enough to generate an effective phase difference $\Phi=(2k_1-k_2)z$ of 2π over a distance z of several millimeters (k_1 and k_2 are the wavenumbers of the fundamental and the second harmonic wave). No further element is needed if the mirror separation is such that the difference in the mirror phase shifts is compensated by allowing the two waves to propagate through the correct amount of air. Since efficient frequency doubling requires an equal index of refraction in the crystal for both waves ("phase matching"), it is best to use this second method to compensate the mirror phase shift difference. Once the macroscopic mirror separation is fixed, small fluctuations can be controlled by tilting the crystal with a piezo element. This causes only a slight deviation from perfect phase matching.

The last parameter which has to be adjusted correctly is the effective phase difference Φ in the crystal. Maximum power transfer from the fundamental to the second harmonic wave is achieved if $\Phi=\pi/2$ (i.e. when the antinodes of the nonlinear polarization wave in the crystal and the second harmonic wave coincide). Here again the dispersion of air helps. Due to the change of the relative phase between the two waves as they propagate in air, any value of Φ in the crystal may be achieved by simply moving the crystal along the cavity axis.

3. Theory

The classical equations of motion for the coupled fundamental and second harmonic cavity modes are [7]

$$\dot{\alpha}_1 = -\tfrac{1}{2}\kappa^* \alpha_1^* \alpha_2 - \gamma_1 \alpha_1 + \gamma_{inc}\alpha_{inc} , \quad (1)$$

$$\dot{\alpha}_2 = \kappa \alpha_1^2 - \gamma_2 \alpha_2 , \quad (2)$$

where α_1 and α_2 are the electric field amplitudes of the two modes, α_{inc} is the amplitude of the fundamental wave outside the cavity and κ is the nonlinear coupling parameter

$$\kappa = \frac{2i\omega_1 d_{eff}}{\pi n^2 \epsilon_0 w^2 L} \int \boldsymbol{E}_2^* \boldsymbol{E}_1 \boldsymbol{E}_1 \, dV . \quad (3)$$

$\boldsymbol{E}_1(r)$ and $\boldsymbol{E}_2(r)$ are complex basis functions that describe the spatial field distribution of the two modes in the cavity. L is the mirror separation, ω_1 is the angular frequency of the fundamental wave, d_{eff} is the effective nonlinear coefficient [1], w is the waist radius of the fundamental beam and n is the index of refraction in the crystal. The loss and input coupling parameters are

$$\gamma_1 = (c/2nL)\,[1-(1-L_f)^{1/2}] , \quad (4)$$

$$\gamma_2 = (c/2nL)\,[1-(1-L_s)^{1/2}] , \quad (5)$$

$$\gamma_{inc} = (c/2nL)\,(1-R_1)^{1/2} , \quad (6)$$

where R_i is the reflectivity of the input coupler M1 at the fundamental frequency and L_f and L_s are the power round trip losses for the fundamental wave and the second harmonic wave respectively. To find the equilibrium condition of the system we set the time derivatives equal to zero and find

$$\alpha_2 = (\kappa/\gamma_2)\,\alpha_1^2 . \quad (7)$$

For α_1 one obtains a cubic equation and choosing the phase of α_1 and α_{inc} so that they are real, the only real root is

$$\alpha_1 = a[(1+b)^{1/3} + (1-b)^{1/3}] ,$$

$$a = (\gamma_2 \gamma_{inc}\alpha_{inc}/|\kappa|^2)^{1/3} ,$$

$$b = \left(\frac{8\gamma_1^3\gamma_2}{27|\kappa|^2\gamma_{inc}^2\alpha_{inc}^2} + 1\right)^{1/2} . \quad (8)$$

All other quantities in the system may be easily derived from eqs. (7) and (8). The value of κ is calculated in an analogous fashion to ref. [1] by evaluating the integral of eq. (3) for the special geometry of the two gaussian beams as shown in fig. 1,

$$\kappa = \frac{i\pi\omega_1 d_{eff} b}{2n^2\epsilon_0 L} G(\xi, \sigma, B, \eta) , \quad (9)$$

$$G(\xi, \alpha, B, \eta) = \frac{1}{\pi} \int_{2\xi\eta}^{2\xi(1+\eta)} \sin(\sigma\tau - \Phi)$$

$$\times \exp[-(B^2/\xi)(\tau - 2\xi(1+\eta))^2]\,(1+i\tau)^{-1}\,d\tau , \quad (10)$$

with $\xi = d/b$, b the cavity confocal parameter, d the crystal length, $B = (\rho/2)(k_2 d)^{1/2}$, ρ is the double refraction angle, $\sigma = (1/2)\, b\Delta k$, $\Delta k = 2k_1 - k_2$, $\eta = -f/d$, f is the distance of the crystal from M1, and Φ is the relative phase of the two waves at the left crystal face. With eqs. (7)–(10), the transmitted power of the second harmonic wave as a function of the fundamental power inside the cavity P_c may be written as

$$P_{2t} = (1-R_0)P_2 = \frac{1-R_0}{[1-(1-L_s)^{1/2}]^2} \frac{2\omega^3 d_{eff}^2}{\pi\epsilon_0^3 c^4 n^2} d$$

$$\times g(\sigma, \xi, B, \eta)\, P_c^2 , \quad (11)$$

where

$$g(\xi, \sigma, B, \eta) = (\pi^2/\xi)\,|G(\xi, \sigma, B, \eta)|^2 , \quad (12)$$

and R_0 is the reflectivity of the output coupler M2 at the second harmonic frequency. To optimize the value of g with respect to the cavity geometry parameters ξ and η, the integral (eq. (10)) may be evaluated numerically. For $b > (f+d)$, the η-dependence of g turns out to be negligible. In fig. 2 the ξ-dependence of g is shown with $\sigma = \eta = 0$. It is an analog diagram to that shown in fig. 2 of ref. [1] in which the single resonance case is treated. For large double refraction (large B), the g-function is constant over a wide range of ξ, such that a low light intensity in the crystal can be achieved without losing conversion efficiency. For perfect phase matching ($\sigma = 0$), κ is proportional to sin Φ, showing that the experimental ability to adjust Φ to nonzero values is crucial [3]. The second harmonic power theoretically possible with a fundamental input power of 300 mW at 488 nm and for different values of the loss parameters L_f and L_s is shown in fig. 3. The mirror reflectivities $R_i = 0.93$ and $R_o = 0.95$ used in the calculation are those of our experiment, and are not well adapted to crystals with low losses. A calculated maximum power of 50 mW may be obtained with optimized mirrors and a high quality crystal ($L_s = L_f = 0.99$). Compared to the single resonance technique [1,2], the doubly-resonance technique can be expected to yield a better efficiency for values of the uv round trip losses smaller than 10% (L_s greater than 0.9).

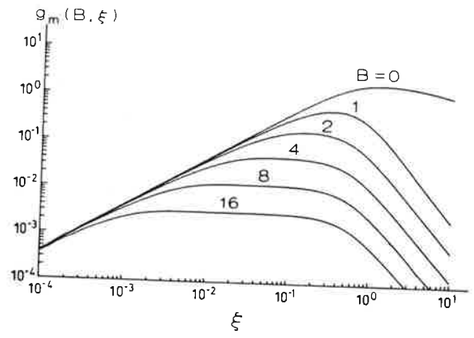


Fig. 2. Second harmonic power represented by the function $g(\xi, \sigma, B, \eta)$ for optimum phase matching ($\sigma = 0$) as a function of the focusing parameter ξ for several values of the double-refraction parameter B.

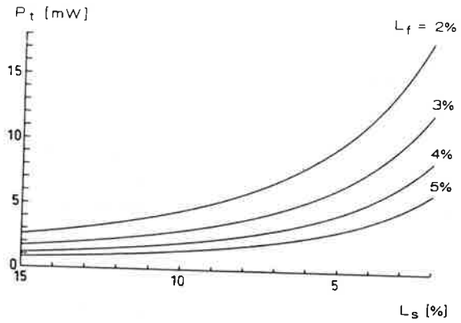


Fig. 3. Dependence of the second-harmonic power on the crystal quality. L_s and L_f are the round trip losses for the second harmonic and the fundamental wave.

4. Experiment

The experiment was carried out with a single mode argon ion laser at 488 nm and 300 mW output power. For the nonlinear crystal we used β-barium-borate because of its wide phase matching range, high nonlinear coefficient and its good mechanical and optical properties [8]. The crystal (6 mm long) was grown and dual-band antireflection coated by Inrad International, Inc., New Jersey. The surfaces were cut for normal incidence of light at a phase match angle of 55° (angle between the cavity axis and the optical axis of the crystal). Despite the good antireflection properties of the coatings (less than 0.5% reflected power at one surface for both frequencies according to an Inrad measurement) we measured a single pass power transmission of less than 93% at 244 nm and of about 98% at 488 nm. The fundamental wave is coupled in at mirror M1 (93% reflectivity at 488 nm and 99.7% at 244 nm) and passes through the crystal with vertical polarization as an ordinary beam. The second harmonic builds up as an extraordinary beam with horizontal polarization and is coupled out at mirror M2 (95% reflectivity at 244 nm and 99.6% at 488 nm). Under these conditions, a finesse of 65 and a resonant enhancement of 20 has been achieved for the fundamental beam, which corresponds to $L_f = 0.97$. With a mirror separation of 140 mm and a radius of 1 m for M2 the beam waist for the fundamental at M1 is 0.18 mm. The crystal angle and position along the cavity axis are adjustable with motor driven micrometers. Fine adjustment of the crystal angle is provided by a piezoelectric element. Resonance for the fundamental beam is achieved by controling the cavity length with a piezoelectric element on one mirror. The error signal is derived from the polarization of the reflected light [9]. Due to the birefringence of the crystal, no additional polarization sensitive element is needed in the cavity. A seperate servo loop maintains resonance for the second harmonic by controlling the phase matching angle of the crystal by means of the piezo element. The error signal for this loop is generated by applying a small dither voltage at about 100 Hz to the piezo element and monitoring the second harmonic light with a lock-in amplifier. This technique is inherently slow but the second harmonic loop needs only to compensate for drifts in the relative phase between the two beams which occur in a time scale of seconds.

For different distances of the crystal from the input coupler M1 we measured the second harmonic

output power while varying the phase matching angle. The cavity was continuously locked on resonance with the fundamental. The measurement for $f=3.7$ mm is shown in fig. 4. The labeled resonance peaks correspond to the different longitudinal TEM_{00} modes of the second harmonic beam with different phase mismatches in the crystal for each mode. From the linewidth and the mode spacing, a finesse of about 30 can be estimated, which corresponds to a round trip loss of 15% ($L_s=0.85$). The smaller satellite peaks to the left of each longitudinal mode originate from higher order transverse modes of the second harmonic beam. In fig. 5 the height of the main resonance is plotted as a function of the crystal position along the cavity axis. It shows nicely the sinusoidal variation of the coupling constant due to the change of the relative phase of the two standing wave patterns as predicted in eq. (10). The oscillation period of about 6 mm agrees reasonably well with the value of 5.2 mm which is calculated from the dispersion data of air [10].

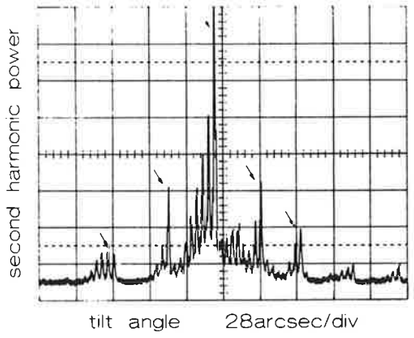


Fig. 4. Second harmonic power during a scan of the phase match angle while the cavity is locked on resonance for the fundamental wave. Arrows indicate the resonance peaks which correspond to different longitudinal TEM_{00} modes of the second harmonic wave.

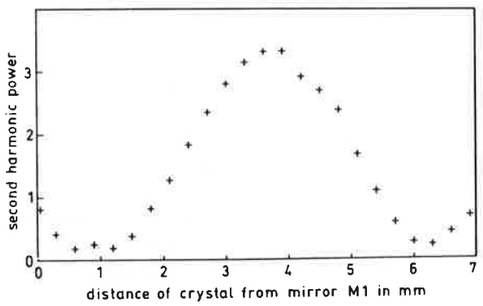


Fig. 5. Second harmonic power at optimum phase matching for different positions of the crystal along the cavity axis.

With 300 mW of fundamental input power a maximum second harmonic power of 1.3 mW was obtained with both servo loops locked. This is in reasonable agreement with the predicted value (fig. 3). In our experiment, the full advantage of the doubly resonant method has not been exploited because of the poor optical quality of the crystal at 244 nm.

5. Summary

We have described a technique for cw angle-tuned frequency-doubling in an external cavity where the fundamental and the second harmonic wave are simultaneously in resonance. Despite the presence of double refraction, the second harmonic is efficiently generated in a pure TEM_{00} mode. The birefringent properties of the crystal and the dispersion of air are used to simultaneously satisfy the resonance condition for each wave as well as the relative phase condition necessary for optimum power transfer between the modes. Due to the much lower light intensity in the crystal, this technique offers an advantage especially if a crystal with a low damage threshold has to be used. The second harmonic power was calculated using a coupled mode formalism.

Measurements with β-barium-borate were described and the results were compared to the calculations. Despite the poor optical quality of the crystal at 244 nm, 1.3 mW of second harmonic at 244 nm was achieved from a fundamental of 300 mW. With a crystal of better optical properties, more than 20 mW UV output power should be possible (for $L_s=L_f=0.98$).

References

[1] G.D. Boyd and D.A. Kleinman, J. Appl. Phys. 39 (1968) 3597.
[2] A. Ashkin, G.D. Boyd and J.M. Dziedzic, IEEE J. Quantum Electron. QE-2 (1966) 109.

[3] Ling-An Wu and H.J. Kimble, J. Opt. Soc. Am. B 5 (1985) 697.
[4] J.M. Yarborough, J. Falk and C.B. Hitz, Appl. Phys. Lett. 18 (1971) 70.
[5] Ling-An Wu, H.J. Kimble, J.L. Hall and Huifa Wu, Phys. Rev. Lett. 57 (1986) 2520.
[6] H.J. Kimble and J.L. Hall, Quantum optics IV, eds. J.D. Harvey and D.F. Walls (Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York 1986) pp. 58-69.
[7] P.D. Drummond, K.J. McNeil and D.F. Walls, Optica Acta 27 (1980) 321.
[8] C. Chen, B. Wu, A. Jiang and G. You, Sientia Sinica (Ser. B) 28 (1985) 235.
[9] T.W. Hänsch and B. Couillaud, Optics Comm. 35 (1980) 441.
[10] F. Kohlrausch, Praktische Physik, Band 1, (B.G. Teubner, Stuttgart, 1968).

A.2 Linienform und Anregungsrate des $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangs

a) Modell

Wir betrachten eine in z-Richtung unendlich ausgedehnte monochromatischen Gaußsche Stehwelle und ein Ensemble von Atomen, alle mit positiver Geschwindigkeit in z-Richtung. In x und y-Richtung sei die Geschwindig- keit der Atome wesentlich kleiner als in z-Richtung, so daß die longitudinale Geschwindigkeit v_z näherungsweise mit dem Betrag der Geschwindigkeit gleichgesetzt werden kann. Für v_z gilt dann die Maxwell-Verteilung [62]:

$$g(v_z) = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{1}{v_o^3} v_z^2 \exp\left(-\frac{v_z^2}{v_o^2}\right)$$

v_o ist definiert durch $1/2\, m v_o^2 = kT$. Die mittlere longitudinale Geschwindigkeit ist gegeben duch $\langle v_z \rangle = 1.13 * v_0$. Diese Verteilung gilt für die Dichte der Atome und darf nicht mit der Verteilung für den Atomfluß verwechselt werden. In transversaler Richtung ist die Geschwindigkeit der Atome durch die Beschaffenheit der Düse bestimmt. Die Divergenz des Strahls hängt dabei empfindlich vom Gasdruck in der Düse und von deren Länge im Verhältnis zum Innendurchmesser ab.[63] Eine genaue theoretische Beschreibung erfordert jedoch eine numerische Rechnung. In unseren Überlegungen nehmen wir deshalb für die Verteilung der Atome in transversaler Richtung ohne tiefere Rechtfertigung eine normierte Gauß-Funktion mit dem Verteilungsparameter v_t an:

$$f(v_x, v_y) = \frac{1}{\pi v_t^2} \exp\left(-\frac{v_x^2 + v_y^2}{v_t^2}\right)$$

Für die mittlere transversale Geschwindigkeit gilt dann $\langle v_t \rangle = 0.89 * v_t$. In den Ortsvariablen sind die Atome gleich verteilt.

Das Wasserstoffatom wird durch eine Dichtematrix für ein zwei-Niveau-System beschrieben, der Laserstrahl mittels der Maxwell-Theorie (halbklassisches Bild). Die Ableitung der Bewegungsgleichung für die Dichtematrix soll uns hier nicht interessieren. Sie findet sich in der Doktorarbeit von Ray Beausoleil [8]. Die dort durchgeführte Rechnung gilt für die Präparation des Wasserstoffs als Gas in einer Glaszelle. Sie wird im Folgenden unter Berücksichtigung des relativistischen Doppler-Effekts für die Situation im Strahl modifiziert.

Wir beginnen mit dem Ausdruck für das zum oberen Zustand gehörende Diagonalelement $\rho(r,t)$ der Dichtematrix eines einzelnen Atoms (Gleichung 3.7b in Ref.8). In zweiter Ordung Störungsrechnung und unter Vernachlässigung des dynamischen Stark-Effekts läßt sich die Bewegungsgleichung im Ruhesystem des Atoms schreiben als (ungestrichene Variablen):

$$\rho(\vec{r},t) = \left| \int_0^\infty \frac{V_{ab}(\vec{r}, t-\tau)}{\hbar} \exp\left(i\,\omega_{ab}\cdot(t-\tau) - \frac{\lambda}{2}\tau\right) d\tau \right|^2 \qquad \text{A.1}$$

mit

$\hbar\omega_{ab}$ Energiedifferenz zwischen den beiden Zuständen

λ Zerfallsrate des angeregten Zustands.

Das Nebendiagonalelement V_{ab} des Wechselwirkungsoperators lautet dabei im Laborsystem (gestrichene Variable):

$$V_{ab}(\vec{r}',t') = \hbar \cdot D_{ab}\, J \cdot \exp\left(-2\,\frac{x'^2+y'^2}{w_o^2}\right) \exp\left(i\,(k_1+k_2)\,z' - 2\omega t'\right) \quad A.2$$

Es enthält die Gaußsche Stehwelle mit der Strahltaille w_0, den Wellenvektoren k_1 und k_2 und der Lichtintensität $J = P/(\pi w^2_o)$. P ist die Lichtleistung. Die geometrische Phase des Gauß-Strahls ist vernachlässigt. Eine Abschätzung des damit verbundenen Fehlers findet sich in Abschnitt A3.1. Das Übergangs-Matrixelement D_{ab} setzt sich zusammen aus einer Summe über Kombinationen von Ein-Photonen Dipol-Matrixelemente und beträgt $D_{ab} = 4.63 * 10^{-4}\ m^2\,J^{-1}$ (8,64).

b) Transformation

Zunächst transformieren wir die Stehwelle in das Ruhesystem des Atoms. Für die langsamen transversalen Richtungen reicht eine Galilei-Transformation aus:

$$x' = x + v_x t' \quad \text{und} \quad t = t'$$
$$y' = y + v_y t' \quad \text{und} \quad t = t' \ .$$

Die schnelle longitudinale Richtung erfordert eine Lorentz-Transformation:

$$z' = \gamma\,(z + v_z\, t) \quad \text{und} \quad t' = \gamma\,(t + v_z/c^2\, z) \quad \text{mit} \quad \gamma = 1/\sqrt{1-(v_z/c)^2}\,.$$

V_{ab} transformiert und eingesetzt in $\rho(r,t)$ ergibt

$$\rho(\vec{r},t) = \left|D_{ab}J\int_0^\infty \exp\left[-\frac{2}{w_o^2}\{(x+v_x(t-\tau))^2 + (y+v_y(t-\tau))^2\}\right] \exp\left[-\tau\,(2i\Omega+\lambda/2)\right] d\tau \right.$$
$$\left. \times\ \exp[-it\,(\omega_{ab} - 2\omega\gamma + \lambda/2)]\ \exp\left[i\,2\omega\gamma\frac{v}{c^2}z\right]\right|^2$$

mit $\Omega := \omega * \gamma - \omega_{ab}/2$ (Frequenzverstimmung aus der Resonanz).

Dabei wurde $k_1 = k_2$ gesetzt, d.h., nur die Absorption zweier gegenläufiger Photonen betrachtet. Der dritte und vierte Exponentialterm entfällt bei der Betragsbildung und man erhält nach Rücktransformation ins Laborsystem die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Zustands für ein Atom :

$$\rho(\vec{r}') = \left|D_{ab}J\int_0^\infty \exp\left[-\frac{2}{w_o^2}\{(x'-v_x\tau)^2 + (y'-v_y\tau)^2\}\right] \exp\left[-\tau\,(2i\Omega+\lambda/2)\right] d\tau\right|^2$$

Da sich ab jetzt alles im Laborsystem abspielt, wird die Bezeichnungsweise ab hier geändert. Alle Koordinaten werden ungestrichen angegeben.

c) Anregungsdichte

Als nächster Schritt wird die lineare Dichte angeregter Atome entlang der z-Achse für eine Klasse von Atomen mit gleicher longitudinalen Geschwindigkeit v_z bestimmt. Diese "Anregungsdichte" $n(v_z)$ erhält man durch Integration von $\rho(r,t)$ über x, y, v_x und v_y, gewichtet mit der transversalen Geschwindigkeitsverteilung und multipliziert mit der Dichte der Atome N. Das Ergebnis lautet:

$$n(v_z)\,dv_z\,dz = |D_{ab}J|^2\ \frac{\pi w_o^2}{4}\ N\ g(v_z)\ I(v_z)\ dv_z\,dz \qquad A.3$$

$$I(v_z) = \int_0^\infty\int_0^\infty \frac{1}{1+\left(\frac{v_t}{w_o}\right)^2(\tau-\tau')^2}\ \exp[-(\tau+\tau')\cdot\lambda/2]\ \cos[2\Omega(\tau-\tau')]\,d\tau\,d\tau'$$

Das Integral läßt sich lösen durch Ausklammern eines der Exponential-

faktoren aus dem inneren Integral und anschließender Verwendung des Integralsatze für Laplace-Transformationen. In der Näherung $\lambda << w_o/v_t$, also für Lebensdauern länger als die Wechselwirkungszeit, lautet die Anregungsdichte dann:

$$n(v_z)\, dv_z\, dz \;=\; \frac{\pi^2}{4} \left| D_{ab} J \right|^2 \cdot N \cdot g(v_z) \cdot \frac{w_o^3}{v_t \lambda} \exp\left(-2w_o/v_t \left|\Omega\right|\right)\, dv_z\, dz \qquad \text{A.4}$$

Dieser Ausdruck ist weder orts- noch zeitabhängig, wie es für die translationsinvariante Problemstellung auch zu erwarten war. Interpretationsbedürftig ist in diesem Zusammenhang die Lebensdauer $1/\lambda$, für die man die mittlere Stoßzeit oder bei extrem niedrigem Druck die natürliche Lebensdauer einzusetzen hat. Für Atome, die die Stehwelle unter einem sehr flachen Winkel kreuzen und deshalb lange mit dem Licht wechselwirken, führt dies jedoch zu einer so hohen Anregung, daß in der Störungsrechnung für die Dichtematrix unberücksichtigte Terme höherer Ordung eine Rolle zu spielen beginnen (Sättigung). Die Wechselwirkungszeit in unserer experimentellen Situation ist jedoch durch die Flugzeit zwischen Düse und Detektor begrenzt. Um dem gerecht zu werden, benutzen wir den Parameter für die Lebensdauer und setzen $\lambda=v_z/L$. Die in der Rechnung mitgenommenen Atome von jenseits der Düse mit langer Flugzeit im Licht werden dadurch in ihrem Beitrag weggedämpft. Allerdings verläuft im Experiment der Zerfall nur während der kurzen Zeit im Quenchfeld nach einem Exponentialgesetz. Eine korrekte Beschreibung müßte deshalb in der Bewegungsgleichung für die Dichtematrix statt des exponentiellen Zerfalls einen geschwindigkeitsabhängigen Term enthalten, unter Berücksichtigung des genauen Quenchfeldverlaufs. Die Verwendung eines einfachen exponentiellen Zerfalls erlaubt jedoch eine analytische Lösung und vermeidet unübersichtliche numerische Berechnungen.

Allerdings trifft jetzt die Näherung $\lambda << w_o/v_t$ für Atome, die den ganzen Weg im Licht zurücklegen, nicht mehr zu. Die Rechnung für die umgekehrte Näherung $\lambda >> w_o/v_t$ zeigt, daß sich dadurch lediglich die Form der Resonanz verändert. Man erhält eine Lösung, die sich von Gleichung A.4 nur im Exponentialterm unterscheidet, der durch eine normierte Lorentz-Kurve ersetzt werden muß. Für den kleinen Bruchteil kritischer Atome, die genau auf der Achse fliegen, trifft zwar keine der Näherungen zu; man kann jedoch annehmen, daß der genaue Verlauf ihrer Resonanzkurve im Mittel über alle Geschwindigkeitsklassen keine Rolle spielt.

d) Zählrate ohne Berücksichtigung des Choppers:
Den gemittelten Fluß angeregter Atome durch den Detektor erhält man aus der Anregungsdichte durch Integration über v_z und nachfolgender Multiplikation mit $\langle v_z \rangle$. Dieses Integral über $n(v_z)\, dv_z$ ist offenbar eine Konvolution von durchflugsverbreiterten exponentiellen Resonanzlinien, verschoben in ihrem Maximum um einen geschwindigkeitsabhängigen Faktor γ und gewichtet mit der longitudinalen Geschwindigkeitsverteilung $g(v_z)$. Es läßt sich auflösen, wenn man γ bis zur zweiten Ordnung entwickelt, $\gamma \approx 1 + 1/2 * (v/c)^2$, und v_t als von v_z unabhängig behandelt. Der gesuchte Fluß angeregter Atome lautet:

$$R = \frac{\pi^2}{4} \left| D_{ab} J \right|^2 \cdot N \cdot L \cdot \frac{w_o^3}{v_t} \cdot K(\Omega_o)$$

$$K(\Omega_o) := \frac{1}{\left(1 + \mathrm{sig}\, \frac{\Delta r}{\Delta f}\right)^2} \left\{ \exp\left(-\frac{|\Omega_o|}{\Delta f}\right) + F \exp\left(-\frac{|\Omega_o|}{\Delta r}\right) \right\} \qquad \text{A.5}$$

mit der Abkürzung

$$F = \left(\frac{\Delta f - \Delta r}{\Delta f + \Delta r}\right)^2 \cdot \left[1 - \Omega_0 \left(\frac{1}{\Delta r} + \frac{1}{\Delta f}\right)\right] - \left[1 - \Omega_0 \left(\frac{1}{\Delta r} - \frac{1}{\Delta f}\right)\right], \quad sig = -1 \quad \text{für } \Omega_0 < 0,$$

$$F = 0, \qquad\qquad sig = 1 \quad \text{für } \Omega_0 > 0,$$

und den Parametern

$$\Delta f = \frac{v_t}{2w_o}, \qquad \Delta r = \frac{1}{2}\left(\frac{v_o}{c}\right)^2 \omega, \qquad \Omega_o = \omega - \frac{1}{2}\omega_{ab}$$

Die dimensionslose Funktion $K(\Omega_0)$ beschreibt die Linienform, die Frequenz Ω_0 ist dabei die Verstimmung aus der Resonanz für ruhende Atome, Δf ist die reziproke mittlereWechselwirkungszeit mit dem Licht und Δr die mittlere Frequenzverschiebung aufgrund des relativistischen Doppler-Effekts. Mit dieser Linenform lassen sich alle gemessenen Spektren gut beschreiben. Eine kleine Abweichung kann man in der Flanke zu hohen Geschwindigkeiten hin feststellen, wo die theoretische Kurve geringfügig schneller abfällt, besonders im Vergleich mit Spektren, die bei Raumtemperatur aufgenommen wurden. Dies liegt an der streng genommen falschen Annahme einer von v_z unabhängigen mittleren transversalen Geschwindigkeit: da die Düse nur das Verhältnis von transversaler zu longitudinaler Geschwindigkeit festlegt, wächst die mittlere transversalen Geschwindigkeit proportional mit v_z. Richtiger ist also $v_t = v_z *$ Konstante. Das Integral wird dann sehr unhandlich und muß numerisch berechnet werden. Qualitativ kann man jedoch sofort sehen, daß in der Konvolution die Durchflugsverbreiterung für schnelle Atome größer und dadurch die gesamte Linienform für rote Verstimmung breiter wird.

e) Choppereffekte:

Bei Modulation des Laserlichts durch den Chopper wird in Gleichung A.2 die Lichtintensität zeitabhängig. Die Form der Modulation wäre in Fourier-Komponenten zu zerlegen, die, einzeln berechnet, am Ende wieder zusammengefügt werden müßten. Wegen der durch die Betragsbildung auftretenden Mischterme wird der Rechenaufwand erheblich. Man kann sich jedoch durch Berechnung wenigstens einer Komponente ein Bild über die auftretenden Effekte verschaffen. Ersetzt man in der Gleichung A.2 J durch $J * \cos(\alpha/2*t)^2$ (α = Chopperfrequenz) und führt die Rechnung durch, erhält man einen Ausdruck, der mit Gleichung A.3 bis auf das Integral $I(v_z)$ übereinstimmt. Das neue Integral $I(v_z)$ lautet:

$$I(v_z,t) = C(\Omega) \cdot \frac{1}{2}\left[1 + K_1 \sin(\alpha t + \varphi_1)\right]$$

$$+ C(\Omega+\alpha)\,\frac{1}{8}\left[1 + 2K_1 \sin(\alpha t + \varphi_1) + K_2 \sin(2\alpha t + \varphi_2)\right]$$

$$+ C(\Omega-\alpha)\,\frac{1}{8}\left[1 + 2K_1 \sin(\alpha t + \varphi_1) + K_2 \sin(2\alpha t + \varphi_2)\right]$$

$$- S(\Omega+\alpha)\,\frac{1}{8}\left[1 + 2K_1 \cos(\alpha t + \varphi_1) + K_2 \cos(2\alpha t + \varphi_2)\right]$$

$$+ S(\Omega-\alpha)\,\frac{1}{8}\left[1 + 2K_1 \cos(\alpha t + \varphi_1) + K_2 \cos(2\alpha t + \varphi_2)\right]$$

mit den Abkürzungen

$$K_1 = \frac{\lambda}{\sqrt{\alpha^2 + \lambda^2}} \qquad K_2 = \frac{\lambda}{\sqrt{(2\alpha)^2 + \lambda^2}}$$

$$\varphi_1 = \arctan\left(\frac{\lambda}{\alpha}\right) \qquad \varphi_2 = \arctan\left(\frac{\lambda}{2\alpha}\right)$$

und den Fourier-Transformationen

$$S(\Omega) = \frac{1}{\lambda} \int_0^\infty \frac{1}{1+\left(\frac{v_t u}{w_o}\right)^2} \exp(-\lambda/2 \cdot u) \sin(2\Omega \cdot u)\, du$$

$$C(\Omega) = \frac{1}{\lambda} \int_0^\infty \frac{1}{1+\left(\frac{v_t u}{w_o}\right)^2} \exp(-\lambda/2 \cdot u) \cos(2\Omega \cdot u)\, du$$

(Zur Erinnerung: $\lambda = v_z/L$)

Die Modulation erzeugt demnach zwei Seitenbänder und führt zu einer oszillierenden Anregung der Atome mit kleinem anharmonischem Anteil. Einen wesentlich übersichtlicheren Ausdruck erhält man durch die Näherung $\alpha << v_t/w_o$ d.h. für den Fall, in dem die Seitenbänder in der durchflugsverbreiterten Resonanzlinie verschwinden. Die Sinus-Fourier-Transformierten heben sich gegenseitig auf und die Kosinus-Fourier-Transformierten lassen sich lösen unter der Annahme $\lambda << v_t/w_o$. Als Ergebnis erhält man Gleichung A.4 multipliziert mit einer geschwindigkeits- und zeitabhängigen Funktion:

$$Z(t) = \frac{1}{8} \{ 3 + 4 K_1 \sin(\alpha t + \varphi_1) + K_2 \sin(2\alpha t + \varphi_2) \}$$

In Abschnitt 3.5 wird dieser Ausdruck interpretiert.

A.3 Systematische Einflüsse auf die $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Resonanzlinie

Es folgt eine kurze Zusammenstellung der wichtigsten Effekte, die zu einer Verbreiterung oder einer Verschiebung der Resonanzlinie führen.

A.3.1 Geometrische Phase

Bei der Ableitung der Linienform in Abschnitt A.1 wurde die geometrische Phase einer Gaußschen monochromatischen Stehwelle vernachlässigt: Zusätzlich zur Ortsphase k*z existiert bei Gaußstrahlen eine langsame ortsabhängige Phase

$$\Phi(z) = \arctan(2z/b) \quad (65),$$

mit

$b = k * w_0$	konfokale Parameter
k	Wellenzahl
w_0	Radius der Strahltaille im Brennpunkt

Nach einer Galilei-Transformation in das Atomsystem erhält man eine zeit- und ortsabhängige Phase $\Phi(z,t) = \arctan(2(z-v_z t)/b)$, die zu einer zusätzlichen Frequenzverschiebung $\Delta\omega$ führt.

$$2\pi \Delta\nu = \Delta\omega = d\Phi/dt = -2v_z/b * \{1 + 4((z-v_z t)/b)^2\}^{-1}$$

Ersetzt man den zweiten Faktor durch seinen Maximalwert, erhält man eine obere Grenze für den Effekt:

$$\Delta\nu = v_z/(\pi * b) \qquad <\Delta\nu> = v_0/(\pi * b)$$

Für die Werte $v_0 = 2000$ m/s, $b = 0.4$ m folgt $<\Delta\nu> = 1.6$ kHz. Die Resonanzlinie wird sowohl verbreitert als auch verschoben. Für den Fall $b/2 > L$ ist dieser Effekt jedoch immer kleiner als die Durchflugsverbreiterung, selbst für Atome, die auf der vollen Länge des Atomstrahls mit dem Licht wechselwirken (minimale Durchflugsverbreiterung: $\Delta f_{min} = v_z/(2\pi * L)$). In unserem Experiment ist $b = 2.3 * L$.

A.3.2 Stark-Effekt

Ein statisches elektrisches Feld mischt die benachbarten Zustände $2S_{1/2}$ und $2P_{1/2}$. Damit ist eine Energieverschiebung des $2S_{1/2}$-Zustands von

$$\Delta\nu = 1800\, E^2 \quad \text{Hz cm}^2\, \text{V}^{-2}$$

verbunden.[66] Gleichzeitig reduziert sich die Lebensdauer τ des $2S_{1/2}$-Zustands um $\tau = (E/457)^{-2} * 1.6$ $\text{cm}^2\, \text{V}^{-2}$ ns [10]. Die Resonanzlinie des $1S_{1/2}$-$2S_{1/2}$-Übergangs wird dadurch um

$$\Delta f = 220\, E^2 \quad \text{Hz cm}^2\, \text{V}^{-2}$$

verbreitert. Für die elektrischen Störfelder außerhalb des Detektors läßt sich leicht eine obere Grenze angeben, wenn man für die Lebensdauer τ die mittlere Flugzeit einsetzt. Man erhält den Wert $E_{max} = 3$ V cm^{-1}. Die damit verbundene Verschiebung der Linie beträgt $\Delta\nu = 2$ kHz.

A.3.3 Dynamischer Stark-Effekt

Der dynamische Stark-Effekt verursacht eine Änderung der Übergangsfrequenz von $\Delta\nu = J * 1.667 * 10^{-4}$ $\text{m}^2\, \text{W}^{-1}$ Hz [8]. Bei typischerweise $J = 4 * 10^5$ W m^{-2} im Resonator erhält man $\Delta\nu = 66$ Hz.

A.3.4 Ionisation

Durch Absorption eines Photons bei 243 nm kann ein angeregtes Atom vom $2S_{1/2}$-Zustand aus ionisiert werden. Die verringerte Lebensdauer macht sich in einer Verbreiterung der Resonanzlinie bemerkbar. Aus dem Wert für den Wirkungsquerschnitt $\sigma = 9.256 * 10^{-18}$ cm^2 [66] und der Photonenflußdichte im Resonator erhält man eine Ionisationsrate von

$\gamma = J * 2.27 * 10^{-3}$ $\text{m}^2\, \text{W}^{-1}\, \text{s}^{-1}$ entsprechend einer Verbreiterung von $\Delta\nu = J * 1.803 * 10^{-4}$ $\text{m}^2\, \text{W}^{-1}$ Hz. Bei einer Intensität von $4 * 10^5$ W m^{-2} sind das 72 Hz.

A.3.5 Zeeman-Effekt

Wie in der Einleitung erwähnt, erhält man eine geringe Energieverschiebung, verursacht durch das unterschiedliche anormale magnetische Moment des Elektrons in beiden Zuständen:

$$\Delta\nu = B * 1.8 * 10^5 \quad \text{Hz T}^{-1}.$$

Eine Verschiebung um 1 kHz erfordert ein Feld von 5.5 mT = 55 G. (Zum Vergleich: Die horizontale Komponente des Erdmagnetfeldes beträgt am 45ten Breitengrad 0.2 G.)

A.3.6 Justagefehler

Bei der Zwei-Photonen-Absorption müssen die Wellenvektoren $\mathbf{k_1}$ und $\mathbf{k_2}$ der beiden gegenläufigen Wellen genau antiparallel stehen. Ist dies nicht der Fall, enthält das elektrische Feld einen kleinen transversalen laufenden Anteil mit der Wellenzahl $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k_1} - \mathbf{k_2}$. Dies führt

1. zu einem transversalen Doppler-Effekt $\Delta\nu_d = \Delta k / 2\pi * v_t$ und
2. zu einem Impulsübertrag von $\Delta k * \hbar$ bei der Absorption.
   Die damit verbundene Energieaufnahme $p^2/2m = \hbar^2 k^2/2m = \hbar\omega$ wird dem Licht zusätzlich entzogen, was sich in einer Verschiebung der Resonanz zu kürzeren Wellenlängen hin bemerkbar macht:

$$\Delta\nu_r = 1/2\pi * \hbar\Delta k^2/2m.$$

Definiert man den Dejustagewinkel $\Phi := \Delta k / k$ erhält man:

$$\Delta\nu_r = 13.4\,(\Phi/2)^2 \quad \text{MHz} \qquad \text{und} \qquad \Delta\nu_d = 4.1 * \nu_t * \Phi \quad \text{s m}^{-1}\,\text{MHz}$$

In einem stabilen Resonator mit nichtkonfokaler Geometrie treten jedoch beide Effekte nicht auf, da im eingeschwungenen Zustand keine transversal-laufenden Komponenten existieren können.

A.4 Strahlgeometrie im Ringresonator

Der für die Frequenzverdoppelung verwendete Resonator besteht aus zwei planen und zwei gekrümmten Spiegeln mit gleichem Krümmungsradius. Der im Resonator umlaufende Laserstrahl wird durch einen Gaußschen Strahl (TEM_{oo}-Mode) mit dem komplexen Parameter $q = z + i * b / 2$ beschrieben[65]. z ist dabei der Abstand zum Brennpunkt und b der konfokale Parameter $b = kw_o^2$ (w_o = Radius der Strahltaille im Brennpunkt, k = Wellenzahl). Die Änderung von q beim Durchgang des Strahls durch ein optisches Element berechnet sich nach dem ABCD-Gesetz:

$$q' = (A * q + B) / (C * q + D).$$

Die Zahlen A,B,C und D sind die Elemente einer Matrix, mit der in der geometrischen Optik üblicherweise der Verlauf eines Strahls beschrieben wird. Die Matrizen für einige gängige optische Elemente sind in Ref.65 aufgelistet. In unserem Fall werden bei einem Umlauf die "Elemente"

- -) d_1 (Strecke vom ersten zum zweiten gekrümmten Spiegel)
- -) M_2 (zweiter gekrümmter Spiegel)
- -) d_2 (Strecke vom zweiten gekrümmten Spiegel zurück zum ersten via die beiden planen Spiegel, die q nicht beeinflussen)
- -) M1 (erster gekrümmter Spiegel)

durchlaufen. In paraxiäler Näherung verhält sich ein Spiegel mit Radius r wie eine Linse mit der Brennweite $f = r/2$, so daß man die Matrix direkt der Liste in Ref.65 entnehmen kann. Nach einem Umlauf soll der Strahl in sich selbst übergehen, d.h.

$$q' = q = (A * q + B) / (C * q + D).$$

Man erhält so je eine Gleichung für den Real- und den Imaginärteil von q. q beschreibt dabei den Strahlverlauf zwischen den beiden gekrümmten Spiegeln. Aus der Gleichung für den Realteil berechnet sich die Lage des Brennpunktes zu $z_1 = d_1/2$. Die Gleichung für den Imaginärteil ergibt den konfokalen Parameter

$$(b_1 / r)^2 = g_1\,(1 / g_2 - g_1) \quad \text{mit} \quad g_i = 1 - d_i / r.$$

Den Parameter b_2 für den Strahl in d_2 erhält man unmittelbar durch Vertauschen der Indizes. Damit läßt sich sofort das Verhältnis angeben:

$$b_1 / b_2 = g_1 / g_2.$$

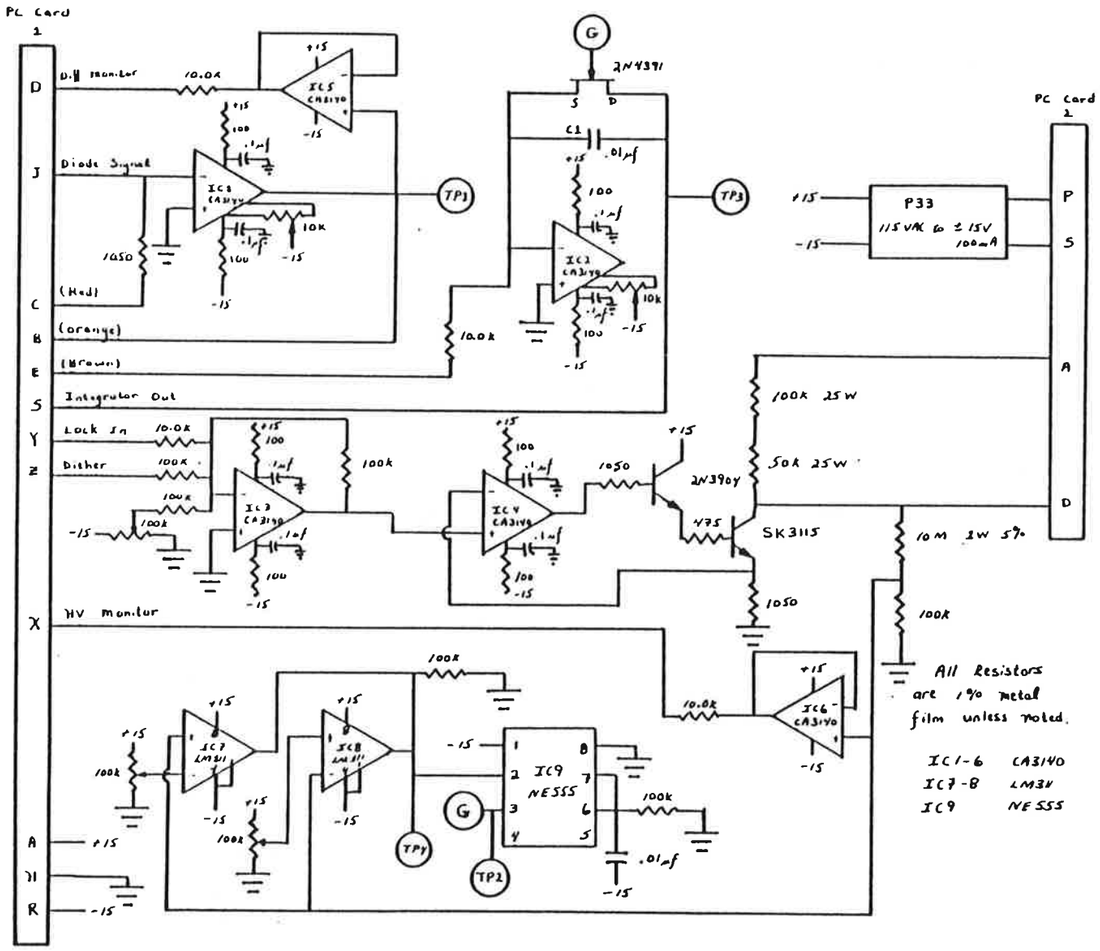
Der Stabilitätsbereich des Resonators berechnet sich nach der Relation $-2 < (A + D) < 2$ [65] mit dem Ergebnis $0 < g_1 g_2 < 1$. Dies entspricht dem bekannten Stabilitätsbereich eines linearen Resonators, bei dem allerdings in der Definition von g_i die Radien indiziert sind. (Die Abstände sind im linearen Resonator zwangsweise gleich). b_1 als Funktion von d_1 hat ein Maximum bei

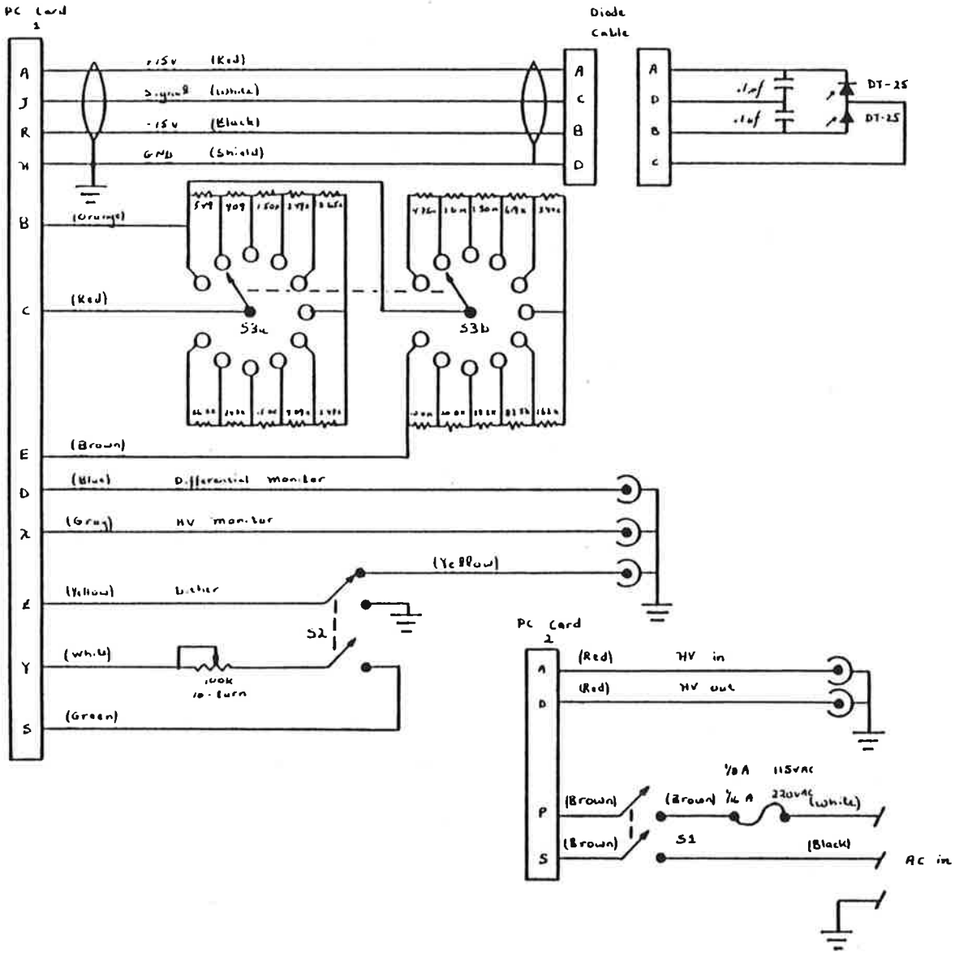
$$d_{1max} = r + b_{1max} \quad \text{mit} \quad b_{1max} = 1/2 * r * (d_2 - r)^{-1}.$$

Man befindet sich dann in der Mitte des Stabilitätsbereichs und die Strahl-

taille im Brennpunkt ist in erster Ordnung unabhängig vom Spiegelabstand d_1. Diese Konfiguration haben wir für die Frequenzverdoppelung gewählt. Der Spiegelabstand $d_2 = 1m$ ist gerade so groß gewählt, daß b_{1max} den für die Verdoppelung idealen Wert von 4 mm annimmt. b_2 beträgt dann 0.9 m und erlaubt eine bequeme Anpassung an die Gaußsche Fundamentalmode des Lasers.

A.5 Schaltplan zur Stabilisierung des Ringresonators (79)





Literaturverzeichnis

(1) A. A. Michelson und E. W. Morley, Phil. Mag. 24, 46 (1887).

(2) H. E. White, Introduction to Atomic Spectra, (McGraw-Hill, New York, 1934).

(3) R. C. Williams, Phys. Rev. 54, 558 (1938).

(4) W. V. Houston, Phys. Rev. 51, 446 (1937).

(5) Drinkwater, Richardson und Williams, Proc. Roy. Soc. A174, 164 (1940).

(6) O. Betz, Ann. d. Physik 15, 321 (1932).

(7) T. Haase, Ann. d. Physik 23, 675 (1935).

(8) R. G. Beausoleil, Dissertation, Stanford University, USA (1986), unveröffentlicht.

(9) G. W. Ericksen, J. Phys. Chem. Rev. Data 6, 831 (1977).

(10) H. A. Bethe und E. E. Salpeter, Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms, (Plenum, New York ,1977).

(11) T. Kinoshita und J. Sapirstein, Atomic Physics 9, (World Scientific, Singapur, 1984).

(12) T. Kinoshita, R. S. Van Dyck Jr., P. B. Schwinberg und H. D. Dehmelt, Atomic Physics 9, (World Scientific, Singapur, 1984).

(13) P. Petit, M. Desaintfuscien und C. Audoin, Metrologia 16, 7 (1980).

(14) J. W. Heberle, H. A. Reich und P. Kusch, Phys. Rev. 101, 612 (1956).

(15) P. J. Mohr, Ann. Phys. (N.Y.) 88, 26,52 (1974) und Phys. Rev. A 26, 2338 (1982).

(16) J. Sapirstein, Phys. Rev. Lett. 47, 1723 (1981).

(17) W. R. Johnson and G. Soff, At. Data Nucl. Data Tables 33, 405 (1985).

(18) J. Sapirstein, Proceedings of the Tenth International Conference on Atomic Physics, ed. H. Narumi (North Holland, Amsterdam, 1987).

(19) J. Sapirstein, Phys. Rev. Lett. 47, 1723 (1981).

(20) G. G. Simon. Ch. Schmitt, F. Borkowski und V. H. Walther, Nucl. Phys. A333, 381 (1980).

(21) L. H. Hand, D. J. Miller und R. Wilson, Rev. Mod. Phys. 35, 335 (1963).

(22) F. Biraben, J. C. Garreau, L. Julien und M. Allegrini, Phys. Rev. Lett. 62, 621 (1989).

(23) S. R. Lundeen und F. M. Pipkin, Phys. Rev. Lett. 46, 232 (1981).

(24) V. G. Pal´chikov, Yu. L. Sokolov und V. P. Yakovlev, Metrologia 21, 99 (1985).

(25) R. G. Beausoleil, D. H. McIntyre, C. J. Foot, E. A. Hildum, B.Couillaud und T. W. Hänsch, Phys. Rev. A 39. 4591 (1989).

(26) M. G. Boshier, P. E. G. Baird, C. J. Foot, E. A. Hinds, M. D. Plimmer, D. N. Stacey, J. B. Swan, D. A. Tate, D. M. Warrington und G. K. Woodgate, Phys. Rev. A 40, 6169 (1989).

(27) C. J. Foot, P. Hannaford, D. N. Stacey, C. D. Thompson, G. H. Woodman, P. E. G. Baird, J. B. Swan und G. K. Woodgate, J. Phys. B 23, L203 (1990).

(28) Die SI-Basiseinheiten, Definition, Entwicklung, Realisierung, (Physikalisch-Technische Bundesanstalt (Hrsg.), Braunschweig, 1989).

(29) J. L. Hall und H. P. Layer, Opt. Lett. 8, 136 (1983).

(30) D. H. McIntyre, Dissertation, Stanford University, USA (1986), unveröffentlicht.

(31) R. Kallenbach, Dissertation, LMU München (1990), unveröffentlicht.

(32) Ling-An Wu, H. J. Kimble, J. L. Hall, and Huifa Wu, Phys. Ref. Lett. 57, 2520 (1986).

(33) P. D. Drummond, K. J. McNeil, and D. F. Walls, Opt. Acta 27, 321 (1980).

(34) Y. C. Ni und C. O. Weiss, Appl. Phys. B 50, 381 (1990); dort findet sich ein Hinweis auf: G. Kramer, B. Lipphardt, C. O. Weiss eingereicht zur Veröffentlichung.

(35) T. W. Hänsch, S. A Lee, R. Wallenstein und C. Wieman, Phys. Rev. Lett. 34, 307 (1975).

(36) R. Kallenbach, B. Scheumann, C. Zimmermann, D. Meschede, and T. W. Hänsch, Appl. Phys. Lett. 54, 1622 (1989).

(37) D. Kleppner, The Hydrogen Atom, Hrsg. G. F. Bassini, M. Inguscio und T. W. Hänsch, (Springer Verlag, Berlin, 1989).

(38) Il-Tong Cheon und Sung Dahm Oh, J. Phys. Soc. of Japan 58, 1581 (1989).

(39) S. Weinberg, Phys. Rev. Lett. 62, 485 (1989).

(40) W. Wellegehausen, H. Welling und R. Beigang, Appl. Phys. 3, 387 (1974).

(41) R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley und H. Ward, Appl. Phys. B31, 97 (1983).

(42) D. N. Stacey, The Hydrogen Atom, Hrsg. G. F. Bassini, M. Inguscio, und T. W. Hänsch (Springer Verlag, 1989).

(43) K. Kato, IEEE J. Quantum Electron. QE-22, 1013 (1986).

(44) C. Chen, B. Wu, A. Jiang and G. You,
Sientia Sinica (Ser.B) 28, 235 (1985).

(45) K. Miyazaki, H. Sakai und T. Sato, Opt. Lett. 11, 797 (1986).

(46) G. D. Boyd and D.A.Kleinman, J. Appl. Phys. 39, 3597 (1968).

(47) A. Ashkin, G. B. Boyd und J. M. Dziedzic, IEEE J. Quantum Electron.
QE-2, 109 (1966).

(48) R. Wallenstein, private Mitteilung.

(49) J. R. Young, Rev. Sci. Instrum. 34, 891 (1963).

(50) J. T. M. Walraven and I. F. Silvera,
Rev. Sci. Instrum. 53, 1167 (1982).

(51) Atlas du Spectre d´absorption de la molecule de tellur, Laboratoire
Aime-Cotton CNRS II, Orsey, Frankreich.

(52) J. L. Hall, private Mitteilung.

(53) Der verwendete Levenberg-Marquardt Algorithmus ist beschrieben
bei W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky und W. T. Vetterling,
(Numerical Recipes - the Art of Scientific Computing,
University Press, Cambridge, 1986).

(54) S. R. Ryan, S. J. Czuchlewski und M. V. McCusker,
Phys. Rev. A, 1892 (1977).

(55) W. H. Wing, Appl. Opt. 18, 2346 (1979).

(56) Angabe des Herstellers: Fa. Galileo Electro-Optics Corp., Galileo Park,
Sturbridge, Mass., USA.

(57) F. Biraben, J. C. Garreau, L. Julien und M. Allegrini, akzeptiert zur
Veröffentlichung bei Rev. Scient. Instr.

(58) W. E. Lamb und R. C. Retherford, Phys. Rev. 72, 241 (1947);
W. E. Lamb und R. C. Retherford, Phys. Rev. 79, 549 (1950);
W. E. Lamb und R. C. Retherford, Phys. Rev. 81, 222 (1951).

(59) W. E. Kauppila, W. R. Ott und W. L. Fite, Phys. Rev. A1, 1099 (1970).

(60) W. Bleakney, Phys. Rev. 35, 1180 (1930).

(61) M. Misakian und J. Zorn, Phys. Rev. Lett., 174, (1971).

(62) N. F. Ramsey, Molekular Beams, (Clarendon Press, Oxford, 1985).

(63) J. A. Giordmaine und T. C. Wang, J. Appl. Phys., 31, 463 (1960).

(64) F. Bassani, J. J. Forney und A. Quatropani,
Phys. Rev. Lett. 39, 1070 (1977).

(65) H. Kogelnik und T. Li, Appl. Opt. 5, 1550 (1966).

(66) J. A. Blackman und G. W. Series, J. Phys. B6, 1090 (1973).

(67) C. J. Bordé, J. L. Hall, C. V. Kunasz und D. G. Hummer,
Phys. Rev. A14, 236 (1976).

(68) G. W. Erickson und H. Grotch, Phys. Rev. Lett. 60, 2611 (1988).

(69) M. A. Doncheski, H. Grotch und D. A. Owen,
Phys. Rev. A41, 2851 (1990).

(70) V. Kose, W. Wöger Phys. Bl. 43, 398 (1987).

(71) T. W. Hänsch and B. Couillaud, Optics Comm. 35, 441 (1980).

(72) R. L. Walsworth, Jr., I. F. Silvera, H. P. Godfried, and C. C. Agosta,
Phys. Rev. A 34, 2550 (1986).

(73) M. D. Hürlimann, W. N. Hardy, A. J. Berlinsky, and R. W. Cline,

Phys. Rev. A 34, 1605 (1986).

(74) N. Masuhara, J. M. Doyle, J. C. Sandberg, D. Kleppner, T. J. Greytak, Phys. Rev. Lett. 61, 935 (1988).

(75) S. N. Bagaev, A. K. Dmitriev, Yu. V. Nekrasov, B. N. Skvortsov, and V. P. Chebotaev, JETP. Lett. 50, 194 (1989).

(76) E.V. Baklanov und V. P. Chebotaev
Sov. J. Quant. Electron 5, 342, (1975).

(77) R. Kallenbach, C. Zimmermann, D. H. McIntyre, T. W. Hänsch, Optics Comm. 70, 56 (1989).

(78) D. H. McIntyre, W. M. Fairbanks,Jr., S. A. Lee, T. W. Hänsch und E. Riis, Phys. Rev. A 41, 4632 (1990).

(79) L. A. Bloomfield, Dissertation, Stanford Universität (1983).

(80) S. A. Lee, R. Wallenstein, and T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 35, 1262 (1975).

(81) C. Weiman and T. W. Hänsch, Phys. Rev. A22, 192 (1980).

(82) E. A. Hildum, U. Boesel, D. H. McIntyre, R. G. Beausoleil, and T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 56, 576 (1986).