Diplomarbeit:

Sättigungsspektroskopie an Kalziumdampf und Laserstabilisierung für Photoionisationsexperimente

zur Erlangung des Magistergrades durchgeführt am Institut für Experimentalphysik der Universität Innsbruck

> vorgelegt von Michael Bacher Innsbruck, Mai 2005

Inhaltsverzeichnis

1	Ein	leitung	; und Motivation	5
2 Eigenschaften von Kalzium				
	2.1	Allgen	neine physikalische und chemische Eigenschaften	8
	2.2	Energi	eniveaus und Übergänge	9
		2.2.1	Neutrales Kalzium ⁴⁰ Ca	9
		2.2.2	Einfach-ionisiertes Kalzium ${}^{40}Ca^+$	11
		2.2.3	Isotopieverschiebung	12
		2.2.4	Hyperfeinstruktur von ⁴³ Ca	14
3	Gru	en zur Photoionisation	17	
	3.1	Kalziu	mionen in Paul-Fallen	17
		3.1.1	Die Lineare Paul-Falle	17
		3.1.2	Kontrolle des Quantenzustandes des Ions	19
	3.2	Prinzi	p der Photoionisation	22
		3.2.1	Photoionisation von ${}^{43}Ca$	23
	3.3	Diode	nlasersystem zur Photoionisation	26
		3.3.1	Blaue Laserdioden	26
		3.3.2	Toptica Diodenlasersystem DL100	27
		3.3.3	Optische Rückkopplung zur Wellenlängenselektion	29
4	Spe	ktrosk	opie an Kalzium	32
	4.1	Damp	fzelle für Kalziumspektroskopie	32
		4.1.1	Anforderungen und Schwierigkeiten	32
		4.1.2	Konstruktion der Kalziumdampfzelle	34
		4.1.3	Temperaturstabilität und Heizvorgang	35
		4.1.4	Absorptionsmessungen auf Resonanz	37
		4.1.5	Betrieb, Handhabung und Wartung	37
	4.2	Doppl	er-begrenzte Spektroskopie	40
		4.2.1	Absorptionsspektroskopie	40

		4.2.2	Optogalvanische Spektroskopie mittels einer Hohlka-	
	4.3	Dopple 4.3.1 4.3.2 4.3.3 4.3.4 4.3.4	thode	$ \begin{array}{r} 44\\ 45\\ 45\\ 48\\ 50\\ 52\\ 58\\ 58\\ \end{array} $
-	т	1.0.0		00
5			lisierung	61 C1
	5.1	Fehlers	Signale	01 C1
		5.1.1 5.1.0	Gebrauchlichste Typen von Fehlersignalen	61
		5.1.2	Erzeugung eines Feniersignals mittels Modulation des	69
	5.0	Flaletz	Diodenstroms	03 66
	0.2	Elektro	Crundle ren Elektronischen Derlen	00 66
		0.2.1 5.0.0	Beoligierung einer DI Beglerg	00 69
		0.2.2 5.0.2	Frequenzetabilität	00 71
		0.2.0		11
6	Zus	ammer	afassung und Ausblick	75
\mathbf{A}	Kor	strukt	ionspläne	77
	A.1	Konstr	ruktion der Dampfzelle	77
	A.2	Elektro	onischer Regler	81
в	Ver	wendet	e Komponenten und Geräte	82
Lit	terat	urverz	eichnis	85

Kapitel 1

Einleitung und Motivation

Seit 1859 Bunsen und Kirchhoff die *Spektralanalyse* entwickelten, spielt diese Technik eine entscheidende Rolle in den Naturwissenschaften. Mit ihr konnte Kirchhoff zum Beispiel die Fraunhofer'schen Linien im Sonnenspektrum als Absorptionslinien verschiedener Elemente erklären. Inzwischen kommt die Spektralanalyse oder *Spektroskopie* in einem breiten Anwendungsbereich zum Einsatz, wobei ein breiter Spektralbereich dafür ausgenutzt wird. Die Astronomie zum Beispiel verwendet optische und Radio-Spektrometer in Teleskopen genauso wie Satelliten-gestützte Röntgen-Spektrometer um Sterne zu charakterisieren bzw. Parameter wie deren Temperatur oder Zusammensetzung zu bestimmen.

In den 60er-Jahren führte die Entwicklung des Lasers durch Schawlow und Townes zu neuen experimentellen Möglichkeiten und eröffnete mit der *Laserspektroskopie* ein neues Maß an Präzision und Empfindlichkeit. Verschiedene Techniken zur Reduktion der Linienbreite der Laser und spektroskopische Modulationstechniken ermöglichten weitere Verbesserungen des Auflösungsvermögens und der Nachweisempfindlichkeit.

Eng mit den Fortschritten der Spektroskopie verknüpft, entwickelte sich im 20. Jahrhundert die *Quantenmechanik*. Besonders die damals unverstandenen Eigenschaften des Lichts, wie zum Beispiel die Ultraviolett-Katastrophe in der Schwarzkörperstrahlung oder der Photoeffekt bei Bestrahlung einer metallischen Oberfläche, gaben den Anstoß bzw. führten auf die Theorie der Quanten. Seit der Einführung des Lasers entwickelte sich ein neuer Zweig dieses Gebietes, nämlich die *Quantenoptik*, welche die Wechselwirkung zwischen Licht und Materie untersucht. Mit der Entwicklung von Teilchenfallen wurde es möglich, einzelne Atome zu fangen und von Störungen der Umgebung zu isolieren. Somit konnten viele quantenmechanische Vorhersagen oder physikalische Fundamentalkonstanten mittels spektroskopischer Präzisionsmessungen überprüft werden. Die Präzision dieser Fallenexperimente konnte soweit gesteigert werden, dass es möglich wurde, grundlegende Konzepte der *Quanteninformationsverarbeitung* experimentell demonstrieren zu können. Ziel dieses Forschungsgebiets ist die Realisierung eines Computers, der die Vorteile der Quantenlogik gegenüber der klassischen Logik nützt. Träger der Information sind Zwei-Zustands-Systeme (sogenannte *Quantenbits*), welche nicht nur klassische Bits beinhalten, sondern auch alle Überlagerungen der beiden Zustände $|0\rangle$ und $|1\rangle$. Für bestimmte Problemstellungen, wie zum Beispiel der Faktorisierung grosser Zahlen, wurden effiziente Algorithmen (z.B. *Shor's*-Algorithmus) gefunden, die dem Quantencomputer riesige Vorteile gegenüber klassischen Computern vorhersagen.

An den Grundlagen eines solchen Computers wird in den Ionenfallenexperimenten unseres Labors geforscht. Dazu werden einige wenige Kalzium-Ionen in einer elektrischen Falle (*Paul-Falle*) gespeichert und gekühlt. Das Potential ist so geformt, dass sich eine lineare Kette von Ionen bildet, wobei die einzelne Ionen mit einem Laser gezielt manipuliert werden können. Man benutzt dann den Grundzustand und einen metastabilen Zustand jedes Ions um die Quantenbits zu speichern. Für die Durchführung quantenlogischer Gatteroperationen werden die Ionen über eine gemeinsame Bewegungsmode im Fallenpotential miteinander gekoppelt.

In einem neuen Experiment soll das Quantenbit in zwei Grundzuständen (zwei Hyperfeinstruktur-Niveaus) der Ionen gespeichert werden, welche nicht (bzw. nur sehr wenig) durch Magnetfeldfluktuationen gestört werden können. Dies ist nur mit einem Kalziumisotop möglich, denn das einzige stabile Isotop mit Hyperfeinaufspaltung ist ${}^{43}Ca$, welches im natürlichen Kalzium nur zu sehr geringem Anteil enthalten ist. Dies erschwert das Laden von Ionen in die Falle, welches durch *Photoionisation* von Kalziumatomen aus einem Atomstrahl erreicht wird. Im neuen Experiment muss also isotopenselektiv geladen werden können, was höhere Anforderungen an die Photoionisationslaser stellt.

In der vorliegenden Arbeit wurde der Kalzium-Übergang vom Grundzustand in einen angeregten Zustand spektroskopisch untersucht und einer der Photoionisationslaser auf diese Kalzium-Resonanz stabilisiert.

Dazu wird im Kapitel 2 zuerst allgemein auf das Element Kalzium eingegangen und danach werden die Spektren von Kalzium in neutraler und ionisierter Form diskutiert. In Kapitel 3 werden die Grundlagen von Ionenfallen angeschnitten, das Prinzip der Photoionisation erläutert und das verwendete Lasersystem vorgestellt.

Anschließend wird in Kapitel 4 die Konstruktion und Realisierung einer Dampfzelle für Kalzium-Dampf beschrieben. Mithilfe dieser wurde der Kalziumübergang spektroskopisch untersucht. Dabei wurden auch verschiedene Doppler-freie Techniken verwendet, welche alle auf der Sättigung des Übergangs basieren (*Sättigungsspektroskopie*). In Kombination mit Modulationstechniken wurden Signale erzeugt, welche sich als Fehlersignal zur Stabilisierung des Photoionisations-Lasers eignen. Dies wird in Kapitel 5 gemeinsam mit der Realisierung der Regelung der Laserfrequenz auf die atomare Resonanzfrequenz beschrieben.

Zum Abschluß werden in Kapitel 6 die Ergebnisse kurz zusammengefaßt.

Kapitel 2

Eigenschaften von Kalzium

2.1 Allgemeine physikalische und chemische Eigenschaften

Kalzium ist ein metallisches Element, das in der Natur nur in Verbindung mit anderen Elementen auftritt. Am häufigsten tritt Kalzium als Kalkstein $CaCO_3$ oder Gips $CaSO_4 \cdot 2H_2O$ in der Erdkruste auf. Kalzium tritt ebenfalls als Bestandteil organischer Substanzen wie Laubblätter, Knochen, Zähnen und Muscheln auf. Andere natürlich vorkommende Verbindungen sind Kalziumnitrat $Ca(NO_3)_2$, -Chlorid $CaCl_2$, -Fluorid CaF_2 und -Carbid CaC_2 .

Das pure metallische Kalzium wird durch Elektrolyse aus Kalziumfluorid gewonnen. Es glänzt silber-metallisch und an der Luft bildet sich eine weiße Nitrid- bzw. Oxidschicht. Der Schmelzpunkt liegt bei ca. 842°C, der Siedepunkt bei 1484°C [1].

Kalzium hat eine Kernladungszahl von 20, ist in der 2. Hauptgruppe der Elemente zu finden und gehört daher zu den Erd-Alkalis. Die Konfiguration im Grundzustand wird durch $1s^22s^22p^63s^23p^64s^2$ (bzw. $[Ar]4s^2$) beschrieben.

Das Isotop mit der Massenzahl 40 ist mit knapp 96.9% das häufigste Kalzium-Isotop. Fünf der sechs stabilen Isotope haben gerade Nukleonenzahlen P und N und besitzen daher keinen Kernspin. ⁴³Ca ist das einzige stabile Isotop mit Kernspin. Alle stabilen und radioaktiven Isotope sind in Tabelle 2.1 aufgelistet.

Isotop	Masse (u)	Vorkommen (%)	Zerfall	Kernspin (\hbar)
$^{35}\mathrm{Ca}$	35.005		$\beta^+ (t_{1/2} = 0.05 \mathrm{s})$	
^{36}Ca	35.993		$\beta^{+} (0.1s)$	
$^{37}\mathrm{Ca}$	36.986		$\beta^{+} (0.173 s)$	3/2
$^{38}\mathrm{Ca}$	37.976		$\beta^{+} (0.44s)$	0
39 Ca	38.971		$\beta^{+} (0.861 s)$	3/2
^{40}Ca	39.963	96.941(18)		0
$^{41}\mathrm{Ca}$	40.962		EC $(1.02 \ 10^5 \text{y})$	7/2
$^{42}\mathrm{Ca}$	41.959	0.647(9)		0
$^{43}\mathrm{Ca}$	42.959	0.135(6)		7/2
^{44}Ca	43.956	2.086(12)		0
$^{45}\mathrm{Ca}$	44.956		β^{-} (162.7d)	7/2
$^{46}\mathrm{Ca}$	45.954	0.004(3)		0
$^{47}\mathrm{Ca}$	46.955		β^{-} (4.536d)	7/2
$^{48}\mathrm{Ca}$	47.953	0.187(4)		0
$^{49}\mathrm{Ca}$	48.956		β^{-} (8.72m)	3/2
50 Ca	49.958		β^{-} (14.s)	0
$^{51}\mathrm{Ca}$	50.962		β^- (10.s)	3/2
^{52}Ca	51.965		β^{-} (4.6s)	
$^{53}\mathrm{Ca}$	52.970		$\beta^-~(0.09 { m s})$	

Tabelle 2.1: Stabile und radioaktive Isotope von Kalzium [1]

2.2 Energieniveaus und Übergänge

2.2.1 Neutrales Kalzium ⁴⁰Ca

Wie bereits erwähnt, gehört Kalzium zur Gruppe der Erd-Alkalis und verhält sich demnach Helium-ähnlich. Das Termschema (Grotrian-Diagramm) besteht aus zwei Teilen, dem Singulett- und dem Triplett-Teil. Dies resultiert aus den zwei Einstellmöglichkeiten der beiden Elektronen-Spins in der äußerten bzw. den nicht abschlossenen Schalen. Der Grundzustand des neutralen Kalziums liegt im Singulett (Gesamtspin S = 0) und ist $[Ar](4s)^2$, wobei die beiden Spins aufgrund des Pauli-Prinzips antiparallel zueinander sein müssen und sich somit der Gesamtspin S = 0 ergibt. Die Ionisationsenergie aus dem Grundzustand liegt bei 6.11eV.

Stellen sich die beiden Elektronenspins parallel zueinander ein, so ergibt sich das Triplett-Termschema in der rechten Spalte von Abbildung 2.1. Die Niveaus mit Bahndrehimpulsquantenzahl L > 0 spalten in drei Linien auf,



Abbildung 2.1: Niederliegende Niveaus und Übergänge in neutralen ⁴⁰Ca [2]

welche den Einstellmöglichkeiten des Gesamtspins J = L + S entsprechen. Der tiefstliegende Zustand im Triplett ist $[Ar](4s)^1(4p)^1$ mit einer Energie von 4.22eV unter dem Energienullpunkt am Kontinuum. Dieser Zustand zerfällt über einen Interkombinationsübergang in den (Singulett-) Grundzustand mit einer mittleren Lebensdauer von 0.48ms (entspricht Linienbreite $\Gamma = 0.33$ kHz) bei einer Wellenlänge¹ von 657nm.

Einige für atom- und quantenoptische Anwendungen (z.B. ultrakalte Kalzium-Atome in magneto-optischen Fallen [3]) wichtige Übergänge und Lebensdauern sind in Abbildung 2.1 angegeben.

In der vorliegenden Arbeit wird der Übergang vom Grundzustand 4^1S_0 in den angeregten Zustand 4^1P_1 genauer untersucht. Wie in Kapitel 3.2 genauer diskutiert wird, ist dieser Übergang besonders interessant für die Photoionisation von Kalzium. Die dazugehörige Wellenlänge liegt im blauen Spektralbereich bei 422.673nm, was einer Photonen-Energie von 2.39eV entspricht. Er besitzt eine Linienbreite von 34.7MHz und eine Lebensdauer des angeregten Zustands von 4.6ns [2].



Abbildung 2.2: Energie-Niveaus im ionisierten Kalzium [4]

2.2.2 Einfach-ionisiertes Kalzium ⁴⁰Ca⁺

Liegt das Kalzium in ionisiertem Zustand vor, so verhält es sich spektroskopisch wie ein neutrales Alkali-Atom. Es kann daher beschrieben werden als wasserstoffähnliches System, dessen Kernladung q = 20e durch die inneren Schalen abgeschirmt wird und dessen Potential durch ein effektives Potential angenähert werden kann. Das verbleibende Valenzelektron hält sich in diesem effektiven Potential [5] auf, das sich in Kernnähe dem Potential $V_{20e} = \frac{20e^2}{4\pi\varepsilon_0} \frac{1}{r}$ annähert und in größerem Abstand dem Coloumbpotential $V_C = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0} \frac{1}{r}$ gleicht.

In Abbildung 2.2 sind alle wichtigen Niveaus in einfach ionisiertem Kalzium dargestellt, welche in aktuellen Experimenten zur Quanteninformationsverarbeitung in unserer Arbeitsgruppe [6,7] verwendet werden.

Der Grundzustand ist $4^2S_{1/2}$ und liegt 11.9eV unter dem Energienullpunkt am Kontinuum. Die nächsthöheren Zustände sind die metastabilen D-Zustände $3^2D_{3/2}$ und $3^2D_{5/2}$, welche nur über einen Quadrupolübergang in den Grundzustand zerfallen können und dadurch Lebensdauern von ungefähr einer Sekunde besitzen. In Abschnitt 3.1 wird näher auf die Bedeutung der Zustände aus Abbildung 2.2 für quantenoptische Experimente eingegangen.

¹Alle angegebenen Wellenlängen entsprechen den Wellenlängen an Luft.

2.2.3 Isotopieverschiebung

Wie schon erwähnt, gibt es mehrere stabile Kalzium-Isotope, deren Spektren sich auf den ersten Blick zwar gleichen, bei genauerer Auflösung jedoch Unterschiede zeigen. Die Änderung der Kernmasse hat dabei mehrere Effekte auf die Elektronenverteilung in der Hülle. Zum einen wird durch zusätzliche Neutronen im Kern die Ladungsverteilung der Protonen im Kern verändert, was zu einem leicht veränderten elektrischen Potential führt. Eine veränderte Masse des Kerns verändert auch die Mitbewegung des Kerns bei der Bewegung der Elektronen um den Kern. Außerdem haben verschiedene Proton-Neutron Konfigurationen einen unterschiedlichen (Gesamt-)Kernspin zur Folge, was sich in Form einer zusätzlichen Hyperfeinstrukturaufspaltung der Energieniveaus niederschlagen kann.

Die Isotopieverschiebung, welche die Verschiebung der Resonanzfrequenz verschiedener neutraler Kalzium-Isotope angibt, wurde in der Diplomarbeit von Daniel Rotter [8] berechnet und mittels laserinduzierter Fluoreszenz-Spektroskopie an einem Kalzium-Atom-Strahl gemessen. Diese Frequenzverschiebung setzt sich im Wesentlichen aus drei Teilen zusammen [2]:

$$\delta\nu = \delta\nu_{NMS} + \delta\nu_{SMS} + \delta\nu_{VS} \tag{2.1}$$

Die Verschiebung aufgrund der unterschiedlichen Masse ("Normal Mass Shift") des Kerns ist im Kalzium, wie bei allen leichteren Atomen, dominant (z.B.: zwischen Wasserstoff H und Deuterium ²H ergibt sich $\delta \nu_{NMS} \approx$ 200GHz), und berechnet sich aus

$$\delta\nu_{NMS} = \nu_0 \ m_e \ \frac{M_2 - M_1}{M_1 M_2} \tag{2.2}$$

wobei ν_0 der Zentralfrequenz des Übergangs, M_i den Kernmassen der Isotope und m_e der Elektronenmasse, entspricht. Der zweite Term aus Gleichung (2.1) ("Specific Mass Shift") beschreibt die veränderte Wechselwirkung zwischen Elektronen- und Kernimpuls und kann für diese Resonanz in Kalzium laut [9] als Korrektur

$$\frac{\delta\nu_{NMS}}{\delta\nu_{SMS}} = -0.069\tag{2.3}$$

angenähert werden. Weiters kann der Volumeneffekt $\delta \nu_{VS}$ ("Volume Shift") vernachlässigt werden, denn die Veränderung des Coulombfelds durch die veränderte Ladungsverteilung der Protonen ist nur bei Kernen mit grosser Kernladungszahl bedeutend.

In Tabelle 2.2 sind die theoretischen Verschiebungen und die von verschiedenen Gruppen gemessenen Werte angegeben [8, 10, 11]. In Abbildung 2.3 ist das natürliche Vorkommen der Isotope gegen die gemessenen Verschiebungen (aus [11]) aufgetragen.

Isotop	Theorie	Messung [8]	Messung [10]	Messung $[11]^2$
⁴² Ca	428(28)	406(20)	391.1(8)	393.5
⁴³ Ca	628(30)	600(40)	611.0(10)	629.8 (F=7/2)
				556.5 (F=9/2)
				679.9 (F=5/2)
⁴⁴ Ca	818(41)	760(50)	770.8(8)	773.8
⁴⁸ Ca	1500(75)	1600(100)	1510.7(8)	1513

Tabelle 2.2: Verschiedene berechnete und gemessene Isotopie-Verschiebungen der stabilen Kalzium-Isotope bezüglich Kalzium-40 (in MHz)



Abbildung 2.3: Frequenzverschiebung der verschiedenen Isotope bezüglich Kalzium-40 (aus [11])



Abbildung 2.4: Hyperfeinaufspaltung der Linie in neutralem ⁴³Ca

2.2.4 Hyperfeinstruktur von ⁴³Ca

Kalzium-40 besitzt, weil es ein Element mit geraden Nukleonenzahlen P und N ist, keinen Kernspin. Das einzige stabile Kalzium-Isotop mit Kernspin ist ⁴³Ca und hat den Kernspin I = 7/2. Aufgrund der Kopplung der Elektronenspins mit dem Kernspin ergeben sich zusätzliche Aufspaltungen im Spektrum (Hyperfeinaufspaltung). Für den Übergang bei 423nm hat dies die Konsequenz, dass die Linie im ⁴³Ca in drei Komponenten aufspaltet. Da der Grundzustand $4^{1}S_{0}$ keinen Bahndrehimpuls hat (L = 0) und der Elektronenspin im Singulett S = 0 ist, gibt es keine Aufspaltung des Grundzustands. Der angeregte Zustand $4^{1}P_{1}$ hat die Quantenzahlen S = 0 und L = 1 was einem Gesamtspin der Hülle von J = 1 entspricht. Koppelt er an den Kernspin I = 7/2 so ergibt dies drei verschiedene Einstellmöglichkeiten bzw. Gesamtspins F = 5/2, 7/2 und 9/2. Basierend auf den Messungen aus [10] wurde in [8] die Aufspaltung bzw. die Verschiebung zu

 $\Delta E_{5/2} = 63.2 \text{ MHz}$ $\Delta E_{7/2} = 21.9 \text{ MHz}$ $\Delta E_{9/2} = -54.9 \text{ MHz}$

berechnet, was zu einem Termschema von Abbildung 2.4 führt.

In Abbildung 2.5 sind alle wichtigen Energieniveaus und Übergänge im ionisierten ⁴³Ca eingezeichnet, die für zukünftige Experimente in unserer Arbeitsgruppe verwendet werden. Man erkennt die Aufspaltung der Niveaus aus



Abbildung 2.5: Hyperfeinstruktur in ionisiertem ⁴³Ca mit den (in zukünftigen Experimenten) beteiligten Energieniveaus und Übergängen (Energieabstände in MHz)

Abbildung 2.2 in viele Unterzustände, die durch die unterschiedliche Kopplung der Gesamt-Spins J der Elektronen-Hülle (Bahndrehimpuls L und Elektronenspin S) mit dem Kernspin I = 7/2 zustande kommen. Zum Beispiel spaltet der Grundzustand $4^2S_{1/2}$ in zwei Zustände auf, da der Elektronenspin S = 1/2 zwei Einstellmöglichkeiten (kein Bahndrehimpuls für S-Zustände) relativ zum Feld des Kernspins hat. Für die beiden Niveaus ergeben sich die Gesamtspins F = 7/2 + 1/2 = 4 bzw. 7/2 - 1/2 = 3. Die Größe der Aufspaltung läßt sich nach

$$\Delta E_{HFS} = \frac{g_I \mu_K B_J [F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)]}{\sqrt{J(J+1)}}$$
(2.4)

berechnen [5]. g_I bezeichnet dabei den Kern-Landé-Faktor, μ_K das Kern-

magneton und B_J das, durch die Elektronenhülle erzeugte, Magnetfeld am Kern. Im Allgemeinen können der g-Faktor und B_J nicht analytisch berechnet werden und müssen entweder angenähert oder durch Messungen bestimmt werden. Für den Grundzustand ergibt sich die Hyperfeinstrukturaufspaltung zu $\Delta \nu_{HFS} = 3.19$ GHz [12].

Anmerkung: Die Richtung der Verschiebung der einzelnen Hyperfeinniveaus in den Abbildungen 2.4 und 2.5 ergibt sich aus dem negativen magnetischen Kernmoment von 43 Ca.

Kapitel 3

Grundlagen zur Photoionisation in Ionenfallen

3.1 Kalziumionen in Paul-Fallen

Eine Möglichkeit, Quanteninformation in Form von Quanten-Bits zu speichern, zu manipulieren und quantenlogische Operationen auf einem oder mehreren Qubits durchführen zu können, bietet die Ionenfallen-Technik. Ionen können so über lange Zeiträume gespeichert und fast komplett gegenüber Störungen von außen isoliert werden. Dies wird erreicht durch Fangen von Ionen in einer linearen Paul-Falle im Ultra-Hoch-Vakuum (UHV), was sicherstellt, dass Stöße mit Hintergrundgasen vernachlässigt werden können. Im folgenden soll ein Überblick über die Ionenfallentechnologie in unserem Labor gegeben werden ohne dabei auf Details einzugehen, welche zum Beispiel in den Dissertationen zu Experimenten mit der linearen ⁴⁰Ca-Falle gefunden werden können [13, 14].

3.1.1 Die Lineare Paul-Falle

Lineare Ionenfallen basieren grundsätzlich auf Wolfgang Paul's Idee eines Massenfilters, welches aus einem zweidimensionalen Quadrupolpotential der Form

$$\Phi_s(r) = U \, \frac{x^2 - y^2}{2r_0^2} \tag{3.1}$$

besteht. Für einen radialen Einschluss geladener Teilchen muss dieses Potential mit einer geeigneten Frequenz moduliert (bzw. rotiert) werden.

$$\Phi(r,t) = \Phi_s(r)\cos(\Omega t) \tag{3.2}$$



Abbildung 3.1: Lineare Ionenfalle mit CCD-Bild der Fluoreszenz von drei Ionen (aus [15])

Zusätzlich zu diesem radialen Einschluss muss, mittels zweier Endkappen, an die eine Gleichspannung gelegt wird, ein axialer Einschluss erzeugt werden. In Abbildung 3.1 ist die aktuelle lineare Paul-Falle abgebildet, wie sie momentan in unseren Experimenten verwendet wird.

Durch Anlegen der Spannung $U_1 = U \cos \Omega t$ an ein Paar gegenüberliegender Klingen und das Erden des zweiten Elektrodenpaares, kann der radiale Einschluss nach Gleichung (3.2) erzeugt werden. An die Endkappen wird die Gleichspannung für den axialen Einschluss angelegt. Aufgrund der nicht-idealen Geometrie der Fallenelektroden, welche notwendig ist um maximalen optischen Zugang zu haben, kann das Potential nur im Fallenzentrum als ideales Quadrupolfeld angenähert werden. Die Bewegungsgleichungen $F = -e \nabla \Phi = M\ddot{r}$ für ein einzelnes Ion im Zentrum der Falle ergeben sich zu Mathieu-Gleichungen der Form

$$\frac{d^2x}{dr^2} + (b - 2q \,\cos(2\tau)) \,x = 0 \tag{3.3}$$

$$\frac{d^2y}{dr^2} + (b + 2q \,\cos(2\tau)) \, y = 0 \tag{3.4}$$

3.1. KALZIUMIONEN IN PAUL-FALLEN

$$\frac{d^2z}{dr^2} + 2b\ z = 0\tag{3.5}$$

mit den Parametern $\tau = \frac{1}{2}\Omega t$, $q = \frac{2eU}{Mr_0^2\Omega^2}$, $b = \frac{e\alpha U_{cap}}{mL^2\Omega}$. Ω bezeichnet die Radiofrequenz mit der Amplitude U und U_{cap} die Spannung an den Endkappen. Die Masse des Ions ist M und die Parameter α bzw. L spielen als geometrische Faktoren der Falle eine Rolle.

Aus dem statischen Feld in axialer Richtung, welches im Fallenzentrum als harmonisches Potential beschrieben werden kann, folgt die harmonische Bewegung in z-Richtung

$$\omega_z = \sqrt{\frac{b}{2}}\Omega = \sqrt{\frac{e\alpha U_{cap}}{2mL^2}} \tag{3.6}$$

Aus den Bewegungsgleichungen folgt, dass die radiale Bewegung aus zwei Komponenten besteht [16]. Die **Säkularbewegung** um das Fallenzentrum und die, mit der Radiofrequenz Ω getriebene **Mikrobewegung** um die Bahn der Säkularbewegung. Für kleine Parameter $b, q \ll 1$ kann die Säkularbewegung als harmonisch angenähert werden, was dazu führt, dass das Potential als harmonisches Quasi-Potential beschrieben werden kann und sich die Radialbewegung zu

$$\omega_r = \omega_x = \omega_y = \frac{\Omega}{2} \sqrt{\frac{1}{2}q^2 - b} \tag{3.7}$$

ergibt.

Für den Betrieb der Falle ergeben sich aus obigen Überlegungen folgende typische Fallenparameter:

- Antriebsfrequenz $\Omega \approx 23$ MHz
- Radiofrequenzleistung $P \approx 3W$
- Endkappenspannung $U_{cap} \approx 1000 \text{V}$
- Elektrodenabstände: $2r_0 = 1$ mm (Klingen), L = 6mm (Endkappen)

Der Vorgang des Ladens der Falle mit Ionen wird in einem separaten Kapitel 3.2 beschrieben.

3.1.2 Kontrolle des Quantenzustandes des Ions

Für die Durchführung kohärenter Operationen auf Qubits ist es notwendig, dass langlebige Quantenzustände als Qubits verwendet werden. Im Falle von Kalzium eignen sich die metastabilen Zustände ${}^{2}D_{5/2}$ und ${}^{2}D_{3/2}$, welche nur über einen Quadrupolübergang in den Grundzustand zerfallen können, was zu den Lebensdauern von ca. 1s [17,18] führt. Im neuen 43 Ca-Experiment werden die zwei Hyperfeinniveaus des Grundzustandes (siehe Abbildung 2.5) als Qubit-Zustände verwendet, was zu noch längeren Lebensdauern der Qubits führt. Ein entscheidender Punkt, der für Kalzium spricht, sind die Wellenlänge der beteiligten Übergänge, welche alle mit kommerziell erhältlichen Lasern erreichbar sind.

Die größten Anforderungen werden an den Laser bei 729nm (bzw. 732nm) gestellt, welcher die Qubits präpariert und manipuliert. Seine Linienbreite ist entscheidend für die Kohärenzzeit und liegt bei dem, in unserem Experiment verwendeten, Titan-Saphir-Laser im Bereich von 100Hz, was durch Frequenzstabilisierung auf einen optischen Resonator mittels Pound-Drever-Hall-Technik [19] erreicht wird. Dies führt zu einer Kohärenzzeit von ungefähr zwei Millisekunden, in denen kohärente Operationen, Gatter, usw. durchgeführt werden können.

Die sogenannte "electron shelving"-Technik [20], bei welcher die Resonanz-Fluoreszenz am Übergang $S_{1/2} - P_{1/2}$ gemessen wird, wird benutzt um das Qubit auszulesen. Dazu wird ein resonanter Detektionslaser (frequenzverdoppelter Titan-Saphir-Laser) bei 397nm eingestrahlt, der Ionen vom Grundzustand in den *P*-Zustand anregt. Dieses Niveau zerfällt innerhalb weniger Nanosekunden und die dabei entstehende Fluoreszenz wird gemessen. Ist das Ion in einem metastabilen *D*-Zustand so sendet es keine Fluoreszenz aus, da der *P*-Zustand nicht bevölkert wird. Es muss aber gleichzeitig verhindert werden, dass das *P*-Niveau nicht in den metastabilen $D_{3/2}$ -Zustand zerfällt, da es dann auch keine Fluoreszenz mehr gäbe. Dies wird durch den Rückpumplaser bei 866nm erreicht, welcher in unserem Labor, ein stabilisierter Diodenlaser ist. Die Nachweisempfindlichkeit des "electron shelving" liegt bei über 99%.

Mittels eines rotverstimmten Lasers bei 397nm, der von mehreren Seiten eingestrahlt wird, werden die Ionen Doppler-gekühlt [21].

Um auch die Vibrationsmoden des Fallenpotentials benützen zu können, werden die Ionen anschließend mittels des Lasers bei 729nm via Seitenbandkühlung in den Grundzustand des harmonischen Fallenpotentials gebracht. Die Effizienz der Seitenbandkühlung muss durch zusätzliches Einstrahlen eines Diodenlasers bei 854nm erhöht werden. Der 729er Laser wird dafür um die Fallenfrequenz rotverstimmt, und die Ionen werden mittels eines π -Pulses vom Zustand $|S, n\rangle$ in den elektronisch angeregten Zustand $|D, n - 1\rangle$, mit der um eins kleineren Bewegungsmode, gebracht. Von dort wird, mittels des 854er Lasers, die Population in den $P_{3/2}$ -Zustand gepumpt, von wo er in den Grundzustand $|S, n - 1\rangle$ zerfällt. Dies wird solange gemacht bis man auch den Grundzustand der Bewegung $|S,0\rangle$ erreicht hat [22].

Unterschiede im ⁴³Ca-Experiment Der größte Unterschied und Vorteil des Isotops 43 ist die Möglichkeit, das Quantenbit in zwei Grundzuständen zu speichern, den Hyperfeinniveaus F = 3 und F = 4 des Grundzustandes $4^2S_{1/2}$, wodurch die Lebensdauer bzw. die Kohärenzzeit des Qubits bedeutend verlängert werden kann. Der Frequenzabstand der beiden Niveaus liegt im Radiofrequenzbereich bei 3.19GHz. Im zukünftigen Experiment wird mittels eines stark blauverstimmten Raman-Lasers über ein "Hilfsniveau" nahe $4^2P_{1/2}$ das Quantenbit präpariert und manipuliert [12]. Insbesondere werden die Unterzustände mit der magnetischen Quantenzahl m = 0 benutzt, da diese nicht (bzw. nur schwach (quadratischer Zeeman-Effekt)) von äußeren Magnetfeldern abhängen, und somit nicht empfindlich gegenüber Magnetfeldfluktuationen sind.

3.2 Prinzip der Photoionisation

Das Laden der Falle wird durch Ionisation von Atomen aus einem Atomstrahl erzielt. Dieser wird durch einen Kalzium-Ofen erzeugt, der im wesentlichen aus einem Stahlröhrchen, einem Stahldraht und einem Tantalfähnchen besteht. Im Röhrchen ist Kalzium-Granulat, welches bei Erhitzung Kalziumdampf bildet. Dieser wird mittels der Geometrie der Röhrchens und einer Blende zu einem Atomstrahl fokussiert und auf das Fallenzentrum gerichtet. Das Aufheizen erfolgt durch Anlegen einer Spannung zwischen Röhrchen und Draht, welche über das Tantalfähnchen verbunden sind. Der Strom (in der Größenordnung von einigen Ampere) heizt das gefüllte Stahlröhrchen auf 300-500°C und produziert den Atomstrahl. Im Fallenzentrum wird dieser mit den Photoionisationslasern gekreuzt und es werden Ionen erzeugt.

Früher wurde die Ionisation mittels Elektronenstößen gemacht, was aber einige Nachteil mit sich bringt, weshalb die Methode durch die Photoionisation abgelöst wurde. Folgende Probleme traten bei Elektronenstoßionisation auf:

- Der Elektronenstrahl kann, genauso wie der Atomstrahl, nicht ideal kollimiert werden. Das hat zur Folge, dass sich Elektronen auf Teilen der Falle (Keramikhalterung) niederschlagen und das Fallenpotential verändern. Dies muss durch Kompensationsfelder korrigiert werden, welche jedes Mal nach dem Laden angepaßt werden mußten, da die zusätzlichen Streufelder sich ändern können. Die Verwendung von Photoionisation verhindert diese Anlagerungen von Ladungen, da kein Elektronenstrahl benötigt wird.
- Genauso wie Elektronen können sich auch Ca-Atome anlagern, was auch bei Verwendung der Photoionisation nicht komplett verhindert werden kann. Da die Laderate bei Photoionisation ungefähr vier bis fünf Größenordnungen höher ist als bei Elektronenstoßionisation, kann der Atomstrahl jedoch um diesen Faktor reduziert werden.
- Ein Elektronenstrahl hat immer eine breite Geschwindigkeits- bzw. Energieverteilung. Im Gegensatz dazu hat ein Laser eine sehr schmalbandige Anregung und kann so gezielt verschiedene Isotope von Kalzium anregen und ionisieren.

Ein Vergleich bzw. eine quantitative Analyse dieser Ladeeffizienzen und Laderaten sind in der Arbeit von Daniel Rotter [8] zu finden.

Das Prinzip der Photoionisation Eine direkte Photoionisation vom Grundzustand ins Kontinuum würde eine Wellenlänge von weniger als 202nm

benötigen. Solche UV-Wellenlängen sind nur mit aufwendigen Lasers zu erreichen und eine direkte Ionisation hat zudem den Nachteil, dass sie nicht isotopenselektiv ist, da ins Kontinuum angeregt wird. Eine andere Möglichkeit ist die Verwendung eines Laser bei 272nm, wobei die Ionisation in mehreren Schritten gemacht wird [23]:

- Anregung $4s^1S_0 5p^1P_1$ (272nm) (siehe Abbildung 2.1)
- Zerfall $5p^1P_1 3d^1D_2$ (672nm)
- Ionisation $3d^1D_2$ -Kontinuum (272nm).

Auch in unserem Experiment wird die Photoionisation in mehreren Stufen gemacht, wobei allerdings keine Farbstofflaser im ultravioletten Spektralbereich verwendet werden [24].

- Der erste Schritt ist die Anregung vom Grundzustand 4s¹S₀ in das Niveau 5p¹P₁ (siehe Abbildung 2.1). Dieser Übergang hat eine Linienbreite von 34.7MHz, was mit einer Lebensdauer von 4.6ns korrespondiert. Da die Isotopieverschiebungen nach Abschnitt 2.2.3 größer als diese Linienbreite ist, kann durch Anpassung der Laserfrequenz auf einen Übergang eines anderen Kalziumisotops, dieses bevorzugt geladen werden kann, was im folgenden Abschnitt genauer betrachtet wird.
- Danach erfolgt die Anregung mit einem Laser bei ungefähr 389nm. Dieser Schritt bringt das Elektron vom 5^1P_1 -Zustand ins Kontinuum und vollendet somit die Ionisation.

3.2.1 Photoionisation von ⁴³Ca

Mittels eines schmalbandigen Lasers können verschiedene Isotope von Kalzium geladen werden. Die Frequenz des Lasers wird dabei um die bekannte Isotopieverschiebung des Isotops von der ⁴⁰Ca-Resonanz verstimmt. Im Fall von ⁴³Ca sind dies ca. 615MHz. Im einfachsten Modell wird jedem Isotop eine Lorentzkurve zugeordnet, dessen Amplitude der Häufigkeit des Isotops entspricht. Die einzelnen Resonanzen werden dann gemäß ihrer Verschiebung zueinander überlagert¹. In Abbildung 3.2 (links) ist die so berechnete Absorptionskurve, unter Annahme dass die natürliche Linienbreite aufgelöst werden kann, dargestellt. Die Hyperfeinstruktur des ⁴³Ca-Übergangs wurde in Abbildung 3.2 vernachlässigt².

¹Isotopieverschiebungen aus [10] und natürliche Isotopenverteilung aus [1]

²Dies könnte experimentell durch optisches Pumpen mit σ^+ - bzw. σ^- -Strahlen in einen speziellen Hyperfeinzustand erreicht werden, wodurch nur einer der drei Übergänge getrieben würde.



Abbildung 3.2: Überlagerung der Lorentzkurven der verschiedenen Isotope; links mit $\Gamma = \Gamma_{nat}$ und rechts $\Gamma = 80 \text{MHz}$



Abbildung 3.3: Überlagerung der Lorentzkurven mit angereichertem Kalzium; links mit $\Gamma = \Gamma_{nat}$ und rechts $\Gamma = 80 \text{MHz}$

Man erkennt, dass selbst wenn die ⁴³Ca-Resonanz exakt getroffen wird, immer noch ein nicht unwesentlicher Anteil an ⁴⁰Ca angeregt, bzw. ionisiert wird. Das Verhältnis von ⁴³Ca zu ⁴⁰Ca ist im Idealfall also 1.7:1.

Im Experiment wird ein Atomstrahl verwendet, der senkrecht zum Photoionisationslaser gerichtet ist. Die Divergenz dieses Strahl bringt eine Verbreiterung der Linie aufgrund der Geschwindigkeitskomponente in Richtung des Lasers, was eine Dopplerverbreiterung zur Folge hat³. In diesem Fall verschlechtert sich die Ladeeffizienz von ⁴³Ca, wie in Abbildung 3.2 (rechts) gezeigt ist. Das Verhältnis ändert sich bei einer realistischen Linienbreite⁴ von 80MHz zu 1 : 1.9 und es wird somit wesentlich mehr ⁴⁰Ca als ⁴³Ca ionisiert. Genauere numerische Simulationen zur Isotopenselektivität [25] unterscheiden sich nur geringfügig von den Werten dieses einfachen Modells.

Die Lade-Effizienz von ⁴³Ca wird in unserem Experiment durch Verwendung von mit ⁴³Ca angereichertem Kalzium verbessert. Das Isotopenverhältnis entspricht nicht mehr dem natürlichen, sondern die Zusammensetzung ergibt sich zu 81.1% ⁴³Ca, 12.8% ⁴⁰Ca und 5.4% ⁴⁴Ca. Abbildung 3.3 zeigt die Verhältnisse im angereicherten Kalzium, woraus sich ergibt, dass selbst bei einer Linienbreite von $\Gamma = 80$ MHz ⁴³Ca noch 255 mal wahrscheinlicher geladen wird als das zweithäufigste Isotop ⁴⁴Ca.

In diesem Experiment sind zwei Kalziumöfen zur Erzeugung von Atomstrahlen auf das Fallenzentrum gerichtet, von denen einer mit angereichertem, der andere mit "normalem" metallischen Kalzium gefüllt ist. Dies stellt sicher, dass sowohl ⁴⁰Ca als auch ⁴³Ca effizient und deterministisch geladen werden kann.

³Bei nicht idealer Justage (Winkel zwischen Atomstrahl und Laser $\neq 90^{\circ}$) kann auch eine Verschiebung der Resonanzfrequenzen aufgrund des Dopplereffekts zustande kommen (Ionisation von bewegten Atome).

⁴Durch die inhomogene Verbreiterung aufgrund des Dopplereffekts ergäben sich Voigt-Profile. Der Einfachheit halber wurde aber mit Lorentzkurven gerechnet.

3.3 Diodenlasersystem zur Photoionisation

Im folgenden Abschnitt soll das bestehende Lasersystem vorgestellt werden, und die wichtigsten Einstellungsmöglichkeiten erklären, die für die Experimente in den folgenden Kapiteln gebraucht werden.

3.3.1 Blaue Laserdioden

Der Wellenlängenbereich im Blauen bzw. im nahen Ultraviolett war bis vor kurzer Zeit nur mit aufwendigen Lasersystemen (Farbstofflaser (z.B. Stilbene), Halbleiterlaser z.B.: $Zn_{1-x}Cd_xS$, SiC) oder frequenzverdoppelten Lasern (z.B.: Titan:Saphir-Festkörperlaser, Diodenlaser) erreichbar. Erst in den letzten 15 Jahren wurde intensive Forschung und Entwicklung im Bereich blauer Laserdioden unternommen. Dies geschah nicht zuletzt aufgrund der steigenden Nachfrage nach größeren optischen Speichermedien. Eine Vervierfachung der Informationsdichte auf einer CD (Compact Disc) bzw. einer DVD (Digital Versatile Disc) könnte allein durch Benutzung von blauem Licht anstelle der üblichen roten Laserdioden gewonnen werden. Laut Rayleigh-Kriterium

$$\sin \theta_R = \frac{\lambda}{d}$$

können kürzere Wellenlängen λ stärker fokussiert werden, da Beugung erst bei viel kleineren Skalen *d* eine limitierende Rolle spielt. In Standard DVD-ROM-Laufwerken werden "rote" Diodenlaser mit $\lambda = 650$ nm bzw. 635nm verwendet, welche Datenpits mit einem Spurabstand von 0.74 μ m auf dem Datenträger lesen können [26]. Bei den neuen "Blu-ray"-Laufwerken werden "blau-violette" Laserdioden bei $\lambda = 405$ nm verwendet [27,28]. Dies führt zusammen mit anderen technologischen Verbesserungen (z.B. Linsen mit größerer numerischer Apertur, etc.) zu einer Speicherkapazität von 27GB pro Datenträger und Layer, wobei der Spurabstand auf 0.32 μ m reduziert werden konnte.

Die herkömmlichen Laserdioden basieren zumeist auf GaAlAs (Gallium-Aluminium-Arsenid), was sich aber aufgrund des zu kleinen Energieabstands der Bänder nicht zur Emission von blauem Licht eignet. Erst 1995 wurden von Nichia⁵ die ersten blauen Laserdioden auf Basis von GaN (Gallium-Nitrid) entwickelt. Entscheidene Vorteile von GaN gegenüber anderen Halbleitern (z.B. SiC, ZnSe) sind der direkte Übergang in der Bandstruktur, die Möglichkeit der Kristallzucht auf Saphir-Substrat (mit Übergangsschichten zur Anpassung der verschiedenen Gitterkonstanten zwischen GaN und Sa-

⁵Nichia Chemical Industries Ltd., JAPAN

phir) und spezielle Methoden der Kristallzucht (TF-MOCVD⁶) bzw. Dotierung. Inzwischen sind schon Laserdioden bei vielen Wellenlängen im blauen bzw. nahen ultravioletten Bereich kommerziell erhältlich, welche auch den industriellen Maßstäben bezüglich Haltbarkeit und Leistung gerecht werden.

Zwei dieser GaN-Laserdioden wurden für diese Arbeit verwendet. Die eine mit einer Ausgangsleistung (freilaufend) von bis zu ca. 30mW und einer Wellenlänge von 422.3nm@25°C, die andere bei ungefähr 375nm mit bis zu 10mW. Beide sind in ein Diodenlasersystem von Toptica Photonics⁷ eingebaut, auf welches im nächsten Abschnitt eingegangen werden soll.

3.3.2 Toptica Diodenlasersystem DL100

Toptica bietet eine modulares 19"-Diodenlasersystem mit der Bezeichnung DL100 an, welches in unserem Fall aus zwei Lasercontrollern (Current Control DCC110), zwei Temperaturcontrollern (DTC110) und einem zusätzlichen Hochspannungsverstärker (SC110) für die Kontrolle des Rückkoppelgitters besteht. Das gesamte System verfügt über ein gemeinsames Display an dem alle gewünschten Einstellungen angezeigt werden. Eine Platine, die die einzelnen Module verbindet, sendet Informationen an die zentrale Einheit, sorgt für die Spannungsversorgung und ermöglicht die Kommunikation untereinander (z.B. "Feed Forward"⁸ (siehe 3.3.2 SC110)). Im Folgenden werden einige Eigenschaften bzw. Möglichkeiten der einzelnen Komponenten erläutert, welche für die Benutzung und Stabilisierung auf ein spektroskopisches Fehlersignal wichtig sind.

Diode Current Control 110: Die Lasercontroller liefern den stabilisierten Strom für die Laserdioden. Der Strom kann dabei über ein Potentiometer ("current/power") eingestellt werden. Die verwendete Diode bei 423nm wird typischerweise mit ca. 46mA⁹ betrieben. Über einen BNC-Eingang ("mod. inp.") ist es möglich, den Strom mit bis zu 15kHz zu modulieren. Die Empfindlichkeit des Eingangs ist 1V für eine Modulation von 10mA. In unserer Anwendung, der Spektroskopie (siehe Kapitel 4.3.4) bzw. der Erzeugung des Fehlersignals (siehe Kapitel 5.1.2)), wird mit 4 – 12mV also 0.04 - 0.12mAund 15kHz moduliert.

⁶Two-Flow Metalorganic Chemical Vapor Deposition System for GaN-Growth ⁷Toptica Photonics AG, DEUTSCHLAND

 $^{^8 \}mathrm{Synchrone}$ Variation des Diodenstroms bei Verdrehen des Gitters, was Modensprünge unterdrückt.

⁹Maximalstrom ist auf 50mA eingestellt

Diode Temperature Control 110: Für spektroskopische Anwendungen reicht ein stabiler Diodenstrom nicht aus, um die Wellenlänge konstant zu halten. Aus diesem Grund wird über ein Peltier-Element die Temperatur der Laserdioden bzw. der Halterung konstant gehalten und kontrolliert. Typischerweise werden diese Dioden bei 20°C bis 25°C betrieben, was wiederum über ein Potentiometer ("temperature") eingestellt werden kann. Da die Wellenlängen der Laserdioden stark temperaturabhängig sind, ist die Veränderung der Temperatur eine Möglichkeit der groben Wellenlängeneinstellung. Dies ist auch die einzige Anwendung dieses Moduls, denn wenn die Temperatur (in Kombination mit dem Strom) einmal eingestellt ist, sollte sich diese Einstellung nicht mehr ändern. Einzig zum Unterbinden von Modensprüngen innerhalb des interessanten Bereichs um die Absorption von Kalzium wird eine Veränderung manchmal notwendig.

Scan Control 110: Das Modul SC110 ist im wesentlichen ein Hochspannungsverstärker (0 - 150V) mit integriertem Frequenzgenerator. Die Hochspannung wird an den Gitterpiezo im Laserkopf gelegt und kontrolliert den Winkel des Gitters zur Laserdiode und somit die rückgekoppelte Wellenlänge (siehe Abschnitt 3.3.3). Intern ist der Verstärker so gebaut, dass mehrere Niederspannungssignale (Offset, Scan, Extern) addiert werden und anschliessend gemeinsam 30-fach verstärkt werden. Die Spannung kann am Offset-Potentiometer (,,offset adjust") manuell eingestellt werden. Über ein zusätzliches Modul, dem DCB100 (Computer Analog Interface), kann zu dieser Hochspannung über einen Rechner eine externe Spannung addiert werden. Zur Offset-Spannung wird auch die Dreieckspannung des Frequenzgenerators addiert, dessen Frequenz über den Drehschalter ("range freq." 0.3Hz-10kHz) und die Schraube ("freq.") und dessen Amplitude über das Potentiometer ("amplitude") gesteuert wird. Die Feed-Forward-Funktion, die den Diodenstrom synchron zur angelegten Spannung variiert, kann über die Schraube (,,feed forward") optimiert werden.

Das Zusammenspiel dieser Komponenten und die robuste Halterung der Laserdiode erleichtern die Handhabung im Vergleich zu anderen Lasersystemen. Denn wenn Temperatur und Diodenstrom optimal eingestellt sind, läuft der Laser nach einer kurzen "Einschalt-" bzw. "Aufwärmphase" meist direkt wieder auf der richtigen Wellenlänge bzw. richtigen Mode. Dies ist in anderen Laserkonstruktionen oft ein Problem, da zum Teil nach jeder Inbetriebnahme die Rückkoppelung am Gitter optimiert und der Laser über Strom- und Temperatursteuerung auf Resonanz gebracht werden muss.

Ein Bild des DC100-Racks ist im Anhang B zu finden (Abbildung B.1).

3.3.3 Optische Rückkopplung zur Wellenlängenselektion



Abbildung 3.4: Gitterrückkopplung nach Littrow

Aufgrund der Anforderungen für 2-Stufen-Photoionisation genügt es nicht den Laser bei 423nm freilaufend zu betreiben. Der verwendete Diodenlaser ist darum in **Littrow**-Konfiguration (siehe Abbildung 3.4) aufgebaut, was die typische Linienbreite von Diodenlasern von bis zu 100MHz stark verringert und ein modensprungfreies Verstimmen der Laserfrequenz ermöglicht. Dabei wird ein Teil des emittierten Lichts in die Laserdiode zurückreflektiert (Extended Cavity Design [29], [30]), was die Dynamik des Lasers deutlich beeinflußt. Im Littrow-Aufbau wird die erste Beugungsordnung eines Gitters in sich zurückreflektiert (ca. 15-40% der Leistung), was die Kontrolle der rückgekoppelten Wellenlänge nach

$$\lambda = 2d \, \sin\beta \tag{3.8}$$

über den Gitterwinkel ermöglicht. Der Winkel β bezeichnet dabei dem Ausfallswinkel der ersten Beugungsordnung (entspricht bei Littrow dem Einfallswinkel) bezüglich der Gitternormalen und $d = 0.333 \cdot 10^{-6}$ m ist die Gitterkonstante¹⁰. Die Nettoverstärkung in der Diode wird dadurch vergrößert, was zu einer Bevorzugung dieser Wellenlänge führt und den Laser auf diese Wellenlänge "zwingt".

¹⁰Gitterfurchen laut Hersteller: $\frac{1}{d} = 3000$ Linien/mm



Abbildung 3.5: Reflektierte Intensität bei verschiedener Anzahl von beleuchteten Gitterfurchen N in Abhängigkeit der Phasendifferenz ϕ

Hinzu kommt, dass viele Gitterfurchen beleuchtet werden, und das Linienprofil sich aus der Überlagerung, der von den einzelnen Furchen reflektierten Wellen, ergibt. Es ergibt sich nach [31] eine sehr schmalbandige Rückreflexion zu (siehe Abbildung 3.5):

$$I_{ref} \propto \frac{\sin^2(N\phi/2)}{\sin^2(\phi/2)} \tag{3.9}$$

Nentspricht dabei der Anzahl der beleuchteten Gitterlinien und ϕ dem Phasenunterschied der einzelnen Teilwellen. Im Idealfall für sehr kleine Gitterkonstanten und vielen beleuchteten Furchen (typischerweise $N = 10^4 - 10^5$) ist man begrenzt durch die Beugung $\Delta \beta = \lambda/Nd$ an einer Apertur der Größe des Gitters Nd.

Das schmale Dispersionsprofil des Gitters ermöglicht somit die Selektion der Wellenlänge durch Verdrehen des Gitters (siehe Abbildung 3.6), verhindert Modensprünge durch den größeren freien Spektralbereich $\nu_{FSR} = c/(2L_{extended})$ und reduziert die Emissions-Linienbreite typischerweise um den Faktor 100-1000.

Bei 422.673nm ergibt sich aus Gleichung (3.8) ein Gitterwinkel von $\beta = 22.59^{\circ}$. Durch die Rückkopplung wird der Schwellenstrom der Diode von



Abbildung 3.6: Modensprungfreie Frequenz-Verstimmung durch Variation der Spannung des Gitterpiezos. Die vier Meßpunkte (blaue Punkte) entsprechen den Spannungswerten, deren Abstand jeweils genau 1.5GHz ist (Kalibriert durch die Moden eines externen Resonators.)

 $I_{fr,th} = 50 \text{mA}^{11}$ auf $I_{fb,th} = 41 \text{mA}$ gesenkt und die Leistung bei 422, 7nm bei maximalem Strom $I_{fb,max} = 50 \text{mA}$ und 25°C wird laut Hersteller auf 18mW beziffert. Die Wellenlänge läßt sich über knapp 10GHz modensprungfrei verstimmen, wenn auch die Feedforward-Funktion benutzt wird. Eine Verstimmung von 10GHz wird durch Veränderung des Gitterwinkels um $\Delta\beta = 1.15''$ erreicht, was einer Spannungsänderung am Piezo von $\Delta U = 15.7$ V entspricht.

Der größte Nachteil des Littrow-Aufbaus ist, dass der Abstrahlwinkel sich ändert, wenn das Gitter verdreht wird. Die Richtung des Ausgangsstrahls ist also abhängig von der Wellenlänge, was aber in dieser Anwendung kein Problem darstellt, da immer mit $\lambda = 422.673$ nm gearbeitet wird, bzw. bei Frequenzscans (Spektroskopie) die Amplitude nur so gering ist, dass diese Richtungsänderung keine beeinträchtigende Auswirkungen hat¹².

¹¹Indizes: fr...free running (freilaufend), th...threshold (Schwelle), fb...feedback (Rück-kopplung)

 $^{^{12}}$ Die Strahlabweichung auf einer Länge von 10m ergibt sich bei einem typischen Scan über 10GHz zu $\Delta x < 0.1 {\rm mm}.$

Kapitel 4

Spektroskopie an Kalzium

4.1 Dampfzelle für Kalziumspektroskopie

Als Grundvoraussetzung für die Stabilisierung eines Lasers auf eine atomare Referenz ist es zuallererst erforderlich, ein spektroskopisches Signal zu beobachten, das die atomare Übergangsfrequenz (Referenz) möglichst genau detektiert. Im Folgenden werden die experimentelle Realisierung einer Absorptionszelle dokumentiert und verschiedene Arten der Spektroskopie am Kalzium-Übergang 4s ${}^{1}S_{0} - 4p {}^{1}P_{1}$ beschrieben. Insbesondere wird dabei auf Doppler-freie Methoden eingegangen, die sich auch zur Erzeugung eines Fehlersignals zur Stabilisierung des Lasers eignen.

4.1.1 Anforderungen und Schwierigkeiten

Abschätzung der benötigten Temperatur Der Absorptionskoeffizient auf Resonanz läßt sich klassisch aus der Streuung an einem Oszillator [32] zu

$$\sigma_0 = \sigma(\omega_0) = \frac{3\lambda_0^2}{2\pi} = 8.53 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2$$
(4.1)

abschätzen ($\lambda_0 = 423nm$). Dies gilt nur für ruhende Atome, weshalb man den Querschnitt für heiße Gase (Dopplerverbreiterung, siehe Abschnitt 4.2) mittels eines Korrekturfaktors annähern muss. Dieser bestimmt sich aus dem Verhältnis von natürlicher zu Doppler-verbreiterter Linienbreite $\Delta \nu_{nat}$ bzw. $\Delta \nu_{dop}$ und es ergibt sich

$$\sigma = \sigma_0 \cdot \frac{\Delta \nu_{nat}}{\Delta \nu_{dop}} = 1.24 \cdot 10^{-15} \text{ m}^2 \tag{4.2}$$

Anmerkung: Die Dopplerbreite hängt wiederum von der Temperatur ab welche mit Hilfe dieser Rechnung ja bestimmt werden soll. Darum wurde eine



Abbildung 4.1: Dampfdruckkurve von Kalzium

Temperatur (300°C) abgeschätzt, wie sie sich in vergleichbaren Experimenten¹ ergab und daraus die Größenordnung der Dopplerbreite zu $\Delta \nu_{dop} \approx 2.4$ GHz ermittelt.

Um verläßliche Messungen machen zu können, muss die transmittierte Leistung I_t durch Absorption in der Zelle deutlich meßbar abgeschwächt werden. Für diese Rechnung wurde das Verhältnis von transmittierter zu einfallender Leistung auf $\frac{I_t}{I_0} = \frac{1}{3}$ angesetzt. Nach dem linearen Absorptionsgesetz (Lambert-Beer's Gesetz) gilt

$$I_t = I_0 \ e^{-\sigma nz} \tag{4.3}$$

Daraus ergibt sich die benötigte Teilchendichte, um die gewünschte Absorption zu erreichen, zu ungefähr

$$n \approx 10^{16} \mathrm{\ m^{-3}}$$

(Absorptionsweg z = 10cm). Unter der Annahme, daß das ideale Gasgesetz anwendbar ist, gilt

$$p = \frac{Nk_BT}{V} = nk_BT \tag{4.4}$$

¹Sättigungsspektroskopie zur Laserstabilisierung im Lithium-Experiment der Arbeitsgruppe von Prof. R. Grimm, Universität Innsbruck

Mit der Dampfdruckkurve (aus [1])

$$\log(p) = 15.133 - 9517 \cdot T^{-1} - 1.403 \cdot \log T \tag{4.5}$$

von Kalzium (siehe Abbildung 4.1, [1,33]) kann nun aus der Teilchendichte n der benötigte Dampfdruck bzw. die Temperatur berechnet werden. Bei einem Absorptionsweg von z = 10cm ergeben sich folgende Werte:

$$p \approx 10^{-8}$$
 Pa

bei einer Temperatur von

$$T \approx 340 \ ^{\circ}\mathrm{C}$$

Schwierigkeiten ergeben sich unter anderem aus dem chemischen Verhalten von Kalzium: Kalzium oxidiert an Luft zu CaO und CaN, außerdem verhält es sich als Getter für andere Bestandteile der Luft und es schlägt sich auf Oberflächen nieder. Dies ist besonders störend wenn dabei optische Fenster bedampft werden, wobei diese mit der Zeit zu metallischen Spiegeln werden. Dies muss bei der Spektroskopie-Zelle natürlich verhindert werden. Eine interessante Variante, dies zu umgehen, wurde von Huang et al. [34] an der National University Chiao Tung in Taiwan entwickelt. Sie nutzen so bedampfte Flächen als metallische Spiegel zur optischen Strahlführung.

Es ergeben sich also folgende Anforderungen:

- Das Kalzium muss auf mindestens 350-450°C geheizt werden können um einen ausreichenden Dampfdruck $(10^{-9} 10^{-6}Pa)$ zu erzielen.
- Bei den erwarteten optischen Dichten sollten mindestens 10-20 Zentimeter Absorptionsweg zu Verfügung stehen.
- Die Fenster müssen vor Bedampfen der Spiegel geschützt werden
- Um Verunreinigungen, Stoß- bzw. Druckverbreiterung und die Oxidation des Kalziums zu verhindern, muss die Zelle evakuiert werden, darum muss ein Ventil vorhanden sein.

4.1.2 Konstruktion der Kalziumdampfzelle

Das Grundprinzip der Dampfzelle ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Ein Stahlrohr $(r_{innen} = 8 \text{mm})$ ist mit einem Heizleiter² umwickelt, an dessen Enden

²Thermocoax SEI20/200, siehe auch Anhang A.1



Abbildung 4.2: Dampfzelle mit Heizleiter

Vakuumflanschen geschweißt sind. Darauf sind Standard-CF16-Fenster montiert. Die Länge des Rohres von ca. 50cm stellt sicher, daß Kalziumdampf, der nur im zentralen (geheizten) Bereich entsteht, sich auf der Innenseite des kalten Bereichs³ des Rohres niederschlägt und nicht auf den Fenstern. Der Innenraum wird mit einer Vakuumpumpe auf einen Druck von ca. 10^{-3} mbar⁴ evakuiert, um Stöße der Atome zu minimieren (Druckverbreiterung). Als Temperatursensoren sind Thermoelemente⁵ auf dem Heizleiter befestigt, wobei die gemessene Temperatur nur mit der Innenraumtemperatur übereinstimmt, wenn sich der Heizleiter und der zentrale Bereich des Stahlrohres im thermischen Gleichgewicht befinden. Der geheizte Bereich der Apparatur ist mit Glasfasermatten isoliert und in einem Aluminium-Gehäuse verpackt (siehe Abbildung A.2 in Anhang A.1). Dieses dient nicht nur als Hitzeabschirmung, sondern minimiert auch die Geruchsbelastung durch Dämpfe, die durch das Heizen von Verunreinigungen in der Isolierung entstehen. Detailliertere Konstruktionspläne und alle Informationen zu den verwendeten Komponenten sind im Anhang A.1 zu finden.

4.1.3 Temperaturstabilität und Heizvorgang

Zum Heizen wird, wie erwähnt, ein Heizleiter verwendet. Dieser hat einen Widerstand von $R_{25^{\circ}C} = 6.73\Omega$, welcher sich mit zunehmender Temperatur vergrößert. Bei 400°C hat sich der Widerstand um $\Delta R = 0.2\Omega$ auf $R_{400^{\circ}C} = 6.94\Omega$ geändert (Abbildung 4.3). Die Temperatur schwankt bei konstanter Heizleistung nur sehr wenig, Abbildung 4.4 zeigt eine Langzeitmessung aus der die Standardabweichung

 $^{^3\}mathrm{Die}$ äußeren 15cm des Stahlrohr haben Raumtemperatur

⁴gemessen am Ventil

⁵Typ L, siehe auch Anhang A.1



Abbildung 4.3: Typisches Aufheizverhalten (die Thermospannungen liegen im Bereich 0 - 25mV, was zu dem sehr verrauschten Signal führt)



Abbildung 4.4: Temperaturstabilität der Dampfzelle (ohne Aluminiumgehäuse)
$$\sigma_{RMS} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} (T_i - \overline{T})^2} = 2.71^{\circ}C = 0.59\%\overline{T}$$
(4.6)

berechnet wurde.

4.1.4 Absorptionsmessungen auf Resonanz

In Abbildung 4.5 ist die Transmission eines resonanten Lasers (423.673nm) durch die Zelle bei verschiedenen Temperaturen aufgetragen. Man erkennt, daß oberhalb von circa 450°C praktisch die gesamte Laserleistung absorbiert wird. Unterhalb von 350°C hingegen ist zu wenig Dampf in der Zelle, um die Leistung wesentlich abzuschwächen. In der kleinen Grafik in Abbildung 4.5 ist der Heizstrom aufgetragen, der benötigt wurde, um im thermischen Gleichgewicht die jeweilige Temperatur zu erreichen.

Es muss erwähnt werden, daß sich diese Absorptionskurve in verschiedenen Messungen unterschiedlich präsentiert hat. Der Wendepunkt der Kurve (in Abbildung 4.5 bei etwa 405°C) hat sich bei späteren Messungen nach einer Neubefüllung mit Kalzium auf ca. 350°C verschoben (vergleiche z.B. Abbildung 4.7)! Dies ist hauptsächlich darauf zurückzuführen, daß in dieser Messung (Abbildung 4.5) die Vakuumpumpe eingeschaltet war, und ständig Kalzium-Dampf absaugte. Dadurch mußte mehr Dampf erzeugt, also stärker geheizt, werden. Kleinere Verschiebungen dieses Wendepunkts (10 bis 15°C) können auch daraus resultieren, daß die Innenraumtemperatur (Temperatur der Dampfes) nur im thermischen Gleichgewichts mit der gemessenen Temperatur übereinstimmt. Die Temperaturmessungen finden nämlich direkt an den Heizleitern statt und erst nach einer Thermalisierung stimmt diese mit der Temperatur der Innenseite des Stahlrohres überein (\pm 5°C). Ebenfalls kann die Menge bzw. die Position des Kalziums in der Zelle entscheidend für die Dichte des Dampfes sein.

Wie in Abschnitt 4.1.3 gezeigt wurde schwankt die Temperatur leicht, was wiederum zu einer Schwankung in der transmittierten Leistung führt. Angenommen man stellt die Temperatur auf die maximale Steigung $(-18.9 \text{mV}/^{\circ}\text{C})$ in Abbildung 4.5, und die Temperatur ändert sich um 5°C so ergibt dies eine um 7% veränderte Transmission.

4.1.5 Betrieb, Handhabung und Wartung

Befüllung mit Kalzium Zum Befüllen der Zelle mit Kalzium wird der Druck durch Öffnen des Ventils dem Außendruck angeglichen und das besser zugängliche Vakuumfenster abgeschraubt. Ein wenig metallisches Kalzium



Abbildung 4.5: Temperaturabhängigkeit der Transmission

(ca. 5g), in Form von Granulat⁶, wird mit einem Messer in noch kleinere Stücke zerteilt, um die Oberfläche weiter zu vergrößern. Es muss darauf geachtet werden, daß die Oberfläche des Kalziums metallisch glänzt und keine weiße Oxidationsschicht aufweist, was nach einigen Stunden an Luft der Fall ist (siehe Kapitel 2.1). Das Kalzium wird dann mit einer speziellen Schaufel in die Mitte der Röhre gebracht (Markierung an der Schaufel beachten!). Anschließend wird das Fenster wieder mit einem neuen Kupferdichtungsring verschraubt und die Luft abgepumpt (mindestens 1 Stunde, Enddruck ca. 10^{-3} mbar). Danach wird die Heizung eingeschaltet und die Zelle bei laufender Pumpe auf 450°C bis 500°C erhitzt. So soll verhindert werden, daß Kalzium chemische Verbindungen mit Elementen aus der Luft, oder anderen Verunreinigungen, eingeht.

Betrieb Bei Beginn einer Messung wird zuerst der Heizstrom auf ca. I = 3 - 3.5A gestellt. Während des Aufheizens der Zelle kann der Laser grob auf die Wellenlänge von $\lambda = 422.673$ nm gebracht werden (siehe Kapitel 3.3). Dies wird mit einem Michelson-Lambdameter überprüft, wobei auch darauf geachtet werden muss, daß der Laser nur auf eine Mode läuft (,,sin-

⁶Calcium Granules -16 Mesh (99.6%), Hersteller: Alfa Aesar, Johnson Matthey GmbH

gle mode"-Betrieb), was ebenfalls am Schwebungssignal der Photodiode des Lambdameters erkennbar ist.

Wenn der Heizleiter konstant auf 350°C geheizt wird, kann es einige Minuten dauern bis auch die Innenseite des Stahlrohres 350°C hat. Der Aufheizvorgang kann beschleunigt werden, wenn zuerst auf höhere Temperaturen (z.B. 400°C - 450°C) geheizt wird und dann auf die gewünschte Betriebstemperatur (ca. 350°C @ 2.4A) abzukühlen wird. Das hat den Vorteil, daß diese verzögerte Wärmeleitung nicht so stark zur Geltung kommt. Der ganze Aufheizvorgang dauert ungefähr 15 - 20 Minuten.

Wenn nun der Laser durch die Zelle leuchtet, sollte schon eine eindeutige Abschwächung der Leistung erkennbar sein. Durch periodisches Durchstimmen der Laserfrequenz (Dreieckspannung am Gitterpiezo (siehe Kapitel 3.3)) sollte auf einer Photodiode schon ein Absorptionssignal (siehe Kapitel 4.2.1) erkennbar sein. Nun kann durch Variation der Gitterspannung und Verstellen des Diodenstroms die Laserfrequenz genau auf das Absorptionsmaxiumum eingestellt werden und möglichen Modensprüngen entgegengewirkt werden.

Regelmäßiges Abpumpen Die Zelle wurde so konzipiert, daß nicht ständig eine Vakuumpumpe angeschlossen sein muss. Die geringen Leckraten der verwendeten Komponenten (z.B. Leckrate des Ventils: 10^{-9} mbar l/s) stellen sicher, daß einige Wochen ohne Abpumpen gearbeitet werden kann. Die Erfahrung zeigte, daß nach 6 - 8 Wochen der Druck in der Zelle die Spektroskopie beeinträchtigt. Dies äußert sich zum Beispiel dadurch, daß das transmittierte resonante Licht auch bei zu hohen Temperaturen (> 450°C) nicht komplett absorbiert wird.⁷ Grund dafür ist vermutlich die hohe Reaktivität von Kalzium mit Molekülen aus der Luft (Sauerstoff, Wasser, Stickstoff). Die Reaktivität mit der eingedrungenen Luft wird zusätzlich durch die hohen Temperaturen verstärkt.

Im Durchschnitt hielt eine Füllung Kalzium für ungefähr zwei Monate, wobei davon ausgegangen wird, daß diese Zeit verlängert werden kann. Dies sollte möglich sein, wenn sichergestellt ist, daß ausreichend Kalzium in der Zelle ist, daß von Zeit zu Zeit abgepumpt wird und daß die Zelle regelmäßig in Verwendung ist und somit auch aufgeheizt wird.

⁷Dies konnte auch durch absichtliches Verschlechtern des Vakuums (durch teilweises Öffnen des Ventils) simuliert werden.

4.2 Doppler-begrenzte Spektroskopie

Die natürliche Linienbreite einer atomaren Resonanz kann nur durch Umgehen einiger Verbreiterungsmechanismen beobachtet werden. Es sind dies Stoß- bzw. Druck-, Sättigungs- und Dopplerverbreiterung. In dieser Spektroskopiezelle kann Stoßverbreiterung vernachlässigt werden, da die mittlere Zeit zwischen Stößen $\tau_0 \approx 0.5 - 1\mu s$ [35] viel größer ist als die mittlere Lebensdauer des angeregten Zustands $\tau = 4.6$ ns. Die Sättigungsverbreiterung hängt von der verwendeten Laserintensität ab und wird in Kapitel 4.3.1 genauer diskutiert. Die Dopplerverbreiterung ist aufgrund der hohen Temperaturen des Dampfes bzw. Gases der dominierende Effekt, und wird im Folgenden diskutiert. Allerdings kann diese Verbreiterung mit geeigneten spektroskopischen Tricks umgangen werden (siehe Kapitel 4.3).

4.2.1 Absorptionsspektroskopie

Nach dem Dopplerprinzip ist die Resonanzfrequenz ω_0 eines bewegten Atoms (Geschwindigkeit v) im ruhenden Beobachtungssystem in der Frequenz

$$\omega = \omega_0 \left(1 \pm v/c \right) \tag{4.7}$$

verschoben. Die Anzahl der Atome mit einer Geschwindigkeitskomponente in Richtung des einfallenden Lichts, die im Intervall [v, v + dv] liegt, ergibt sich aus der Boltzmann-Verteilung zu

$$n(v) = N \left(\frac{m_0}{2\pi k_B T}\right)^2 \exp\left(-\frac{m_0 v^2}{2k_B T}\right) dv$$
(4.8)

Die Größe k_B ist die Boltzmann-Konstante, T die absolute Temperatur, m_0 die Atommasse und N die Gesamtzahl der Atome. Da mit der Geschwindigkeit eine Frequenzverschiebung einhergeht erhält man für die Absorption [5]

$$I(\omega) - I_0 = const \cdot \exp\left(-\frac{m_0 c^2 (\omega_0 - \omega)^2}{2k_B T \omega_0^2}\right)$$
(4.9)

Dies beschreibt eine Gausskurve mit der Breite (FWHM ... volle Breite bei halbem Maximum) von

$$\Delta\omega_{FWHM} = 2\omega_0 \sqrt{2\ln 2} \sqrt{\frac{k_B T}{Mc^2}}$$
(4.10)

Diese Breite bzw. Form der Kurve ergibt sich nur, wenn die Dopplerverbreiterung viel größer ist als alle anderen Linienverbreiterungen. In unserem



Abbildung 4.6: Vorgangsweise beim Fitten, (a) zeigt die Signale, wie sie direkt am Oszilloskop aufgenommen wurden (HV, Transmission, Resonator-Moden), (b) Polynomieller Fit der Frequenzachse mittels $TEM_{0,0}$ -Moden des Resonators, (c) Fit des Transmissionssignals mit linearer Intensitätsabhängigkeit und (d) Gauss-Fit der Absorption nach Abzug der Intensitätsabhängigkeit; $T = 359^{\circ}$ C

Fall ist dies gewährleistet, denn die homogene Linienbreite liegt im Bereich von 35 – 60MHz, wohingegen die Dopplerbreite einige Gigahertz beträgt. Im allgemeinen ergibt sich eine Faltung aus homogenen und inhomogenen Verbreiterungen, was auf ein *Voigt-Profil* führen würde.

Aus Gleichung (4.10) ergibt sich bei einer Temperatur von $T = 360^{\circ}$ C eine Dopplerbreite von

$$\Delta \nu_{360^\circ C} = 2.03 \text{ GHz}$$
 (4.11)

Zur experimentellen Aufnahme der Spektren wurde die Transmission des Lasers durch die Dampfzelle mit einer Photodiode gemessen. Die Frequenz wurde durch Anlegen einer Dreieckspannung am Gitter (Gitterrückkopplung nach Littrow, siehe Kapitel 3.3.3) durchgestimmt. Zur Kalibrierung der Frequenzachse wurde die Transmission durch einen Resonator mit freiem Spektralbereich $\nu_{FSR} = 1.5$ GHz gemessen. Abbildung 4.6 soll anhand einer Messung bei $T = 359^{\circ}$ C erklären, wie das gemessene Signal weiterverarbeitet wurde, um eine Gauss-Kurve an das Absorptionssignal zu fitten. Links oben sind die rohen Daten dargestellt, wie sie am Oszilloskop dargestellt und gespeichert wurden. Man erkennt eine Dreieckspannung, welche der Piezospannung entspricht und als Trigger diente bzw. die Umkehrpunkte der Piezobewegung kennzeichnet. Im selben Diagramm ist das Absorptionssignal zu erkennen, welches sich aus linearer frequenzabhänigiger Intensitätsschwankung des Lasers und der Doppler-verbreiterten Absorption zusammensetzt. Das Transmissionssignal durch den Resonator zeigt vier Grundmoden pro Flanke der Frequenzverstimmung. Diese haben den Abstand 1.5GHz und werden in der rechten oberen Abbildung dazu verwendet die Datenwerte (Kanäle) in Frequenzen umzurechnen. Dies geschieht mittels eines polynomiellen Fits zweiter Ordnung⁸. Im linken unteren Bild ist das Transmissionssignal durch die Dampfzelle dargestellt und gefittet. Dieser Fit wurde dazu verwendet, die lineare Intensitätsabhängigkeit zu bestimmen und herauszurechnen. Im rechten unteren Bild ist dann dieser lineare Hintergrund abgezogen, das Signal invertiert und verschoben. Anschließend wurde eine Gaussfunktion gefittet und zur Kontrolle mit den Parametern aus dem Fit des linken unteren Bildes verglichen.

Diese oder eine ähnliche Vorgangsweise wurde bei fast allen folgenden Messungen angewendet, um aus den gemessenen Daten aussagekräftige Werte zu erhalten.

Aus obigem Fit ergibt sich bei einer Temperatur von 359°C eine Breite der Gausskurve von

$$\Delta \nu_{359^{\circ}C} = 2.21 \pm 0.1 \text{ GHz}$$

was ziemlich gut mit dem theoretischen Wert übereinstimmt (siehe Gleichung (4.11)).

In Abbildung 4.7 wurde die Temperatur in Schritten über den interessanten Bereich gestimmt. Aus den gefitteten Kurven wurden die Dopplerbreiten berechnet und in Abbildung 4.8 gegen die Temperatur aufgetragen. Es ergibt sich, wie erwartet, ein linearer Zusammenhang. Die gemessenen Dopplerbreiten unterscheiden sich jedoch leicht von den (nach Gleichung (4.10)) berechneten Werten. Die Abweichung ist wahrscheinlich auf einen systematischen Fehler der Temperaturmessung (Unsicherheit ca. $\pm 5^{\circ}$ C) und auf geringe Abweichungen der Absorptionsprofile von idealen Gauss-Kurven zurückzuführen.

⁸Es besteht eine geringe Abweichung vom linearen Zusammenhang zwischen Piezospannung und Laserfrequenz



Abbildung 4.7: Absorption als Funktion von Temperatur und Verstimmung



Abbildung 4.8: Temperaturabhängigkeit der Dopplerbreite

4.2.2 Optogalvanische Spektroskopie mittels einer Hohlkathode

Bei der bestehenden linearen Falle für Kalzium-40-Ionen wird der Photoionisationslaser, wie schon erwähnt, mittels optogalvanischer Spektroskopie auf den atomaren Übergang ${}^{1}S_{0} - {}^{1}P_{1}$ gestimmt. Hierzu wird der Laser mittels eines Zerhackers (Chopper) amplitudenmoduliert und trifft dann auf eine Hohlkathode, in der eine Gasentladung brennt. Wenn nun der Laser auf Resonanz ist und daher Atome in dieser Kalzium-Hohlkathode anregt, so entstehen leichter Ca-Ionen, welche zu einem Anstieg des Stroms durch die Entladung führen. Durch die periodische Unterbrechung kann das verrauschte Signal mittels phasenempfindlicher Messung an einem Lock-In-Verstärker detektiert werden. Durch den Aufbau der Hohlkathode, ist man auf ein Dopplerbegrenztes Signal beschränkt, welches durch die hohen Temperaturen der Gasentladung sehr breit ($\delta \nu \approx 2.8$ GHz, [8]) ist. Der Laser wird also manuell durch Verdrehen des Gitters auf das Maximum des Lock-In-Signals gestimmt. Es ergeben sich also folgende Schwierigkeiten:

- Da das Signal Doppler-verbreitert ist, gestaltet sich die Suche nach dem Maximum nicht immer als einfach.
- Der Laser ist nicht stabilisiert, daß heißt er driftet mit der Zeit vom Maximum des Hohlkathoden-Signals und muss bei einem späteren Nachladen von Ionen zuerst wieder händisch auf die richtige Frequenz gebracht werden.
- Beim Vergleich mit Doppler-freien Methoden wurde festgestellt, daß die atomare Resonanz nicht immer exakt am Maximum des Dopplerverbreiterten Profils zu finden ist.
- Beim ⁴³Ca-Experiment ist es wichtig, die atomare Resonanz der ⁴³Ca-Atome zu treffen, um nicht stattdessen ⁴⁰Ca zu ionisieren. Der Frequenzunterschied liegt bei etwa 600 MHz, also innerhalb der Dopplerverbreiterten Absorptionskurve des Kalziumstrahls aus dem Ofen in der Ionen-Falle (Ofentemperatur $T > 300^{\circ}$ C).

Genauere Studien der Hohlkathoden-Spektroskopie im ⁴⁰Ca-Experiment unserer Arbeitsgruppe sind in der Diplomarbeit von Daniel Rotter zu finden [8].

4.3 Doppler-freie Sättigungs-Spektroskopie

Dieser breite Doppleruntergrund kann durch spezielle Methoden der Spektroskopie umgangen werden. Die bekannteste und einfachste Methode ist die Sättigungsspektroskopie, auf welche in diesem Abschnitt genauer eingegangen wird. Andere Doppler-freie Methoden [31] sind zum Beispiel Mehrphotonen- oder Polarisationsspektroskopie .

4.3.1 Sättigung atomarer Übergänge

Die Sättigungsspektroskopie basiert auf der Sättigung eines atomaren Übergangs. Sie ermöglicht eine Doppler-freie Detektion der Resonanz durch spektral selektive Sättigung ("hole burning"). Bevor die experimentelle Realisierung der Spektroskopie und deren Ergebnisse im Detail diskutiert werden, sollen die Auswirkungen von intensiven Lichtfeldern auf die Linienform bzw. das Absorptionsprofil berechnet werden.

Homogene Verbreiterung Befindet sich ein Atom in einem resonanten Lichtfeld, so kann dessen Absorptionsrate (Rabifrequenz Ω) vergleichbar mit der natürlichen Zerfallsrate $A_{21} = 2\pi\Gamma$ werden, und es kommt zu einer effektiven Verkürzung der Lebensdauer $\Delta\tau$ des oberen Zustandes durch induzierte Emission von Photonen, was laut Heisenberg $\Delta t \Delta E < \frac{\hbar}{2}$ zu einer Verbreiterung in der Energie ΔE bzw. $\Delta\Gamma$ führt. Die Kopplung des Lichtfelds wird durch die Rabifrequenz

$$\Omega = \frac{\mu E_0}{\hbar} \tag{4.12}$$

beschrieben, wobei μ dem Dipole
lement des Übergangs entspricht und die Feldstärke E_0 sich aus

$$I = c\varepsilon_0 E_0^2 \tag{4.13}$$

ergibt. Das Dipolmoment läßt sich aus der Übergangsrate bzw. der Lebensdauer des Zustandes bestimmen [35]:

$$A_{21} = \frac{1}{\tau} = \frac{\mu^2 \omega_0^3}{3\pi\varepsilon_0 \hbar c^3}$$
(4.14)

$$\mu = \sqrt{\frac{3\pi\varepsilon_0 \hbar c^3}{\tau \omega_0^3}} = 2.42 \cdot 10^{-29} \text{ Asm}$$
(4.15)

Aus der Literatur [2] ist die Lebensdauer des Übergangs $\tau = 4.6$ ns ($\Gamma = 34.7$ MHz) bekannt. Wenn der Sättigungsparameter S, der das Verhältnis der Wechselwirkung des Lichtes mit dem Atom und der spontanen Zerfallsrate



Abbildung 4.9: Sättigung eines homogen verbreiterten Übergangs

bzw. der Linienbreite Γ beschreibt, den Wert 1 annimmt, spricht man von Sättigung bzw. von der Sättigungsintensität I_{sat} ,

$$S = \frac{\Omega^2}{\Gamma^2} \tag{4.16}$$

$$\Rightarrow I_{sat} = \frac{2\pi^2 h c \Gamma}{3\lambda^3} = 604.8 \text{ W/m}^2 = 60.5 \text{ mW/cm}^2 \qquad (4.17)$$

Es läßt sich zeigen [31], daß sich die Linienbreite wie folgt verändert (siehe Abbildung 4.9)

$$\Gamma_{sat} = \Gamma_0 \sqrt{1+S} \tag{4.18}$$

Bei S = 1 ergibt sich für den Übergang bereits eine Linienbreite von $\Gamma_{sat} = 49$ MHz (vgl. $\Gamma_0 = 34.7$ MHz [2]). Im spektroskopischen Experiment bedeutet das, daß das man sehr vorsichtig mit der Laserleistung umgehen muss, da man diese Sättigungsintensität leicht erreichen kann. Eine experimentelle Untersuchung der Intensitätsabhängigkeit der Verbreiterung wird in Kapitel 4.3.3 gezeigt.

Sättigung inhomogen verbreiterter Absorptionsübergänge [31] In Gasen mit Maxwell'scher Geschwindigkeitsverteilung erscheint die Lichtfrequenz im System des bewegten Atoms Doppler-verschoben

$$\omega' = \omega - v_z k \tag{4.19}$$

wobe
i $E=E_0\cos(\omega t-kz)$ ist. Der optische Absorptionsquerschnitt für den Überg
ang $|i\rangle\to|k\rangle$ ist dann

$$\sigma_{ik}(\omega, v_z) \propto \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega - v_z k - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2}$$

$$(4.20)$$

Für eine breite Geschwindigkeitsverteilung ergibt sich eine Doppler-verbreiterte Absorptionskurve mit der Form eines Voigt-Profils (=Faltung aus Gauss- und Lorentzkurve).

Aus Überlegungen zur Absorption und Emission kann über eine längere Rechnung die gesättigte Besetzungsdifferenz angeschrieben werden

$$\Delta N(\omega, v_z) = N_i(\omega, v_z) - N_k(\omega, v_z) = \Delta N^0(v_z) \left(1 - \frac{S_0(\gamma/2)^2}{(\omega - v_z k - \omega_0)^2 + (\gamma_s/2)^2} \right)$$
(4.21)

Man erkennt, daß eine Geschwindigkeitsklasse gesättigt wird und in der Besetzungsdifferenz ein sogenanntes Bennet-Loch erzeugt wird. Wenn nun der Absorptionskoeffizient nach

$$\alpha(\omega) = \int \Delta N^0(v_z) \ \sigma(\omega, v_z) dv_z \tag{4.22}$$

berechnet wird, ergibt sich trotz Sättigung für $\alpha(\omega)$ wieder ein Voigt-Profil, das für grosse Dopplerbreiten im Vergleich zur homogenen Linienbreite $\delta\omega_D \gg \gamma$ zu einer Gauss-Kurve der Form

$$\alpha(\omega) = \frac{\alpha^0(\omega_0)}{\sqrt{1+S_0}} e^{-\left(\frac{\omega-\omega_0}{0.6\delta\omega_D}\right)^2}$$
(4.23)

führt. Das heißt, daß sich das Bennet-Loch nicht auf das Absorptionssignal auswirkt, und daher auf diese Art nicht nachgewiesen werden kann.

Man kann dieses Bennet-Loch allerdings mit Hilfe eines zweiten Lasers nachweisen. Dazu wird ein intensiver Pumplaser auf einer Frequenz ω' eingestrahlt, der ein Bennet-Loch erzeugt. Ein zweiter schwacher Abfragelaser wird nun über das Dopplerprofil verstimmt und dessen Absorptionsprofil in Anwesenheit des Sättigungslasers ist (siehe Abbildung 4.10):

$$\alpha_s(\omega) = \alpha^0(\omega) \left(1 - \frac{S_0}{\sqrt{1+S_0}} \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega - \omega')^2 + (\Gamma_s/2)^2} \right)$$
(4.24)

wobei $\alpha^0(\omega)$ dem Dopplerprofil aus Gleichung 4.23 entspricht.



Abbildung 4.10: Absorptionsprofil für einen Probelaser (Frequenz ω) mit und ohne Sättigungslaser bei der Frequenz ω'

4.3.2 Absorptionsmessungen mit Sättigungsstrahl

Die experimentelle Realisierung der Sättigungsspektroskopie, welche die in Gleichung (4.24) berechnete Absorption detektiert, ist in Abbildung 4.11 dargestellt. Direkt hinter dem Laser steht eine optische Diode, welche etwaige Rückreflexe in die Laserdiode verhindern soll. Am ersten Polarisationsstrahlteiler (PBS 1) kann die Leistung des Referenz- bzw. des Spektroskopiestrahls durch Drehen der Polarisation am ersten $\lambda/2$ -Plättchen eingestellt werden.

Der Referenzstrahl wird in einen optischen Resonator ($\nu_{FSR} = 1.5 GHz$) eingekoppelt um eine relative Frequenzkalibrierung zu ermöglichen. Außerdem kann er zur Hohlkathodenspektroskopie, Leistungsmonitoring oder anderem benutzt werden.

Der Spektroskopiestrahl wird wiederum aufgeteilt (PBS 2) in Pump- und Probestrahl, wobei die Leistung meist im Verhältnis von ca. 3 : 1 verteilt ist. Dies kann über ein weiteres $\lambda/2$ -Plättchen eingestellt werden. Der Anteil mit p-Polarisation passiert den Strahlteiler (PBS 2) ungehindert und dient als Probestrahl. Er wird durch die Dampfzelle geführt und auf einer Photodiode (PD 1) kann die Transmission durch den Kalziumdampf gemessen werden.

Am einem weiteren Polarisationsstrahlteiler (PBS 3) wird der Pumpstrahl,



Abbildung 4.11: Verwendeter optischer Aufbau zur Sättigungsspektroskopie (eingezeichnet ist auch die jeweilige Polarisation des Lichts)

welcher an PBS 2 abgespaltet bzw. reflektiert wurde, mit dem Probestrahl (gegenläufig) überlagert. Die Überlagerung kann mit den beiden Spiegeln zwischen PBS 2 und PBS 3 optimiert werden. Ist der Laser noch nicht im Bereich der Absorption (Dopplerprofil) so kann er nach Durchlaufen der Zelle über einen Klappspiegel auf ein Wavemeter gelenkt werden, um die Wellenlänge des Lasers zu überprüfen bzw. zu korrigieren.

Stimmt die Wellenlänge (422.673 ± 0.001 nm), wird der Spiegel weggeklappt und die Transmission des Probestrahls auf PD 1 detektiert während die Laserfrequenz gescannt wird. Ist die Temperatur der Zelle, bzw. der Dampfdruck, hoch genug, so ist ein Transmissionssignal wie in Abbildung 4.12 zu sehen. Dem Absorptionssignal ist wiederum eine lineare Zu- bzw. Abnahme der Leistung überlagert, welche von der Frequenzabhängigkeit der Leistung und der Feed-Forward-Funktion (siehe Kapitel 3.3.2) des Lasersystems kommt.

Die Absorption der Zelle wird durch Einstellung der Temperatur so gewählt, daß nicht der gesamte Pumpstrahl absorbiert wird. Dieser trifft nach Durchlaufen der Zelle wieder auf PBS 2, wo er abermals reflektiert (s-polari-



Abbildung 4.12: Transmissionssignal bei Anwesenheit eines Pumpstrahls

siert) wird.

Das typische Signal der Sättigungs-Spektroskopie ist in Abbildung 4.12 dargestellt. Zusätzlich zur Dopplerverbreiterung, wie im vorangegangenen Kapitel beschrieben, wird durch die selektive Sättigung des Übergangs mit dem Sättigungslaser der Lamb-Dip erzeugt. Nach genauerer Betrachtung und Anpassen einer Kurve an das Doppler-freie Signal (siehe Abbildung 4.12 rechts) kann eine Breite dieser Resonanz von

$$\delta \nu = 39.7 \pm 3.2 \text{ MHz}$$

abgelesen werden, was wiederum sehr nahe an der natürlichen Linienbreite liegt.

4.3.3 Sättigungsspektroskopie mit Amplitudenmodulation des Pumpstrahls

Für die Demonstration der Intensitätsabhängigkeit der Linienbreite (nach Gleichung 4.18) wurde der Pumpstrahl mittels eines Zerhackers amplitudenmoduliert und das Transmissionssignal auf der Photodiode in einem Lock-In-Verstärker mit der Modulationsfrequenz $f_{mod} = 1.1$ kHz gemischt. Bei langsamer Frequenzverstimmung über die Resonanz wurden bei verschiedenen Leistungen die Spektren (Abbildung 4.13) aufgenommen.

Es ist also eine deutliche Intensitätsabhängigkeit zu erkennen. Um dies quantitativ zu verstehen wird nun die Laserintensität und der Sättigungsparameter nach Gleichung (4.16) berechnet um die Verbreiterung mit dem theoretischen Wert zu vergleichen. Die gemessene Laserleistung beträgt $P_1 =$ 1mW bzw. $P_2 = 0.5$ mW was bei einem elliptischen Strahl mit den Halbach-



Abbildung 4.13: Doppler-freies Lock-In-Signal bei verschiedenen Laserleistungen, (a) P = 1mW und (b) P = 0.5mW

 $\operatorname{sen}^9 a = 1250 \mu \mathrm{m}$ und $b = 650 \mu \mathrm{m}$ Intensitäten von

$$I_1 = \frac{P_1}{ab\pi} = 39.2 \pm 3.5 \text{ mW/cm}^2$$
$$I_2 = \frac{P_2}{ab\pi} = 19.6 \pm 1.8 \text{ mW/cm}^2$$

und Sättigungsparametern von $S_1 = 0.65$ und $S_2 = 0.32$ ergeben. Die daraus berechneten Linienverbreiterungen ergeben sich zu

$$\Gamma_{1,Theorie} = 44.5 \pm 4.0 \text{ MHz}$$

 $\Gamma_{2,Theorie} = 39.9 \pm 3.6 \text{ MHz}$

was bei Vergleich mit den gemessenen Linienbreiten relativ gut übereinstimmt

 $\Gamma_{1,Experiment} = 53.8 \pm 3.5 \text{ MHz}$ $\Gamma_{2,Experiment} = 37.5 \pm 2.1 \text{ MHz}$

⁹Die Strahlparameter wurden außerhalb der Dampfzelle gemessen, weshalb sich eine Unsicherheit in der tatsächlichen Größe im Zentrum der Zelle ergibt. Dies bestimmt zum größten Teil den Fehler der berechneten Intensitäten und Linienverbreiterungen.

4.3.4 Sättigungsspektroskopie mit Modulation des Diodenstroms

Wird der Laser mit einer Frequen
z $\Omega,$ die klein ist im Vergleich zur atomaren Linienbreite, moduliert

$$\omega(t) = \omega_0 + A\sin\Omega t, \qquad (4.25)$$

so kann die transmittierte Laserintensität durch eine absorbierende Probe in eine Taylorreihe

$$I_T(\omega) = I_T(\omega_0) + \sum_n \frac{a^n}{n!} \left(\frac{d^n I_T}{d\omega^n}\right)_{\omega_0} \sin^n \Omega t$$
(4.26)

um ω_0 entwickelt werden [31]. Nähert man das lineare Absorptionsgesetz durch

$$I_T(\omega) = I_0 \ e^{-\alpha L} \approx I_0 \ (1 - \alpha(\omega)L) \tag{4.27}$$

an (gilt für $\alpha L \ll 1$), so folgt daraus

$$\left(\frac{d^{n}I_{T}}{d\omega}\right)_{\omega_{0}} = -I_{0}L\left(\frac{d^{n}\alpha(\omega)}{d\omega}\right)_{\omega_{0}}$$
(4.28)

Man erhält nach trigonometrischen Umformungen und Vernachlässigen von höheren Potenzen von a^n (gilt für geringen Modulationshub $a/\omega_0 \ll 1$) für das Signal an der Photodiode in Transmission

$$S(n\Omega) = \frac{I_T(\omega) - I_T(\omega_0)}{I_0} \approx aL \left[\frac{a}{4} \frac{d^2\alpha}{d\omega^2} + \frac{d\alpha}{d\omega} \sin(\Omega t) - \frac{a}{4} \frac{d^2\alpha}{d\omega^2} \cos(2\Omega t) - \frac{a^2}{24} \frac{d^3\alpha}{d\omega^3} \sin(3\Omega t) \right]$$
(4.29)

Wenn nun ein phasenempfindlicher Verstärker (Lock-In-Verstärker) dieses Signal mit der *n*-ten Harmonischen $n\Omega$ der Modulationsfrequenz mischt, so erhält man also im Wesentlichen die *n*-te Ableitung des Absorptionskoeffizienten $\alpha(\omega)$.

Im Folgenden werden die experimentelle Realisierung und die Ergebnisse erläutert. Der optische Aufbau unterscheidet sich nicht von dem in Abschnitt 4.3.2. Wiederum wird zuerst das Transmissionssignal betrachtet und optimiert (siehe Abbildung 4.12).

Die Frequenz-Modulation des Lasers wird durch Modulation des Diodenstroms erreicht. Dies geschieht durch Anlegen eines Sinussignals mit der Frequenz f = 15kHz am Eingang des Current Control Moduls (DCC, siehe



Abbildung 4.14: Lorentz-Signal und Ableitungen

Kapitel 3.3.2) des Laser Controllers. Die Amplitude des Signals liegt bei 4,6 bzw. 8mV was einer Modulation des Diodenstroms $I_{LD} = 46$ mA von 0.04, 0.06 bzw. 0.08mA entspricht.

Das Photodiodensignal wird im Lock-in-Verstärker mit dieser Modulationsfrequenz bzw. einem Vielfachen (f, 2f, 3f) gemischt und der Ausgang an einem Speicheroszilloskop beobachtet.

Zur Frequenzkalibrierung wird wieder parallel dazu die Transmission durch einen optischen Resonator mit dem freien Spektralbereich $\nu_{FSR} = 1.5 \text{GHz}$ aufgenommen.

Die Frequenz des Lasers wird mittels des Scan Control Moduls (SC110) langsam (Periodendauer $T \approx 20$ s) über die Resonanz (±1.5 GHz) gestimmt.

Die Geräteparameter für die anschließend präsentierten Kurven sind in folgender Tabelle zusammengefaßt.

Lock-In-Einstellungen:	(f, 2f, 3f)
Integrations-Zeit:	$10\mathrm{ms}$
Empfindlichkeit:	$5 \text{mV}, 5 \text{mV}, 200 \mu \text{V}$
Laserscan:	
Langsamer Scan (Piezo):	$3 \mathrm{GHz}$
Periode:	20s



Abbildung 4.15: Lock-In-Signal nach Mischen mit der Modulationsfrequenzf=15kHz

Modulationsfrequenz:	15kHz
Amplitude der Strommodulation:	0.04, 0.06, 0.08mA
Laser	
Strom:	46mA
Temperatur:	$25.6^{\circ}\mathrm{C}$
Opt. Leistung in der Dampfzelle:	ca. $1.2 \mathrm{mW}$
Temperatur der Zelle:	$400^{\circ}\mathrm{C}$

In Abbildung 4.15 ist das Lock-In-Signal, welches die erste Ableitung des Absorptionskoeffizienten nach Gleichung 4.29 angibt, dargestellt. Man erkennt, daß das Signal der Ableitung einer Lorentzkurve gleicht, wenn man vom Offset, welcher durch den Doppler-Hintergrund (und der leichten Frequenzabhängigkeit der Intensität) resultiert, absieht. Beim Fit mit der Funktion

$$F = C_1 \frac{\Gamma (f - f_0)}{((\frac{\Gamma}{2})^2 + (f - f_0)^2))^2} + C_2 f + C_3, \qquad (4.30)$$

was der Ableitung einer Lorentzkurve mit linearer Hintergrundsüberlagerung entspricht, wurden die Parameter C_i , f_0 und Γ variiert. Der gefittete Parameter f_0 , welcher die Zentralfrequenz des Übergangs angibt wurde in Abbildung



Abbildung 4.16: Lock-In-Signal nach Mischen mit der zweiten Harmonischen der Modulationsfrequenz

4.15 schon abgezogen. Es ergibt sich für die Breite Γ der Lorentzkurve

$$\Gamma_{FWHM} = 53.1 \pm 0.6 \text{ MHz}$$
 (4.31)

Man erkennt auch einen Offset von $C_3 = -1.1$ V, resultierend vom Doppleruntergrund.

Danach wurde der Lock-In-Verstärker auf die zweite Harmonische (2f)der Modulationsfrequenz gestellt und das Signal des Lock-In-Verstärkers durch Erhöhen der Amplitude der Strommodulation auf 0.06mA verbessert. Alle anderen Einstellungen entsprechen der vorherigen Messung. Das erhaltene Signal (Abbildung 4.16) entspricht qualitativ der Ableitung des Signals aus Abbildung 4.15, als mit der Modulationsfrequenz gemischt wurde. Gefittet wurde diesmal mit einer Funktion, welche der zweite Ableitung einer Lorentzfunktion entspricht (4 Parameter: Γ , f_0 , $C_{1,2}$...Skalierungen). Es ergibt sich eine Lorentzbreite von

$$\Gamma_{FWHM} = 52.2 \pm 1.5 \text{ MHz}$$
 (4.32)

was sich sehr gut mit dem vorherigen Wert deckt. Das es sich um die zweite Ableitung der Lorentzkurve bzw. des Untergrundes handelt, ist die Abhängig-



Abbildung 4.17: Lock-In-Signal nach Mischen mit der 3. Harmonischen der Modulationsfrequenz

keit vom Untergrund (diese kann linear angenähert werden) nicht mehr gegeben.

Wenn man nun noch einen Schritt weiter geht und die dritte Harmonische am Lock-In-Verstärker einstellt, so ergibt sich ein deutlich kleineres Signal. Dem wird wiederum durch Erhöhen der Amplitude der Strommodulation auf 0.08mA und durch Erhöhen der Empfindlichkeit des Nachweises auf $200\mu V$ entgegengewirkt. Es fällt auf, daß das Signal nicht symmetrisch ist und der Fit mit einer Funktion, die der 3. Ableitung einer Lorentzkurve entspricht (4 Parameter: Γ , f_0 , $C_{1,2}$...Skalierungen), deshalb nicht mehr so gut paßt wie bei den Signalen zuvor. Der Parameter Γ ergibt sich hier ungefähr zu

$$\Gamma_{FWHM} = 61.2 \text{ MHz} \tag{4.33}$$

Aus analytischen Überlegungen ergibt sich, daß die Nulldurchgänge der beiden Flanken genau die Breite der ursprünglichen Lorentzkurve kennzeichnen sollten. Zur Kontrolle des gefitteten Wertes wurde so aus den Nulldurchgängen der experimentellen Daten die Breite $\Gamma = 56.2$ MHz abgelesen. Es stimmt also noch relativ gut mit den Werten der ersten und zweiten Ableitung überein.



Abbildung 4.18: Kalzium-44-Resonanz bei $\Delta \nu = 780$ MHz (rote Markierung)

Detektion des Kalzium-Isotops ⁴⁴Ca

Da der Photoionisationslaser auch für die Ionisation von 43 Ca verwendet werden soll (siehe Kapitel 3.2), wäre es wünschenswert, ein spektroskopisches Signal dieses Isotops zu detektieren. Das natürliche Vorkommen von Kalzium 43 beträgt aber nur ca. 0.135% (siehe Kapitel 2.1), und kann in der Dampfzelle nicht nachgewiesen werden. Auf der Suche nach dieser Resonanz konnte allerdings ein Signal des Isotops 44 gefunden werden. Abbildung 4.18 zeigt das spektroskopische Signal, welches wiederum mittels Modulation des Diodenstroms und Lock-In-Detektion erzeugt wurde. Neben der großen Resonanz des häufigsten Isotops ist, um 780MHz verschoben, eine weitere Resonanz erkennbar. Mittels der Tabelle 2.2 wurde sie als Signal von Kalzium 44 interpretiert. Ein Vergleich der Amplituden ergibt ein Verhältnis von 40(10): 1, was mit dem, aus dem Isotopenverhältnis, erwarteten Ergebnis 96.9: 2.09 = 46.4: 1 innerhalb des Fehlers übereinstimmt. Die Frequenzverschiebung von 780MHz deckt sich auch gut mit den Werten aus anderen Experimenten:

- Fluoreszenzmessungen an einem Atomstrahl 770(8)MHz [10] oder
- Sättigungsspektroskopie an einer Hohlkathode 773.8MHz [11].



Abbildung 4.19: Frequenzmodulationsspektroskopie

Die Resonanz von ⁴³Ca bei rund 600MHz ist nicht sichtbar, eben so wenig die ungefähr viermal so grosse Resonanz von ⁴²Ca (Vorkommen 0.65%), wobei allerdings eine Unregelmäßigkeit des Signals bei der erwarteten Frequenz (394MHZ) zu erkennen ist.

Anmerkung: Diese Messung diente eigentlich nicht der Suche nach Isotopen. Diese Signale wurden erst bei der Analyse der Daten entdeckt, und wurden darum nicht optimiert. Weitere Versuche diese Resonanzen besser zu erfassen scheiterten vermutlich daran, daß von einer optischen Komponente Rückreflexe in den Laser dazu führten, daß der Laser nicht über den gesamten Bereich sauber lief. Dem Lock-In-Signal war dadurch eine Schwingung überlagert, welche das Signal von ⁴⁴Ca nicht mehr meßbar machte.

4.3.5 Modulationstransferspektroskopie

Eine andere Methode der Spektroskopie bzw. der Erzeugung eines Fehlersignals ist die Frequenzmodulationsspektroskopie, bei der die Laserfrequenz ω mittels eines elektro-optischen Modulators (EOM) moduliert wird. Die Modulationsfrequenz ω_m wird in der Größenordnung der halben Linienbreite Γ gewählt. Dem Licht werden also Seitenbänder bei den Frequenzen $\omega \pm \omega_m$ aufmoduliert. Wird der Laser nun über die Resonanz gestimmt, wird das Licht in den Seitenbändern unterschiedlich stark absorbiert. Dies führt zu einem Schwebungssignal zwischen Seitenbändern und Träger. Dieses Schwebungssignal ist im absorptionsfreien Fall Null, da die beiden Seitenbänder genau um 180° phasenverschoben sind und sich die beiden Schwebungen genau auslöschen (siehe Abbildung 4.19).

Im Experiment wird das Photodiodensignal der Transmission mit der Referenzfrequenz ω_m gemischt und man erhält ein Gleichspannungssignal, das wiederum der Ableitung der Lorentzkurve entspricht und somit auch als Fehlersignal verwendet werden kann. Dieses Fehlersignal ist aber wiederum empfindlich auf lineare Hintergründe (z.B. näherungsweise das Dopplerprofil), die zu einem Offset des Signals führen. Dies kann verhindert werden, wenn man statt des Probestrahls, den Sättigungsstrahl moduliert. Man spricht dann von *Modulationstransferspektroskopie*, aus welchem sich wiederum ein Fehlersignal ohne Offset ergibt.

Der optische Aufbau zur Sättigungsspektroskopie (siehe Abbildung 4.11) wird dafür mit einem elektro-optischen Modulator (EOM) im Zweig des Sättigungsstrahls ergänzt. Das Signal eines Frequenzgenerators (-6dBm) wird verstärkt (+30dB) und an einem "Power Splitter" aufteilt (Verlust ca. -3dB), wobei eine Hälfte auf einen Resonanzkreis mit den EOM geht, der andere zum Mischer. Die Geometrie des induktiv gekoppelten Schwingkreises, bestehend aus einer Spule und der Kapazität des EOMs selbst, gibt dabei die Modulationsfrequenz ($\omega_m = 25.4$ MHz) vor. Als der Schwingkreis mit der Leistung von ungefähr 18dBm (65mW) getrieben wurde, ergaben sich Seitenbänder, die fast halb so intensiv waren wie die Trägerfrequenz. Dies entspricht einem Modulationsindex $\delta \approx 1.1$, welcher sich aus

$$\sqrt{\frac{I_{Seitenband}}{I_{Traeger}}} = \frac{J_1(\delta)}{J_0(\delta)} \tag{4.34}$$

berechnet. Die Intensitäten von Träger und Seitenbänder können zum Beispiel bei der Transmission durch einen optischen Resonator gemessen werden. $J_n(\delta)$ bezeichnet dabei die Besselfunktion der *n*-ten Ordnung und die Lichtwelle kann vereinfacht als

$$E(t) = E_0 \left[-J_1(\delta) e^{-i\omega_m t} + J_0(\delta) + J_1(\delta) e^{i\omega_m t} \right] e^{-i\omega t}$$
(4.35)

angeschrieben werden.

Auf der anderen Seite wird die bereitgestellte Frequenz als Lokaloszillator verwendet. Das Photodiodensignal der Transmission durch die Dampfzelle wird damit gemischt und es ergibt sich oben erwähntes DC-Signal, das sich als Offset-freies Fehlersignal eignet. Abbildung 4.20 zeigt dieses Signal bei einem Frequenzscan des Lasers. Diese Abbildung zeigt allerdings eine Mittelung über 128 Messungen, welche gemacht wurde um das Signal besser darstellen zu können. Ohne diese Maßnahme ist das Signal stark verrauscht (Signalzu-Rausch-Verhältnis ungefähr 3:1), was in zukünftigen Anwendungen noch



Abbildung 4.20: Modulationstransferspektroskopie

verbessert werden muss. Hauptgrund dieses Rauschens ist eine unzureichende Abschirmung des Schwingkreises, was unter anderem sämtliche Photodioden-Signale stört.

Kapitel 5

Laserstabilisierung

5.1 Fehlersignale

Im vorangegangenen Abschnitt wurde diskutiert wie man prinzipiell die Wellenlänge des Lasers beeinflussen kann. Doch um die Frequenz stabil zu halten ist es nötig ein Fehlersignal zu erzeugen, welches angibt wieweit der Laser von der atomaren Referenzfrequenz ω_0 verstimmt ist und in welche Richtung die Laserfrequenz nachgeregelt werden muss. Ein technisch nützliches Fehlersignal hat demnach einen Nulldurchgang bei ω_0 und bei Verstimmung ein Spannungssignal, dessen Vorzeichen von der Richtung des Laser-Drifts abhängt, dessen Steigung im Nulldurchgang möglichst gross ist und dessen Fangbereich (Breite) möglichst weit ist.

5.1.1 Gebräuchlichste Typen von Fehlersignalen

Die einfachste Methode der Erzeugung eines Fehlersignals bezüglich z.B. einer atomaren Resonanz ist die sogenannte **Flankenstabilisierung**. Dabei wird die Transmission durch das absorbierende Gas auf einer Photodiode gemessen und von einer konstanten DC-Offset-Spannung abgezogen. Man wählt diese Offset-Spannung so, daß sich ein Nulldurchgang auf den beiden Flanken des Absorptionssignals befindet (siehe Abbildung 5.1). Bei Intensitätsschwankungen, ist es empfehlenswert eine zweite Photodiode zu nehmen auf der die Leistung (-Schwankungen) des Laser gemessen wird. Die gemessene Spannung wird entsprechend verstärkt oder abgeschwächt und anstelle der DC-Offset-Spannung verwendet. Nachteile der Flankenstabilisierung sind, daß nicht genau auf dem Maximum der Absorptionskurve ein Nulldurchgang erzeugt wird, daß der Einfangbereich, von der Seite Richtung Resonanz, sehr gering ist, und zwei Nulldurchgänge mit genau umgekehrten Steigungen, vorhanden sind.



Abbildung 5.1: Fehlersignal zur Flankenstabilisierung auf einen optischen Resonator (aus [36])

Eine andere sehr gebräuchliche Möglichkeit ist die **Pound-Drever-Hall-Methode** zur Stabilisierung eines Laser auf einen stabilen optischen Resonator [19]. Dabei wird die Frequenz des Lasers ω mit der Frequenz Ω moduliert. Das einfallende Feld kann bei kleinem Modulationsindex β als ein Lichtfeld bestehend aus drei Frequenzen angenähert werden.

$$E_{ein} = E_0 \ e^{i(\omega t + \beta \sin \Omega t)} \approx E_0 \left[J_0(\beta) e^{i\omega t} + J_1(\beta) e^{i(\omega + \Omega)t} - J_1(\beta) e^{i(\omega - \Omega)t} \right]$$
(5.1)

Das Licht besteht also aus der ursprünglichen Welle des Lasers und dem Licht bei den Seitenbändern ($\omega \pm \Omega$) mit Amplituden entsprechend den Besselfunktionen $J_n(\beta)$.

Das am Resonator reflektierte Licht wird auf einer schnellen Photodiode gemessen. Der Feldreflexionskoeffizient ergibt sich bei einem symmetrischen Fabry-Perot-Resonator zu

$$R(\omega) = \frac{r(e^{i\phi(\omega)} - 1)}{1 - r^2 e^{i\phi(\omega)}}$$
(5.2)

wobeirder Reflexionskoeffizient der Spiegel und Φ die Phasenänderung beim Durchlauf des Resonators

$$\phi = \frac{\omega}{\Delta\nu_{FSR}} = 2\pi \frac{2L}{\lambda} \tag{5.3}$$



Abbildung 5.2: Pound-Drever-Hall Fehlersignal (aus [36])

ist (L ist der Spiegelabstand des Resonators). Die reflektierte Welle ergibt sich somit zu

$$E_{ref} = E_0 \left[R(\omega) J_0(\beta) \ e^{i\omega t} + R(\omega + \Omega) J_1(\beta) \ e^{i(\omega + \Omega)t} - R(\omega - \Omega) J_1(\beta) \ e^{i(\omega - \Omega)t} \right]$$
(5.4)

Auf der Photodiode wird natürlich $P_{ref} = |E_{ref}|^2$ gemessen und nach Mischen mit der Modulationsfrequenz Ω bleibt nur der Term proportional zu sin Ωt übrig, was zu einem Fehlersignal der Form

$$\varepsilon = 2\sqrt{P_{\omega}P_{\omega\pm\Omega}} \operatorname{Im}[R(\omega)R^*(\omega+\Omega) - R^*(\omega)R(\omega-\Omega)]$$
(5.5)

führt (siehe Abbildung 5.2) [37]. P_{ω} und $P_{\omega \pm \Omega}$ sind Amplitudenkoeffizienten der reflektierten Leistung bei ω bzw. $\omega \pm \Omega$, welche sich aus E_{ref} ergeben.

5.1.2 Erzeugung eines Fehlersignals mittels Modulation des Diodenstroms

In Kapitel 4.3.4 wurde gezeigt, daß eine phasenempfindliche Detektion Signale liefert, die im wesentlichen der Ableitung des Absorptionskoeffizienten $\alpha(\omega)$ entsprechen.

Die Frequenzmodulation des Lasers wird wieder über Modulation des Diodenstroms erreicht. Man erkennt aus Abbildung 4.14, daß sich die Lock-In-Signale bei der ersten bzw. dritten Harmonischen als Fehlersignal eignen.



Abbildung 5.3: Typisches Fehlersignal bei phasenempfindlicher Detektion bei der Modulationsfrequenzf



Abbildung 5.4: Typisches Fehlersignal bei phasenempfindlicher Detektion bei der dritten Harmonischen der Modulationsfrequenz

5.1. FEHLERSIGNALE

Das Spektroskopiesignal, welches die erste Ableitung des Absorptionskoeffizienten beschreibt, hat den Nachteil, daß es nicht unabhängig vom Doppleruntergrund, bzw. anderen Überlagerungen (z.B. Intensitätsabhängigkeit der Frequenz) ist. Dies äußert sich im Offset des Signals, das heißt der Nulldurchgang, dieses Signals ist nicht genau auf der atomaren Frequenz.

Im Folgenden werden gemessene Fehlersignale analysiert und miteinander verglichen. In Abbildung 5.3 ist ein typisches Fehlersignal dargestellt, wobei hier der Offset $U_{Offset} \approx 1$ V beträgt, was zu einer Verschiebung des Nulldurchgangs von 5.9MHz neben die atomare Resonanz führt. Diese wird bestimmt durch den Wendepunkt im Zentrum des Signals. Man muss also den Offset durch entsprechende Einstellung am Lock-In-Verstärker oder am Regler (siehe Kapitel 5.2.2) kompensieren. Auf Resonanz ergibt sich dann eine Steigung des Signals von 178mV/MHz, in einem linearen Bereich mit der Breite von ca. 20MHz. Die Amplitude des Signals hängt stark von der Einstellung der Empfindlichkeit (hier: 5mV) und der Integrationszeit (10ms) am Lock-In-Verstärker bzw. der Amplitude der Strommodulation (0.05mA) und anderem (Justage von Pumpstrahl, Absorption, Scan-Geschwindigkeit etc.) ab.

Damit die Steigungen der Signale um den Nulldurchgang verglichen werden können, wurden die Amplituden jeweils auf $U_{ss} = 2V$ normiert, was optimal zur Reglerdimensionierung passt. Es ergibt sich nach dieser Normierung eine Steilheit von ca. 81mV/MHz bei der Resonanz. Dieser Wert kann und soll im Folgenden mit dem Signal bei 3*f* verglichen werden.

Besser ist es, das Signal der 3. Ableitung des Absorptionskoeffizienten als Fehlersignal (siehe Abbildung 5.4) zu benutzen. Es ist allerdings aufwendiger ein sauberes Signal zu erzeugen als bei der vorherigen Methode, da es wesentlich kleiner ist. Der Lock-In-Verstärker wird dazu auf eine größere Empfindlichkeit gestellt $(200\mu V)$ und die Amplitude der Strommodulation auf 0.08mA erhöht. Dies führt zu einem Signal in der Größenordnung des ersten Signals (siehe Abbildung 5.3). Man erkennt, daß dieses Signal (3f)schmaler ist und einen steileren Nulldurchgang hat. Außerdem gibt es keine Verschiebung durch einen Offset. Die Steigung auf Resonanz ergibt sich laut Fit zu -372 mV/MHz was, angepaßt ($U_{ss} = 2 \text{V}$), eine Steigung von -143 mV/MHz ergibt. Der lineare Bereich ist mit ca. 12MHz schmaler und die Steigung wesentlich steiler als beim Signal bei 1f und erlaubt eine genauere Regelung. Allerdings ist der Fangbereich schmaler, was das Anfahren der Resonanz erschwert und den Lock anfälliger auf größere Störungen macht. Für die Regelung ist wichtig, daß die Phase des Signals um 180° gedreht werden muss, da der Regler sonst in die falsche Richtung steuert.



Abbildung 5.5: Prinzip des Regelkreises

5.2 Elektronische Stabilisierung der Laserfrequenz

Bevor auf die speziellen Eigenschaften der Stabilisierung der Laserfrequenz eingegangen wird, werden zuerst allgemein einige charakteristische Größen für elektronische Regler diskutiert. Der folgende Abschnitt orientiert sich an [38], wo auch genauere Informationen zur elektronischen Regelungstechnik zu finden sind.

5.2.1 Grundlagen Elektronischer Regler

Ganz allgemein bringt ein Regler eine physikalische Größe (Regelgröße X) auf einen Sollwert (Führungsgröße W) und hält sie dort möglichst konstant, auch wenn Störungen Z dem entgegenwirken sollten. Eine Störung beeinflußt die Regelstrecke A_s , was zu einer Änderung der Regelgröße führt. Diese wird ständig mit der Führungsgröße verglichen und ergibt das Fehlersignal W - X, welches dem elektronischen Regler als Eingangssignal dient. Der Regler, beschrieben durch die frequenzabhängige Verstärkung $A_r(f)$, ist so abgestimmt, daß er der Störung mittels einer Stellgröße Y, die wiederum die Strecke beeinflußt, entgegenwirkt. Es ergibt sich also ein rückgekoppeltes System nach dem Prinzip von Abbildung 5.5

$$X = \frac{A_r A_s}{1 + A_r A_s} W + \frac{A_s}{1 + A_r A_s} Z$$
(5.6)

Im einfachsten (allgemeinen) Fall ist der Regler ein invertierender Proportionalverstärker, also ein Operationsverstärker mit Ohm'scher Gegenkopplung (siehe Abbildung 5.6). Bei rückgekoppelten Systemen muss immer darauf geachtet werden das die Phasennacheilung nicht 180° wird, da sonst die



Abbildung 5.6: Invertierender Proportionalverstärker (P-Regler)



Abbildung 5.7: PI-Regler aus einem Operationsverstärker

Gegenkopplung zu einer Mitkopplung wird. Der Regler beginnt somit ab einer bestimmten Grenzfrequenz f_k , bei der die Schleifenverstärkung $|g| = A_r |A_s| = 1$ wird, zu oszillieren. Um ein optimales Einschwingen zu erzielen wählt man die Proportionalverstärkung bzw. die kritische Frequenz so, daß bei dieser eine Phasenreserve von $\alpha = 180^{\circ} - |\varphi(f_k)| = 60^{\circ}$ besteht. Ein Problem des reinen P-Verstärkers ist, daß stets eine Regelabweichung besteht.

$$\frac{W-X}{W} = \frac{1}{1+g} \neq 0$$
 (5.7)

Um dem entgegenzuwirken muss man kleine Frequenzen mehr verstärken, was mit Parallelschaltung eines Integrator erreicht werden kann. Das Frequenzverhalten um die kritische Frequenz, und somit die Einstellzeit, wird dabei nicht beeinflußt, wenn die Integrationsfrequenz f_I klein ist im Vergleich zu f_k . Typischerweise wird der Integrationsteil so dimensioniert, daß $f_I \approx 0.1 f_k$ wird, und die optimale Phasenreserve nur geringfügig verändert wird. In Abbildung 5.8 ist das Bode-Diagramm zu P- und PI-Regler und einer typischen Regelstrecke (Tiefpassverhalten höherer Ordnung) dargestellt.

Elektronisch wird ein solcher PI-Regler am einfachsten realisiert durch eine Schaltung wie in Abbildung 5.7. Es ergeben sich folgende charakteristische Größen: Proportionalverstärkung und Integrationsfrequenz

$$A_P = -\frac{R_2}{R_1} \tag{5.8}$$



Abbildung 5.8: Bodediagramm eines PI-Reglers mit Regelstrecke

$$f_I = \frac{1}{2\pi C_I R_2} \tag{5.9}$$

welche der Regelstrecke angepaßt werden müssen.

Zusätzlich könnte ein Differentiator parallel geschaltet werden, der eine Phasenvoreilung bei hohen Frequenzen bewirkt und der Phasennacheilung der Strecke entgegenwirkt. Dies erhöht die kritische Frequenz und ermöglicht das Erhöhen der Proportionalverstärkung und beschleunigt somit den Einschwingvorgang.

5.2.2 Realisierung eines PI-Reglers

In unserem Fall ist die Regelgröße die optische Frequenz des Lasers und die Führungsgröße die atomare Resonanzfrequenz des Kalziumübergangs. Störungen sind vor allem thermische und mechanische Fluktuationen, die die Laserfrequenz verstimmen können, da das dynamische Gleichgewicht im



Abbildung 5.9: Prinzip des Regelkreises

Laserresonator geändert wird. Die Stellgröße ist eine Spannung (Regelspannung) die an den Gitterpiezo angelegt wird und so durch optische Rückkoppelung die Laserdynamik beeinflußt.

Im folgenden Abschnitt sollen die Funktionen des gebauten Reglers, der im Weiteren oft auch als "Lock-Box" bezeichnet wird, erläutert werden. Anschließend wird die Stabilität der Regelung diskutiert. Details zum elektronischen Aufbau der Lock-Box sind im Anhang A.2 zu finden.

Die Ausgangsspannung des Hochspannungsverstärkers SC110 wird an der Rückwand der Lock-Box angelegt. Der HV-Ausgang an der Rückseite wird an den Piezo der Gitterrückkopplung angelegt, wobei darauf zu achten ist daß bei dieser BNC-Durchführung ("HV Out") der innere Pin auf Hochspannung (0 bis 150V) liegt und der äußere Pol auf der Regelspannung und nicht wie üblich geerdet ist. Es ist also darauf zu achten, daß entsprechend isolierte Kabel verwendet werden und der Piezo nicht geerdet ist. Ebenfalls auf der Rückseite befindet sich die Spannungsversorgung von $\pm 15V$, GND für den Regler. Wird die Hochspannung angelegt, so leuchtet die rote Leuchtdiode "HV" auf der Vorderseite (nur bei Stromversorgung der Operationsverstärker mit $\pm 15V$). Die grüne Leuchtdiode zeigt an, ob das Signal "HV Out" mit Regelspannung oder gegen Erde auf den Piezo geht. Dies kann über den danebenliegenden Schalter "Signal Out" umgeschaltet werden.

Da der verwendete Lock-In-Verstärker (Stanford Research Systems SR830) in Zukunft durch eine billigere Variante ersetzt werden soll, bzw. Fehlersignale aus Modulationstransferspektroskopie ebenfalls verwendbar sein sollen, ist es nötig einige Eingangsgrößen (Eigenschaften des Fehlersignals) verändern zu können. Zusätzlich dazu muss der Regler in einem kleinen Bereich für den Benutzer einstellbar sein, um das Locken auf die Resonanz sicherzustellen bzw. Optimierungen zu ermöglichen.

Das Fehlersignal wird an "Error in" angelegt und kann über das Potentio-

meter "Error Amp." verstärkt werden, um das Monitorsignal (welches auch intern zur Regelung verwendet wird) auf die Amplitude $U_{ss} \approx 2$ V zu bringen. Um Offsets im Fehlersignal zu kompensieren, welche durch verschiedene Arten der Erzeugung des Fehlersignals auftreten können (siehe Kapitel 5.1), kann am "Offset Adjust"-Potentiometer das Signal verschoben werden.

Die eigentlichen Regelparameter sind über das "P-Amp."-Potentiometer und den "Int."-Schalter veränderbar. Am Potentiometer kann die Proportionalverstärkung eingestellt werden und am Schalter der Integrator eingeschaltet oder überbrückt werden.

Ein zusätzlicher Monitor erlaubt die Kontrolle der Hochspannung vom SC110, welche im Verhältnis 1 : 10 abschwächt ist, oder des Regelsignals, wie es am Piezo anliegt.

Anmerkung: Geplant aber nicht realisiert wurde die Implementierung eine Frequenzgenerator, der zwei Frequenzen erzeugt. Eine Dreieckspannung im Bereich 50 – 100Hz und eine mit 0.1Hz und geringer Amplitude. Anstelle der Regelspannung könnte dann erstere Dreieckspannung zu Absorptionsspektroskopie bzw. die zweite zur Darstellung des Fehlersignals verwendet werden. Die entsprechenden Bedienungselemente sind im Gehäuse integriert. Man könnte somit auf diese Funktion im Toptica-Verstärker SC110 verzichten.

Die Vorgangsweise beim Locken des Lasers ist also folgende:

- Der Laser wird mittels Wavemeter auf Wellenlänge 422.673nm gestellt.
- Der Laserscan wird eingestellt und das Transmissionssignal durch die Zelle auf einer Photodiode beobachtet.
- Nach der Optimierung des Signals (Temperatur der Zelle, Strahlführung) wird anstelle der Modulation mittels des Gitterpiezos der Laserstrom moduliert und das Photodiodensignal in den Lock-In-Verstärker gegeben.
- Der Laser wird auf eine Flanke der Resonanz gestellt und der Regler ("Signal Out") eingeschaltet.
- Der Integrator ("Int."-Schalter) wird eingeschaltet und mittels Proportionalverstärkung ("P-Amp.") wird die Regelung optimiert. Notfalls kann auch die Signalverstärkung ("Error Amp.") verändert werden



Abbildung 5.10: Verwendetes Fehlersignal für die Langzeitmessungen, oben ist zum Vergleich das Transmission-Signal abgebildet.

5.2.3 Frequenzstabilität

Die im Folgenden präsentierten Messungen demonstrieren die Frequenzstabilität des Lasers. Um eine quantitative Aussage über die Frequenzabweichung machen zu können, wird das Fehlersignal aufgezeichnet, bei welchem man das Verhältnis Spannung zu Frequenzabweichung kalibriert. Der Einfachheit halber wurde nur eine lineare Näherung laut Abbildung 5.10 gemacht, welche im interessanten Bereich bei kleinen Abweichungen (bis $\pm 3V$) sehr gut mit dem gemessenen Fehlersignal übereinstimmt. Es ergibt sich eine Steigung der angepaßten Gerade von ca. 4.07MHz/V, welche für die Langzeitmessungen als Maß für die Frequenzabweichung diente. In Abbildung 5.10 ist zum Vergleich außerdem die Transmissionskurve über die Resonanz mit der Breite von ca. 40MHz eingezeichnet. Der Offset des Fehlersignals ist auf die Verwendung der ersten Harmonischen der Modulationsfrequenz zurückzuführen, welche empfindlich gegenüber Hintergründen (z.B. Dopplerprofil) ist. Vor Aktivierung der Regelung wurde diese Offset-Spannung durch entsprechende Einstellung an der Lock-Box eliminiert.

In Abbildung 5.11 ist eine Langzeitmessung über ca. 8 Minuten dargestellt, wobei während der Messung ein Temperaturdrift der Zelle festgestellt wurde. Das Transmissionssignal (oben) wurde mit der Zeit geringer, da der Dampfdruck leicht anstieg. Zur Kontrolle wurde der Lock deshalb zweimal kurz ausgeschaltet, um sicherzustellen das die Abnahme des Transmissions-



Abbildung 5.11: Langzeitmessung



Abbildung 5.12: weitere Langzeitmessung
signals nicht bedeutete, daß der Laser von der Resonanz driftet. Man erkennt also, daß das transmittierte Licht im stabilisierten Zustand, immer im Bereich der hell-grünen Linie ist, was gleich bedeutend mit "resonant mit dem Kalzium-Übergang" ist. Die rote Linie kennzeichnet die erwartete Transmission neben der Resonanz.

Der unterer Teil von Abbildung 5.11 zeigt das Fehlersignal, wobei zu Beginn der Messung der Laser ein paar mal langsam über die Resonanz gestimmt wurde und dann der Lock eingeschaltet wurde. Aus der Größe des Fehlersignals während der Regelung wurde die Frequenzabweichung berechnet und in einem Histogramm dargestellt (Abbildung 5.11 rechts). Das Histogramm enthält alle Meßpunkte der Langzeitmessung ab ca. Sekunde 70. Die äußersten Punkte im Histogramm stammen also von der absichtlichen Deaktivierung der Stabilisierung. Im stabilisiertem Zustand beträgt die Frequenzabweichung also bis zu maximal ± 7 MHz, was durch andere Langzeitmessungen, zum Beispiel in Abbildung 5.12, weiter bestätigt wird. Die Frequenzabweichung beträgt wiederum maximal ± 7 MHz.

Aus der Messung von Abbildung 5.12 wurde die Standardabweichung (mittlere quadratische Abweichung RMS) berechnet:

$$\sigma_{RMS} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} F_i^2} = 2.64 \text{ MHz}$$
(5.10)

In Abbildung 5.13 ist das Einschwingverhalten der Regelung aufgezeigt. Im ersten Abschnitt (**A**) wurde die Frequenz der Lasers manuell (durch Erhöhen der Spannung am Gitterpiezo) über die Resonanz gestimmt. Es ergibt sich ein typisches Fehlersignal (Mischen mit 1f, siehe Kapitel 5.1.2 Fehlersignale). Im zweiten Bereich (**B**) wurde die Frequenz auf die Resonanz gestellt, im Idealfall ergäbe sich das Fehlersignal zu Null, was aber im Experiment nicht manuell einstellbar ist. Man sitzt also auf einer Flanke des Doppler-freien Dips. Nach Aktivierung der Regelung integriert der Regler die Abweichung und regelt dagegen, bis sich das Fehlersignal um Null einstellt (Bereich **C**).

In anderen Messungen, die mit diesem Lasersystem gemacht wurden, stellte sich die Stabilität des Locks als sehr zufriedenstellend heraus. Es zeigte sich, daß der Laser über mehrere Stunden im Lock bleiben kann, was auch auf den stabilen Aufbau des Lasers zurückzuführen ist.

Die Langzeitstabilität ist gewährleistet, wenn sichergestellt ist, daß

• sich der Laser im thermischen Gleichgewicht befindet und sich das Verstärkungsprofil im aktiven Medium nicht verändert. Durch kleine Variationen am Diodenstrom kann die Tendenz zum Mehrmodenbetrieb notfalls unterbunden werden.



Abbildung 5.13: A...Manuelles Scannen über Resonanz; B...Freilaufend auf bzw. knapp neben der Resonanz; C...Nach Einschalten der Regelung

- Weiters ist wichtig, daß die Temperatur in der Spektroskopiezelle sich nicht ändert, was eine Änderung der Transmissionsleistung zur Folge hat. Dies kann im Extremfall dazu führen, daß der Lamb-Dip nicht mehr detektierbar ist und somit kein Fehlersignal mehr erzeugt werden kann.
- Die Regelung selbst muss ebenfalls optimiert sein, was durch Variation der Verstärkung am Proportionalteil des Reglers und der Fehlersignalverstärkung erreicht werden kann.
- Ein weiterer Punkt ist, bei Verwendung der ersten Harmonischen zur Erzeugung des Fehlersignal, daß der Offset gut eingestellt sein muss. Dazu kommt, daß, wenn der Laser oder die Dampfzelle nicht optimal im thermischen Gleichgewicht ist, sich der Offset verändern kann.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

Das Ziel dieser Arbeit war die Vorbereitung eines Lasersystems zur isotopenselektiven Photoionisation des Kalzium-Isotops mit der Masse 43 in zukünftigen Experimenten mit Ionenfallen.

Zu Beginn galt es, eine Möglichkeit zu finden die Übergangsresonanz meßbar zu machen und zu untersuchen. Dazu wurde eine heizbare Zelle konstruiert, mit der genügend Dampfdruck erzeugt werden kann um Doppler-freie Spektroskopie an Kalzium durchführen zu können.

Anschließend wurden unterschiedliche spektroskopische Techniken verwendet um die Resonanz zu vermessen und zu charakterisieren. Dies wurde unter anderem mit Sättigungsspektroskopie in Kombination mit unterschiedlichen Modulationsverfahren erreicht.

Nachdem die Resonanzfrequenz nun meßbar war, galt es, ein Verfahren zu finden, den Laser auf diese zu stabilisieren. In einem ersten Schritt wurde ein spektroskopisches Signal ausgewählt und als Fehlersignal verwendet. Es wurde eine elektronische Schaltung zur Regelung der Laserfrequenz auf diese Referenz gebaut. Dieser Regler wirkte über den Piezo am Rückkoppelgitter der Laserdiode auf die Laserfrequenz zurück. Somit konnte der Laser über mehrere Stunden auf die richtige Frequenz (innerhalb einiger MHz) stabilisiert werden.

Der experimentelle Aufbau zur Photoionisation wurde auf einem mobilen Wagen installiert um für verschiedene Experimente eingesetzt werden zu können. An der linearen Kalzium-40-Falle wurde demonstriert, dass die Photoionisation über eine Multi-Mode-Glasfaser funktioniert. Hierbei ist besonders die grosse Divergenz nach Austritt aus der Faser eine Schwierigkeit, welche das gute Fokussieren auf das Zentrum der Falle erschwert. In diesem Versuch konnte eine Laderate von 1.5 Ionen pro Minute erzielt werden. Der mobile Aufbau bewährte sich auch beim Laden einer neuen Falle mit Kalzium-40 (Cavity QED-Experiment). Anschließend wurde damit begonnen den Aufbau umzubauen und auch andere Komponenten wie den akustooptischen Modulator zu implementieren, der die Frequenz auf die verschobene Resonanz (Isotopieverschiebung) von Kalzium-43 bringt. Es wurden Experimente mit der neuen Falle mit Kalzium-43 begonnen, wo das System zukünftig eingesetzt werden wird.

Aufgrund der guten Analysemöglichkeit durch das Doppler-freie spektroskopische Signal werden noch weitere Dampfzellen aufgebaut, welche dann in den anderen Ionenfallenexperimenten zum Einsatz kommen werden.

Anhang A

Konstruktionspläne

A.1 Konstruktion der Dampfzelle

Beschreibung	Spezifikationen	Bezeichnung	Hersteller
Stahlrohr (2mm)	50cm x 1.8cm		Uni-Werkstatt
Heizleiter	20 cm, $R = 6.2\Omega$	SEI20/200	Thermocoax
Flanschen	CF16	F16B18	Vacom
Fenster (Koadial)	CF16	VPZ16	Vacom
Dichtungen	Kupfer	CUA16	Vacom
T-Stück	KF-Half-Nipple	KO16/6	Hositrad
Eck-Ventil	mechanisch	EV-075-SF	Huntington
Thermosensoren	Fe-CuNi	Typ L	Heraeus/Hanau
Alugehäuse	mehrteilig	Eigenbau	Uni-Werkstatt
Isolation	Alufolie, Glasfasermatten		



Abbildung A.1: Stahlrohr mit Heizleiter und Anschweissflanschen



Abbildung A.2: Dampfzelle für Spektroskopie an Kalzium



Stahlrohr mit Heizleiter, Anschweissflanschen und Rohransatz für Ventilanschluss

Abbildung A.3: Konstruktion des Rohres



Abbildung A.4: Aluminium-Gehäuse



Abbildung A.5: Seitliche Deckel des Gehäuses und Auflagestücke des Rohres auf das Gehäuse

A.2 Elektronischer Regler



Abbildung A.6: Schaltplan der Lock-Box

Der erste Operationsverstärker verstärkt das eingehende Fehlersignal und addiert einen Offset. Daneben ist der eigentliche Regler in Form eines PI-Teils, dessen Kondensator überbrückt werden kann, eingezeichnet. Im unteren Teil erkennt man die Schaltungen für die beiden LEDs und den Monitor, welcher die Piezospannung/10 darstellt.

Anhang B

Verwendete Komponenten und Geräte

Verwendung/Typ	Gerätebezeichnung	Hersteller/Vertrieb
Heizung der Zelle	PS 405 Pro	Conrad Electronic
Vakuumvorpumpe	Trivac D 16 B	Leybold
Diodenlasersystem	DL100	Toptica Photonics
Photodioden	BPW34, BPX65	Conrad Electronic
CCD-Kamera	S/W (#116750)	Conrad Electronic
Lock-In Verstärker	SR830	Stanford Research Sy-
		stems
15V-Netzteile	Eigenbau	Experimentalphysik
		Innsbruck
Digitales Oszilloskop	TDS2002	Tektronix
Speicher-Oszilloskop	TDS784A	Tektronix
Analoges Oszilloskop	HM303-6	Hameg Instruments
Hohlkathode	L233-20NU(Ca)	Hamamatsu
HV für Hohlkathode	LNC 600-50 pos.	Heinzinger
Chopper	Optical Chopper	Scitec Intruments
HV für Cavity-Piezo	Eigenbau	Experimentalphysik
		Innsbruck
Frequenz-Generator	verschiedene	Rohde und Schwarz
RF Power Splitter	ZSCJ-2-1	Mini Circuits
RF Phase Detector	ZRPD1	Mini Circuits



Abbildung B.1: Wichtigste elektronische Komponenten



Abbildung B.2: Optischer Aufbau zur Sättigungsspektroskopie

Literaturverzeichnis

- LIDE, D.R.: Handbook of Chemistry and Physics. 78. edition. CRC Press, 1997
- [2] RADZIG, A.A.; SMIRNOV, B.M.: Reference Data on Atoms, Molecules and Ions. Springer, 1985
- [3] GRÜNERT, J.; HEMMERICH, A.: Sub-Doppler magneto-optical trap for calcium. In: *Phys. Rev. A* 65 (2002), S. 041401
- [4] JAMES, D.F.V.: Quantum dynamics of cold trapped ions with application to quantum computation. In: *Appl. Phys. B* 66 (1998), S. 181
- [5] HAKEN, H.; WOLF, H.C.: Atom- und Quantenphysik. 5. Auflage. Springer, 1996
- [6] RIEBE, M. et al.: Deterministic quantum teleportation with atoms. In: Nature 429 (2004), S. 723
- [7] ROOS, C. et al.: Control and Measurement of Three-Qubit Entangled States. In: Science (2004), Nr. 304, S. 1478
- [8] ROTTER, D.: *Photoionisation von Kalzium*, Universität Innsbruck, Diplomarbeit, 2003
- [9] LINDROTH, E. ; MARTENSSON-PENDRILL, A.-M. ; SALOMONSON, S.: Specific mass shift of the $(4s4p)^{1,3}P$ states in calcium studied with manybody perturbation theory. In: *Phys. Rev. A* 31 (1985), Nr. 1, S. 58
- [10] ANDL, A. et al.: Isotopic shifts and hyperfine stucture in calcium isotopes. In: *Phys. Rev. C* 26 (1982), Nr. 5, S. 2194
- [11] STACEY, J.-P.: Stabilization and Control in a Linear Ion Trap, Walham College, Oxford, Diss., 2003

- [12] KÖRBER, T.: Atom-light interactions for the ${}^{43}Ca^+$ -experiment. In: Internes Dokument, Universität Innsbruck (2004)
- [13] GULDE, S.: Experimental Realization of quantum gates and the Deutsch-Josza Algorithm with trapped ⁴⁰Ca⁺ Ions, University of Innsbruck, Diss., 2003
- [14] ROOS, C.: Controlling the quantum state of trapped ions, University of Innsbruck, Diss., 2000
- [15] RIEBE, M.: Vortrag: Teleportation von Quanteninformation mit massiven Teilchen DPG-Tagung München, 2004
- [16] GHOSH, P.K.: Ion Traps. Clarendon Press, 1995
- [17] KREUTER, A. et al.: Spontaneous Emission Lifetime of a Single Trapped Ca⁺ Ion in a High Finesse Cavity. In: Phys. Rev. Lett. 92 (2004), Nr. 20, S. 203002
- [18] KNOOP, M. et al.: Lifetime, collisional-quenching, and j-mixing measurements of the metastable 3D levels of Ca+. In: *Phys. Rev. A* 52 (1995), Nr. 5, S. 3763
- [19] DREVER, R.W.P.; HALL, J.L.: Laser Phase and Frequency Stabilization using an Optical Resonator. In: App. Phys. B 31 (1983), S. 97
- [20] NAGOURNEY, W. et al.: Shelved optical electron amplifier: Observation of quantum jumps. In: *Phys. Rev. Lett.* 56 (1986), S. 2797
- [21] ESCHNER, J. et al.: Laser cooling of trapped ions. In: J. Opt. Soc. Am. B 20 (2003), S. 1003
- [22] DIEDRICH, F. et al.: Laser Cooling to the Zero-Point Energy of Motion. In: Phys. Rev. Lett. 62 (1989), S. 403
- [23] KJÆRGAARD, N. et al.: Isotope selective loading of an ion trap using resonance enhanced two-photon ionization. In: *Appl. Phys. B* 71 (2000), S. 207
- [24] GULDE, S. et al.: Simple and efficient photo-ionization loading of ions for precision ion-trapping experiments. In: Appl. Phys. B 73 (2001), S. 861
- [25] PULHANI, A. K.; GUPTA, G. P.; SURI, B M: Isotopic selectivity calculations for multi-step photoionization of calcium atoms using narrow-band lasers. In: *Journal of Physics B* 35 (2002), S. 3677

- [26] HARTMANN, N. Grundlagen DVD-ROM. www.tecCHANNEL.de. 2002
- [27] SWAINE, M. Blu-ray statt DVD. www.tecCHANNEL.de. 2002
- [28] PANASONIC. Video Recording Format BLU-RAY DISC Established. Panasonic Corporation Press Release. 2002
- [29] SCHULZ, M.: Ein Frequenzverdoppelter Diodenlaser bei 397nm zum Kühlen von Ca⁺-Ionen, Georg-August Universität zu Göttingen, Diplomarbeit, 1997
- [30] ARNOLD, A.S.; WILSON, J.S.; BOSHIER, M.G.: A simple extendedcavity diode laser. In: *Rev. Sci. Instrum.* 69 (1998), S. 1236
- [31] DEMTRÖDER, W.: Laserspektroskopie, Grundlagen und Techniken. 4. Auflage. Springer, 2000
- [32] JACKSON, J.D.: *Klassische Elektrodynamik*. Zweite Auflage. de Gruyter, 1993
- [33] O'HANLON, J.F.: A Users Guide to Vacuum Technology. Third edition. Wiley, 2003
- [34] HUANG, Mao-Sheng ; LU, Mao-Hong ; SHY, Jow-Tsong: A calcium vapor cell for atomic spectroscopy. In: *Rev. Sci. Instrum.* 73 (2002), Nr. 11, S. 3747
- [35] LOUDON, R.: The Quantum Theory of Light. Second edition. Oxford University Press, 1991
- [36] BACHER, M.; SULZER, P.: Praktikums-Protokoll: RF-Spektroskopie an einem Resonator. 2003. Experimentalphysik, Universität Innsbruck
- [37] BLACK, E. Notes on the Pound-Drever-Hall technique. Working Note of the LIGO-Project, Caltech+MIT. 1998
- [38] TIETZE, U.; SCHENK, Ch.: *Halbleiterschaltungstechnik*. 11. Auflage. Springer, 1999

Danksagung

Abschließend möchte ich mich bei allen bedanken, die mich im Laufe meiner Arbeit unterstützt haben und so zu einem erfolgreichen Abschluß der Arbeit beigetragen haben.

Ich bedanke mich zu aller erst bei Prof. Rainer Blatt für die Aufnahme in seiner Arbeitsgruppe und die Betreuung meiner Diplomarbeit.

Ein besonderer Dank gilt Ferdinand Schmidt-Kaler, der mir viel praktisches Wissen im Labor vermittelt hat und mir bei der Konstruktion der Dampfzelle mit vielen hilfreichen Tips zur Seite stand. Ein herzliches Dankeschön gebührt auch Christian Roos für das Korrekturlesen und seine Hilfe in der Endphase meiner Arbeit.

Außerdem danke ich Jan Benhelm für die Bereitstellung von Geräten und Ausrüstung von seinem Experiment. Für das tolle Klima im Büro bin ich genauso dankbar wie für die oft tiefgründigsten Diskussionen in der Mittagspause mit meinen Mensa-Kollegen Carlos Russo und Dany Chek-al-Kar, die für eine willkommene Abwechslung sorgten.

Natürlich gilt mein Dank auch allen anderen in der Arbeitsgruppe, die mir mit Tips und Tricks sehr oft weitergeholfen haben. Ich wünsche jedem einzelnen in der Gruppe weiterhin viel Erfolg!!

Zu guter Letzt bedanke ich mich recht herzlich bei meinen Eltern für ihr Vertrauen in meine Fähigkeiten und ihre Unterstützung, wodurch sie mir eine tolle Studienzeit ermöglicht haben.