Spektroskopie des 1001 nm Übergangs von Dysprosium

von

Lena Maske

Masterarbeit in Physik vorgelegt dem Fachbereich Physik, Mathematik und Informatik der Johannes Gutenberg-Universität Mainz am 10. April 2018

1. Gutachter: Prof. Dr. Patrick Windpassinger

2. Gutachter: Prof. Dr. Klaus Wendt

Ich versichere, dass ich die Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt sowie Zitate kenntlich gemacht habe.

Mainz, den 10. April 2018

Lena Maske QUANTUM Institut für Physik Staudingerweg 7 Johannes Gutenberg-Universität Mainz Imaske@students.uni-mainz.de

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung			1
2	Resonanzionisationsspektroskopie des 1001 nm Übergangs in Dysprosium			
	2.1	Theor	etische Grundlagen der isotopenselektiven Laserspektroskopie	4
		2.1.1	Licht-Atom Wechselwirkung	5
		2.1.2	Isotopieverschiebung	8
		2.1.3	Resonanzionisationsspektroskopie	9
	2.2	Exper	imenteller Aufbau zur Resonanzionisationsspektroskopie	12
		2.2.1	Dysprosium - Isotope und Übergange	12
		2.2.2	Der Mainzer Titan:Saphir Laser	13
		2.2.3	Die Atomstrahlapparatur MABU	15
		2.2.4	Das Gesamtsystem	16
	2.3	Exper	imentelle Ergebnisse der Resonanzionisationsspektroskopie	18
		2.3.1	Erstmalige Spektroskopie zur Bestimmung der Übergangsfrequenz	18
		2.3.2	Ermittlung potentieller zweiter Anregungsschritte	30
		2.3.3	Messung einer unteren Grenze der Lebensdauer	33
3	Red	uzierun	ng der Linienbreite eines ECDLs mit Wellenlänge 1001 nm	36
	3.1	Theor	etische Grundlagen zur Reduzierung der Laserlinienbreite	36
		3.1.1	Frequenzstabilisierung nach dem Pound-Drever-Hall-Verfahren	37
	3.2	Exper	imenteller Aufbau zur Reduzierung der Laserlinienbreite	40
	3.3	Messungen im Rahmen der Reduzierung der Laserlinienbreite		
		3.3.1	Messung der Finesse des Hochfinesse-Resonators	42
		3.3.2	Abschätzung der reduzierten Laserlinienbreite	44
4	Opt	imierur	ng der Laserkühlung für verschiedene Dysprosiumisotope	47
	4.1	Theor	etische Grundlagen zum Abbremsen von Atomstrahlen	47
		4.1.1	Streukraft	47
		4.1.2	Zeeman-Effekt	48
		4.1.3	Zeeman-Slower	49
	4.2	Exper	imenteller Aufbau zur Laserkühlung von Dysprosium	51
		4.2.1	Das Vakuumsystem	51
		4.2.2	Das Lasersystem	52
	4.3	Anpas	sung der Einstellungen zur Laserkühlung verschiedener Isotope	54
		4.3.1	Anpassung der Frequenz der Kühllaserstrahlen	54
		4.3.2	Abbremsen verschiedener Dysprosiumisotope	57
5	Fazi	it und /	Ausblick	59

Α	Anh	ang	61
	A.1	Ergänzung zur Resonanzionisationsspektroskopie mithilfe der Abregungs-	
		methode	61
	A.2	Ergänzung zur Resonanzionisationsspektroskopie mithilfe der direkten An-	
		regung	65
	A.3	Langzeitmessung zur Charakterisierung der Frequenzdrifts der verwende-	
		ten Wellenlängenmessgeräte	69
	A.4	Ergänzung zum optischen Aufbau zur Realisierung des Pound-Drever-Hall-	
		Verfahrens	70
	A.5	Ergänzung zur Messung der Finesse des im Rahmen des Pound-Drever-	
		Hall-Verfahrens verwendeten Resonators	71
	A.6	Ergänzung zur Abschätzung der mithilfe des Pound-Drever-Hall-Verfahrens	
		reduzierten Laserlinienbreite	72
	A.7	Einstellungen für die Anpassung der Frequenzen der Kühllaserstrahlen zum	
		Kühlen verschiedener Isotope	74
	A.8	Untersuchung der optimalen Zeeman-Slower Einstellungen für das Ab-	
		bremsen verschiedener Isotope	78

Abbildungsverzeichnis

2.1	Wechselwirkung eines Zwei-Niveau-Systems mit einem Strahlungsfeld	6
2.2	Schematische Darstellung der Nichtlinearität im King-Plot	9
2.3	Ausschnitt der Nuklidkarte zur Veranschaulichung der Element-und Isoto-	
	penselektivität der Resonanzionisations-Massenspektrometrie	10
2.4	Darstellung eines typischen dreistufigen Ionisationsschemas	10
2.5	Energieniveauschema von Dysprosium	13
2.6	Schematischer Aufbau des Standard Ti:Sa-Lasers	14
2.7	Schematischer Aufbau des Gitter-Ti:Sa-Lasers	14
2.8	Schematische Darstellung der Atomstrahlapparatur MABU	16
2.9	Skizze des Gesamtaufbaus zur Resonanzionisationsspektroskopie	17
2.10	Prinzip der Anregung für die beiden verwendeten Messmethoden innerhalb	
	der Resonanzionisationsspektroskopie	19
2.11	Suche nach zweiten Anregungsschritten im Rahmen der Abregungsmethode	20
2.12	Linienprofil des dritten Anregungsschritts in Schema A	21
2.13	Anregungsschemata für die Spektroskopie mithilfe der Abregungsmethode	22
2.14	Linienprofil der ersten beiden Anregungsschritte in Schema A	23
2.15	Nachweis des gesuchten Energieniveaus im Rahmen der Abregungsmethode	24
2.16	Anregungsschema und Linienprofil der direkten Anregung des 1001 nm	
	Übergangs	26
2.17	Linienprofil des 1001 nm Übergangs für alle stabilen Dysprosiumisotope	27
2.18	Zusammenfassung der Messresultate der Resonanzionisationsspektroskopie	28
2.19	Anregungsschemata zur Messung potentieller zweiter Anregungsschritte für	
	eine spätere zweistufige Fluoreszenzspektroskopie	30
2.20	Linienprofile und Sättigungsverhalten der im blauen Frequenzbereich ge-	
	messenen potentiellen zweiten Anregungsschritte für eine zweistufige Fluo-	
	reszenzspektroskopie	31
2.21	Linienprofil und Sättigungsverhalten des im nah-infraroten Frequenzbe-	
	reich gemessenen potentiellen zweiten Anregungsschritts für eine zweistu-	
	fige Fluoreszenzspektroskopie	33
2.22	Lebensdauermessung des angeregten Zustands des 1001 nm und 741 nm	
	Übergangs	34
0.1		90
3.1 2.0	Intensitat und Phase des Reflexionskoeffizienten	38
3.2	Prinzip des Pound-Drever-Hall-Verfahrens	39
პ.პ ე_₄	Skizze des Aufbaus zur Realisierung des Pound-Drever-Hall-verlahrens .	40
ა.4 ე ლ	Intensitatsproni verschiedener Moden bei der Einkopplung in einen Resonator	41
ა.ე ე დ	Nach Pound-Drever-Hall- verlahren erzeugtes Feniersignal	41
び.0 9.7	Transmission der Intensität wahrend der Cavity-King-Down-Spektroskopie	43
3.7	Rauschanalyse des Fehlersignals wahrend der Stabilisierung	44

3.8	Gemessener und theoretisch erwarteter Träger des Fehlersignals vor der Stabilisierung	45
4.1	CAD-Zeichnung des experimentellen Aufbaus zur Laserkühlung und Spei- cherung von Dysprosium	51
4.2	Skizze des Lasersystems zur Erzeugung von 421 nm und 626 nm Laserlicht	52
4.3	Spektrum atomarer Übergangsfrequenzen des 421 nm Übergangs	55
4.4	Spektrum atomarer Übergangsfrequenzen des 626 nm Übergangs	56
4.5	Spektrum der mittels Zeeman-Slower abgebremsten Atome für die fünf	
	häufigsten Dysprosiumisotope	58
A.1	Linienprofil der ersten beiden Anregungsschritte der Schemata B und C .	64
A.2	Nachweis des gesuchten Energieniveaus innerhalb der Schemata B und C.	65
A.3	Linienprofil des 1001 nm Übergangs (Wiederholungsmessungen mithilfe des	
	WSU-30)	66
A.4	Linienprofil des 1001 nm Übergangs (Wiederholungsmessung mithilfe des	
	WS6-600)	67
A.5	Linienprofil des 1001 nm Übergangs aller stabilen Dysprosiumisotope	68
A.6	Langzeitmessung zur Charakterisierung der Frequenzdrifts der verwende-	
	ten Wellenlängenmessgeräte	70
A.7	Modifizierung des Strahlprofils des 1001 nm	71
A.8	Transmission der Intensität während einer Cavity-Ring-Down-Spektroskopie	
	(Wiederholungsmessungen)	72
A.9	Zusammenhang zwischen Transmissions- und Fehlersignal im Rahmen des	
	Pound-Drever-Hall-Verfahrens	73
A.10) Spektrum atomarer Übergangsfrequenzen des 421 nm Übergangs und Feh-	
	lersignal bei 842 nm \dots	75
A.11	Spektrum atomarer Ubergangsfrequenzen des 626 nm Ubergangs und Feh-	
	lersignal bei 626 nm	76
A.12	E Einfluss des Spulenstroms und der Verstimmung auf die Funktion des	
	Zeeman-Slowers für bosonische und fermionische Isotope	79

Tabellenverzeichnis

2.1	Isotopieverschiebung des 1001 nm Übergangs	28
2.2	Zusammenfassung der Messresultate der Resonanzionisationsspektroskopie	29
2.3	Übersicht der gemessenen potentiellen zweiten Anregungsschritte für eine	
	zweistufige Fluoreszenzspektroskopie	32
4.1	Isotopieverschiebung des 421 nm Übergangs	55
4.2	Isotopieverschiebung des $626\mathrm{nm}$ Übergangs \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	57
A.1	Übersicht aller gemessenen zweiten Anregungsschritte für Schema A $\ .\ .$	61
A.5	Zusammenstellung der Übergangsfrequenzen, Wellenzahlen und Wellenlängen	
	aller stabilen Dysprosiumisotope	69
A.6	Frequenzeinstellungen des 842 nm Lasersystems zur Kühlung verschiedener	
	Dysprosiumisotope	77
A.7	Frequenzeinstellungen für das 626 nm Lasersystem zur Kühlung verschie-	
	dener Dysprosiumisotope	77

1 Einleitung

Die Beobachtung des Quantencharakters von Atomen, welcher bei niedrigen Temperaturen in den Vordergrund tritt, eröffnete auch außerhalb der Atomphysik eine Vielzahl neuer experimenteller Anwendungsmöglichkeiten. Der große Durchbruch innerhalb des Bereichs wurde 1995 mit der Erzeugung der ersten ultrakalten Quantengase in Form von Bose-Einstein-Kondensaten aus Alkaliatomen [1, 2, 3] erzielt. Nur wenige Jahre später folgte das erste entartete Fermi-Gas [4, 5]. Im Bereich der Festkörperphysik beispielsweise, stellen ultrakalte Quantengase, aufgrund ihres hohen Maßes an experimentell kontrollierbaren externen und internen Freiheitsgraden, ein ideales Modellsystem zur Untersuchung von verschiedensten Vielteilchensystemen dar [6].

Während die Eigenschaften ultrakalter Alkaliatome durch die isotrope und kurzreichweitige Kontaktwechselwirkung bestimmt werden, zeigen dipolare Systeme aufgrund der zusätzlichen Dipol-Dipol-Wechselwirkung auch eine anisotrope und langreichweitige Wechselwirkung. Aus diesem Grund ermöglichen dipolare Quantengase den Zugang zu neuen, weitaus komplexeren Phänomenen [7] und sind von immer größerem Interesse. Hierbei zeichnet sich das Element Dysprosium aufgrund des neben Terbium größten im Periodensystem vorkommenden magnetischen Dipolmoments von $10\mu_B$ besonders aus. Das erste ultrakalte Quantengas aus Dysprosium wurde 2010 mithilfe von Laserkühlung in einer magneto-optischen Falle und anschließender thermischen Evaporation innerhalb einer Dipolfalle realisiert [8, 9].

Einige der in Quantengasen genutzten Elemente eröffnen aufgrund ihrer ultraschmalen Übergänge im Energieniveausystem weitere interessante Forschungsgebiete. Zu diesen Elementen zählen beispielsweise Ytterbium [10] und Strontium [11], deren ultraschmale Übergänge bereits seit vielen Jahren für Uhren genutzt werden, aber auch komplexe Systeme wie Dysprosium. Beispielsweise wird aufgrund der langen Lebensdauer der ultraschmalen Übergänge die Erzeugung zweikomponentiger Quantengase ermöglicht, die im Rahmen der Quanteninformationstheorie zur Implementierung von Qubits [12, 13, 14] genutzt werden können. Gleichzeitig bieten kalte Atome in Kombination mit ultraschmalen Übergängen aber auch die Möglichkeit zur Präzisionsspektroskopie. Die Messung der Isotopieverschiebung zweier Übergänge ermöglicht zum Beispiel die Darstellung derselbigen innerhalb eines sogenannten King-Plots [17]. Eine hinreichend hohe Präzision der Messung erlaubt dabei eine Interpretation des resultierenden King-Plots hinsichtlich der Physik jenseits des Standardmodells. Damit ist ein idealer Ausgangspunkt für einen Test der fundamentalen Physik [15, 16] gegeben. Im Zuge eines solchen Tests kann die Existenz einer neuartigen theoretisch vorhergesagten Wechselwirkung zwischen Elektron und Neutron untersucht werden. Da eine Konsequenz dieser Wechselwirkung die massenabhängige Verschiebung der Energieniveaus eines Atoms wäre, sollte eine zusätzliche Nichtlinearität im King-Plot der ebenfalls massenabhängigen Isotopieverschiebung zu beobachten sein. Der King-Plot selbst ist bereits seit den 60er Jahren eine etablierte Darstellungsmethode der Isotopieverschiebung, weshalb bereits zahlreiche Veröffentlichungen für verschiedene Elemente [18, 19, 20] existieren. Die bisher erreichte Genauigkeit von 100 Hz [18] ist

aber für eine Interpretation hinsichtlich der Nichtlinearität des resultierenden King-Plots noch nicht ausreichend. Hierfür ist die Durchführung einer Messung mit 1 Hz Genauigkeit notwendig [16]. Durch die Verwendung von kalten Quantengasen mit ultraschmalen Übergängen könnte hier in Zukunft also ein erheblicher Fortschritt erzielt werden.

Die Durchführung eines Tests der fundamentalen Physik im Rahmen einer präzisen Messung der Isotopieverschiebung ist derzeit an der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz geplant. Hier arbeiten bereits seit mehreren Jahren zwei Forschungsgruppen an bestehenden Experimenten mit Dysprosium, welches als idealer Kandidat für die geplante Präzisionsspektroskopie gilt [15]. Dysprosium bietet aufgrund seiner großen Anzahl an stabilen Isotopen und der im komplexen Energieniveauschema enthaltenen ultraschmalen Übergänge einen hervorragenden Ausgangspunkt für eine präzise Messung der Isotopieverschiebung. Der erste der beiden für den King-Plot benötigten Übergänge wird innerhalb der AG Budker in Form des $4f^{10}({}^{5}I_{8})5d6s({}^{3}D){}^{3}[10]_{10} \rightarrow 4f^{9}({}^{6}H^{o})5d^{2}({}^{3}F)({}^{8}K_{1}^{o})6s$ Mikrowellenübergangs mit einer theoretisch vorhergesagten Linienbreite von $\Gamma_{\rm HF}/2\pi = 1$ Hz [21, 22] spektroskopiert. Als zweiter Übergang wird innerhalb der AG Windpassinger der 1001 nm $4f^{10}6s^{2}({}^{5}I_{8}) \rightarrow 4f^{9}({}^{6}H^{o})5d6s^{2}({}^{7}I_{9}^{o})$ Grundzustandsübergang mit einer theoretisch vorhergesagten Linienbreite von $\Gamma_{\rm HO}/2\pi = 53$ Hz [21] untersucht.

In der AG Windpassinger, innerhalb der diese Arbeit entstanden ist, ist eine Realisierung der präzisen Messung der Isotopieverschiebung des zweiten Übergangs mittels Fluoreszenzspektroskopie an kalten Dysprosiumatomen geplant. Eine große Herausforderung ist dabei zunächst die Tatsache, dass der zu untersuchende Übergang bisher laserspektroskopisch nicht gemessen wurde. Grundsätzlich existiert für das energetisch höhere Energieniveau ein experimenteller Messwert, resultierend aus einer Messung der Fluoreszenzstrahlung einer Induktionslampe aus dem Jahr 1971 [23], jedoch ist es einer Forschungsgruppe aus Illinois in einem ersten Versuch nicht gelungen, den Übergang mithilfe eines Diodenlasers mit externem Resonator (kurz ECDL, Akronym für engl. External cavity diode laser) an kaltem Dysprosium zu spektroskopieren [24]. Als mögliche Ursache wird hierbei die verwendete Messapparatur vermutet, die bisher ausschließlich zur Fluoreszenzspektroskopie breiterer Übergänge verwendet wurde. Eine denkbare Problematik bei der Untersuchung ultraschmaler Übergänge ist der Umstand, dass das Fluoreszenzsignal aufgrund der limitierten maximalen Streurate von $\Gamma/2$ als sehr gering zu erwarten ist. Selbst bei einer maximal zu erwartenden Streurate des 1001 nm Übergangs von $2\pi \cdot 53/2$ Photonen pro Sekunde ist, aufgrund der Isotropie der emittierten Photonen, die Anzahl detektierbarer Photonen deutlich geringer. Zudem besteht, aufgrund der Tatsache, dass der experimentelle Messwert bisher nicht bestätigt werden konnte und zudem um $47 \,\mathrm{cm}^{-1}$ ($4.7 \,\mathrm{nm}$) vom theoretisch vorhergesagten Wert abweicht [21], eine Unsicherheit in der tatsächlichen Energie des angeregten Zustands. Die limitierte modensprungfreie Durchstimmbarkeit eines ECDLs, von typischerweise 25 GHz (0.08 nm), stellt daher eine weitere Problematik bei der Suche des Übergangs dar. Eine Grundvoraussetzung des geplanten Tests der fundamentalen Physik ist daher die Sicherstellung der Durchführbarkeit einer Suche und anschließenden Messung des gewünschten Übergangs mithilfe von Fluoreszenzspektroskopie an kalten Atomen. Hierfür bietet eine erste Voruntersuchung des Übergangs mithilfe einer effizienteren Spektroskopiemethode einige Vorteile. Aus dieser können wichtige Informationen bezüglich der Existenz des Übergangs sowie der genauen Übergangsfrequenz gewonnen werden. Beides vereinfacht die Suche des Übergangs in kalten Atomen später erheblich. Beispielsweise eröffnet die Resonanzionisationsspektroskopie [25, 26, 27], wie sie unter anderem in der Arbeitsgruppe LARISSA an der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz zur Spektroskopie an Dysprosium [28] eingesetzt wird, aufgrund der hohen Effizienz und guten Durchstimmbarkeit der Laser einen idealen Ausgangspunkt für eine Vorsuche des Übergangs. Im Rahmen der geplanten Spektroskopie an kalten Atomen kann das Fluoreszenzsignal mit der Durchführung einer zweistufigen Fluoreszenzspektroskopie an dem ultraschmalen 1001 nm Übergang im ersten Anregungsschritt und einem wesentlich breiteren Übergang beliebiger Wellenlänge im zweiten Anregungsschritt zudem erheblich vergrößert werden. Auch die Messung geeigneter zweiter Anregungsschritte kann mithilfe der Resonanzionisationsspektroskopie realisiert werden. Ziel dieser Arbeit ist daher zunächst die erste laserspektroskopische Untersuchung des 1001 nm Übergangs mithilfe von Resonanzionisation.

Neben der Sicherstellung der Durchführbarkeit einer Fluoreszenzspektroskopie ist auch die Gewährleistung der benötigten Präzision entscheidend. Für eine präzise Spektroskopie eines Übergangs geringer Linienbreite wird unter anderem ein Laser mit ähnlich schmaler Linienbreite benötigt. Daher ist die Reduzierung der Laserlinienbreite des zur Spektroskopie zur Verfügung stehenden ECDLs, von typischerweise 100 kHz ein weiteres Ziel dieser Arbeit.

Durch die vorausgehenden Schritte sollte die Möglichkeit einer präzisen Fluoreszenzspektroskopie des 1001 nm Übergangs gegeben werden. Um letztendlich auch die Messung der Isotopieverschiebung realisieren zu können, ist die Spektroskopie verschiedener Dysprosiumisotope unerlässlich. Da in der AG Windpassinger bisher nur die Laserkühlung des ¹⁶²Dy- Isotops realisiert wurde, ist ein weiteres Ziel dieser Arbeit die Optimierung der bestehenden Laserkühlung für verschiedene Dysprosiumisotope.

Entsprechend der drei zu erreichenden Ziele im Rahmen der Vorbereitung des Tests der fundamentalen Physik teilt sich diese Arbeit in drei Kapitel. Aufgrund der thematischen Vielfältigkeit beinhaltet jedes Kapitel neben der experimentellen Durchführung einen separaten Abschnitt über die relevanten theoretischen Grundlagen und den verwendeten experimentellen Aufbau. Kapitel 2 befasst sich mit der Umsetzung der ersten laserspektroskopischen Untersuchung des 1001 nm Übergangs mithilfe von Resonanzionisation. Die vorgestellten Messungen wurden alle innerhalb der AG LARISSA von Prof. Klaus Wendt durchgeführt. In Kapitel 3 wird anschließend die Reduzierung der Linienbreite, des für die spätere Präzisionsspektroskopie benötigten ECDLs, mithilfe einer Frequenzstabilisierung nach dem Pound-Drever-Hall-Verfahren [29] beschrieben. Nachfolgend wird in Kapitel 4 auf die zur Laserkühlung verschiedener Dysprosiumisotope optimierten Parameter der bestehenden Kühlung mittels magneto-optischer Falle eingegangen. Den Abschluss der Arbeit bildet ein Fazit sowie ein Ausbick auf die weiteren zu realisierenden Vorbereitungsschritte zur Umsetzung der Präzisionsspektroskopie.

2 Resonanzionisationsspektroskopie des 1001 nm Übergangs in Dysprosium

Im Rahmen dieser Arbeit ist zunächst vor allem die Verifizierung der Existenz und die bessere Kenntnis über die Übergangsfrequenz des 1001 nm Grundzustandsübergangs in Dysprosium von Interesse. Die Resonanzionisationsspektroskopie innerhalb der Arbeitsgruppe LARISSA bietet aufgrund ihrer hohen Effizienz und der großen Durchstimmbarkeit der Laser ein vielversprechendes Verfahren für eine erste spektroskopische Untersuchung, speziell an einem schwachen Übergang. Des Weiteren ermöglicht die Resonanzionisationsspektroskopie die Suche nach potentiellen zweiten Anregungsschritten ausgehend vom ultraschmalen 1001 nm Übergang als ersten Anregungsschritt. Damit können Schemata für eine zweistufige Fluoreszenzspektroskopie entwickelt werden, die in Kombination mit den gewonnenen Kenntnissen der Vorsuche eine zukünftige Fluoreszenzspektroskopie des Übergangs in kalten Atomen mit ausreichend großem Fluoreszenzsignal ermöglichen soll. Diese ist Voraussetzung für die präzise Messung der Isotopieverschiebung.

Den Anfang des Kapitels bilden die theoretischen Grundlagen, die zum Verständnis einer laserspektroskopischen Untersuchung benötigt werden. Im Weiteren wird auf den experimentellen Aufbau sowie die Resultate der durchgeführten Resonanzionisationsspektroskopie eingegangen.

2.1 Theoretische Grundlagen der isotopenselektiven Laserspektroskopie

Unter dem Begriff Laserspektroskopie werden verschiedene Verfahren zusammengefasst, bei denen die elektromagnetische Wechselwirkung von Licht mit Atomen bzw. Molekülen untersucht und eine Vielzahl an Kenntnissen über die Atomstruktur durch die Beobachtung der daraus resultierenden Emissions-und Absorptionsspektren gewonnen wird. Unter anderem ermöglicht die Beobachtung von Atomspektren verschiedener Isotope eines Elementes auch die Bestimmung der verschiedenen Übergangsfrequenzen bzw. -wellenlängen und damit letztendlich der Isotopieverschiebung.

Im Hinblick auf die durchgeführte Spektroskopie werden im folgenden Abschnitt die den Atomspektren zugrunde liegenden Prozesse der Licht-Atom-Wechselwirkung erläutert und insbesondere auf Intensität und Form der darin enthaltenen Spektrallinien eingegangen. Anschließend werden die theoretischen Grundlagen der Isotopieverschiebung erläutert, die auch zum grundlegenden Verständnis des geplanten Tests der fundamentalen Physik notwendig sind. Abschließend wird das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Verfahren der Laserspektroskopie über Resonanzionisation vorgestellt.

2.1.1 Licht-Atom Wechselwirkung

Emission und Absorption von Licht

Der Zustand eines Atoms in einem elektromagnetischen Feld kann sich durch Absorption oder Emission eines Photons ändern. Im Folgenden wird der klassische Ansatz zur Beschreibung dieser Prozesse gewählt. Dieser bietet Vorteile aufgrund der hohen Anschaulichkeit und ist im Hinblick auf die durchgeführten Messungen ausreichend. Dennoch sei darauf hingewiesen, dass für eine vollständige Beschreibung ein quantenmechanischer Formalismus gewählt werden muss. Für ein Zwei-Niveau-System im Strahlungsfeld mit den Energieniveaus E_i und E_f wobei $E_i < E_f$ werden folgende, in Abbildung 2.1 dargestellte, Prozesse unterschieden [30, S. 10ff.]:

• Absorption: Das Zwei-Niveau-System befindet sich bei diesem Prozess zunächst im energetisch niedrigeren Zustand $|i\rangle$. Durch Absorption eines Photons des Strahlungsfeldes mit Energie $h\nu$ kann das System in den energetisch höheren Zustand $|f\rangle$ übergehen, wenn

$$h\nu = E_i - E_f \tag{2.1}$$

erfüllt ist. Dabei ist h das Plancksche Wirkungsquantum und ν die Frequenz des Photons. Gleichung 2.1 entspricht der Energieerhaltung des Gesamtsystems, die für alle Prozesse gegeben sein muss. Die Wahrscheinlichkeit P_{if} , dass ein Atom pro Sekunde ein Photon absorbiert, ist proportional zur spektralen Energiedichte $\rho(\nu)$ und gegeben durch

$$P_{if} = B_{if}\rho(\nu), \tag{2.2}$$

wobei der Proportionalitätsfaktor B_{if} als Einstein-Koeffizient der Absorption bezeichnet wird.

• Stimulierte Emission: Das Zwei-Niveau-System befindet sich bei diesem Prozess zunächst im energetisch höheren Zustand $|f\rangle$. Durch den Einfluss eines Photons des Strahlungsfeldes mit Energie $h\nu$ kann das System stimuliert in den energetisch niedrigeren Zustand $|i\rangle$ übergehen. Die Wahrscheinlichkeit P_{fi} , dass ein Atom pro Sekunde ein Photon stimuliert emittiert, ist, analog zur Absorption, gegeben durch

$$P_{fi} = B_{fi}\rho(\nu), \tag{2.3}$$

wobei der Proportionalitätsfaktor B_{fi} als Einstein-Koeffizient der stimulierten Emission bezeichnet wird.

 Spontane Emission: Das Zwei-Niveau-System befindet sich bei diesem Prozess, wie zuvor, zunächst im energetisch höheren Zustand |f⟩, geht aber ohne den Einfluss eines Photons des Strahlungsfeldes in den energetisch niedrigeren Zustand |i⟩ über. Die Wahrscheinlichkeit P_{spontan} für diesen Prozess ist unabhängig vom äußeren Feld und daher gegeben durch

$$P_{\text{spontan}} = A_{fi}, \qquad (2.4)$$

wobei A_{fi} als Einstein-Koeffizient der spontanen Emission bezeichnet wird. Existieren mehrere energetisch tiefere Zustände $|i\rangle$, so ist die gesamte spontane Übergangswahrscheinlichkeit $A_f = \sum_i A_{fi}$. Die Besetzungsdichte N_f des energetisch höheren Zustands $|f\rangle$ ist dann in Abhängigkeit von der Zeit gegeben durch [30, S. 29]:

$$N_f(t) = N_{f0} e^{-t \cdot A_f}.$$
 (2.5)

Nach der Zeit $t = \tau_f = 1/A_f$ ist die Besetzungsdichte N_f folglich auf 1/e ihres Anfangswertes N_{f0} abgesunken. Die Zeitspanne τ_f entspricht dabei der mittleren Lebensdauer des Zustandes $|f\rangle$. Aus der spontanen Emission resultiert damit eine begrenzte Lebensdauer des angeregten Zustands.



Abbildung 2.1: Wechselwirkung eines Zwei-Niveau-Systems mit einem Strahlungsfeld.

Werden die aus dem Strahlungsfeld absorbierten bzw. in das Strahlungsfeld emittierten Photonen detektiert, so können Atomspektren aufgenommen werden. Die emittierten bzw. absorbierten Photonen eines Übergangs sind dabei als Spektrallinie im Spektrum sichtbar. Die Intensität der Spektrallinien ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit eines Übergangs von einem Energieniveau in ein anderes. Diese Übergangswahrscheinlichkeit ist beispielsweise nach Gl. 2.4 durch den Einstein-Koeffizient der spontanten Emission A_{fi} gegeben. Speziell für den 1001 nm Übergang in Dysprosium ergibt sich aufgrund der langen theoretisch vorausgesagten Lebensdauer von 3 ms [21] nach Gl. 2.4 und 2.5 folglich nur eine kleine Übergangswahrscheinlichkeit und damit eine zu erwartende Spektrallinie geringer Intensität.

Linienbreite von Spektrallinien

Neben der Intensität ist auch die Form der Spektrallinien im Atomspektrum von Bedeutung, denn daraus kann abhängig vom experimentellen Aufbau auf die Lebensdauer eines angeregten Zustands, die Sättigungsintensität eines Übergangs oder die Geschwindigkeitsverteilung der Atome im Experiment geschlossen werden.

Bei der Absorption bzw. Emission elektromagnetischer Strahlung ist die Frequenz der entsprechenden Spektrallinien nicht streng monochromatisch. Vielmehr entspricht die Frequenz der absorbierten bzw. emittierten Intensität $I(\omega)$ einem Lorentz-Profil

$$I(\omega) = I_0 \frac{\Gamma/2\pi}{(\omega - \omega_0)^2 + (\Gamma/2)^2}$$
(2.6)

um die Mittenfrequenz $\omega_0 = 2\pi\nu_0$ [30, S.43ff.]. Dabei ist $I_0 = \int_0^\infty I(\omega) d\omega$ die Gesamtintensität. Die volle Halbwertsbreite Γ der Verteilung entspricht dem Frequenzintervall, in dem die Intensität $I(\omega)$ auf $I(\omega)/2$ abgesunken ist und wird auch als natürliche Linienbreite bezeichnet. Diese kann aus der Relation $\Delta E \cdot \Delta t \geq \hbar$ mithilfe der Lebensdauer des angeregten Zustandes τ zu

$$\Gamma = \frac{1}{2\pi\tau} \tag{2.7}$$

abgeleitet werden. Aufgrund von Verbreiterungseffekten lässt sich das durch Gl. 2.6 beschriebene Lorentz-Profil mit der natürlichen Linienbreite im Allgemeinen experimentell nicht direkt beobachten. Im Folgenden wird daher auf die im Rahmen dieser Arbeit relevanten Verbreiterungseffekte, die Doppler- und die Sättigungsverbreiterung, weiter eingegangen.

Die Doppler-Verbreiterung resultiert aus dem Doppler-Effekt, der eine Verschiebung der Resonanzfrequenz ω_0 eines bewegten Atoms bewirkt. Das Atom bewegt sich dabei mit der Geschwindigkeit **v** relativ zu einer ebenen Lichtwelle mit dem Wellenvektor **k**. Fällt die Lichtwelle in z-Richtung ein, so erscheint die verschobene Resonanzfrequenz ω im nicht-relativistischen Fall als

$$\omega = \omega_0 + k_z \cdot v_z \quad \text{mit} \quad k = \frac{2\pi}{\lambda}.$$
 (2.8)

Im thermischen Gleichgewicht ist die Geschwindigkeit der Atome eines Gases im Allgemeinen nicht fest, sondern folgt einer Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung. Wird die Geschwindigkeit v_z der Atome mithilfe von Gl. 2.8 als Kreisfrequenz ω ausgedrückt, folgt für die Anzahl an Atomen $n_i(\omega)d\omega$, die im Frequenzintervall $[\omega, \omega + d\omega]$ absorbiert bzw. emittiert werden können [30, S.47ff.]

$$n_i(\omega)d\omega = N_i \frac{c}{v_w \omega_0 \sqrt{\pi}} e^{-\left(\frac{\omega - \omega_0}{\omega_0 v_w / c}\right)^2} d\omega.$$
(2.9)

Hier ist $v_w = \sqrt{2k_BT/m}$ die wahrscheinlichste Geschwindigkeit, die in Abhängigkeit der Temperatur der Atome T, der Atommasse m und der Boltzmann-Konstante k_B gegeben ist, und N_i die Anzahl aller Atome im Zustand E_i . Aufgrund der Proportionalität der absorbierten bzw. emittierten Intensität $I(\omega)$ zur Dichte $n_i(\omega)$ lässt sich nun auch das resultierende Intensitätsprofil als

$$I(\omega) = I(\omega_0) e^{-\left(\frac{\omega - \omega_0}{\omega_0 v_w/c}\right)^2}$$
(2.10)

ableiten. Unter Berücksichtigung der Dopplerverbreiterung entspricht das Intensitätsprofil folglich einer Gauß-Funktion, deren Halbwertsbreite $\delta\omega_D$, gegeben durch

$$\delta\omega_D = \frac{\omega_0}{c} \sqrt{\frac{8k_B T \ln 2}{m}},\tag{2.11}$$

die natürliche Linienbreite im Experiment oft um Größenordnungen übertrifft. Die Doppler-verbreiterten Spektrallinien haben allerdings kein reines Gauß-Profil, da selbst bei Atomen mit derselben Geschwindigkeitskomponenten v_z die absorbierte bzw. emittierte Intensität, bedingt durch die endliche Lebensdauer des angeregten Energieniveaus, einem Lorentz-Profil entspricht. Mathematisch wird diese Überlagerung als Faltung

$$I(\omega) \sim \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-c^2(\omega_0 - \omega')^2 / (\omega_0^2 v_w^2)}}{(\omega - \omega')^2 + (\Gamma/2)^2} d(\omega_0 - \omega')$$
(2.12)

eines Lorentz-Profils um die Mittenfrequenz ω' und einem Gauß-Profil um die Mittenfrequenz ω_0 beschrieben [30, S.51]. Das resultierende Profil wird als Voigt-Profil bezeichnet. Neben der Dopplerverbreiterung stellt die Sättigungsverbreiterung, resultierend aus der nach oben beschränkten Population des angeregten Zustands p_{ff} , einen relevanten Verbreiterungseffekt dar. Im statistischen Gleichgewicht ergibt sich die Population des angeregten Zustands als [32, S.25]

$$p_{ff} = \frac{1}{2} \frac{S(\omega)}{1 + S(\omega)}.$$
(2.13)

Dabei ist $S(\omega)$ der sogenannte Sättigungsparameter, der in Abhängigkeit des Sättigungswerts $S_0 = I/I_{\text{sat}}$, dem Verhältnis von eingestrahlter Intensität I zu Sättigungsintensität $I_{\text{sat}} = \frac{\pi h c \Gamma}{3\lambda^3}$, durch

$$S(\omega) = S_0 \frac{\Gamma/2\pi}{(\omega - \omega_0)^2 + (\Gamma/2)^2}$$
(2.14)

gegeben ist. Hierbei ist c die Lichtgeschwindigkeit und λ die Wellenlänge des eingestrahlten Lichts. Aus Gl. 2.13 ist ersichtlich, dass selbst für sehr große eingestrahlte Laserintensitäten, das heißt $S(\omega) \gg 1$, eine Population des angeregten Zustands ρ_{ff} von maximal 50% erreicht wird. Der Übergang ist gesättigt, wodurch mehr Photonen an den Rändern der Spektrallinie absorbiert werden und es zur Verbreiterung der Linie kommt. Das resultierende Linienprofil ist proportional zur Photonenstreurate $\Gamma \cdot p_{ff}$ und ergibt wieder ein Lorentz-Profil mit der neuen Halbwertsbreite $\Gamma' = \Gamma \sqrt{1 + S_0}$.

Ist die verwendete Laserlinienbreite groß gegen die natürliche Linienbreite, muss die spektrale Verteilung des Lasers $I_{\text{Laser}}(\omega)$ im Sättigungsparameter berücksichtigt werden. Im Fall wesentlich größerer Laserlinienbreiten ist der Sättigungsparameter näherungsweise durch $S_{\text{Laser}}(\omega) \approx I_{\text{Laser}}(\omega)$ gegeben [34].

2.1.2 Isotopieverschiebung

Die Frequenz eines aus dem Strahlungsfeld absorbierten bzw. in das Strahlungsfeld emittierten Photons wird als Übergangsfrequenz bezeichnet und entspricht folglich der Frequenzposition der zugehörigen Spektrallinie im Atomspektrum. Die Übergangsfrequenz ergibt sich nach Gl. 2.1 aus der Energiedifferenz der beiden beteiligten Energieniveaus. Aufgrund der unterschiedlichen Elektronenzahlen der verschiedenen Elemente und deren Kopplung in der Hülle besitzt jedes Atom ein einzigartiges Energieniveauschema und dadurch elementspezifische Übergangsfrequenzen.

Alle Elemente weisen zudem verschiedene Isotope, das heißt Atome mit identischer Anzahl an Protonen aber unterschiedlicher Neutronenzahl, auf. Zwischen den unterschiedlichen Isotopen kommt es zur Verschiebung der Energieniveaus in der Größenordnung der Hyperfeinstrukturaufspaltung (GHz), also der Aufspaltung der Energieniveaus aufgrund der Kopplung des Gesamtdrehimpulses J an den Kernspin I. Die Verschiebung wird als Isotopieverschiebung bezeichnet und ist durch den Masseneffekt(ME) aufgrund der unterschiedlichen Kernmassen und den Volumeneffekt(VE) aufgrund der unterschiedlichen Kernvolumina dominiert [31, S. 198]. Die Isotopieverschiebung zwischen zwei Isotopen der Massen A und A' wird als Frequenzunterschied

$$\delta\nu_i^{AA'} = \nu_i^A - \nu_i^{A'} = \delta\nu_{\mathrm{ME}_i}^{AA'} + \delta\nu_{\mathrm{VE}_i}^{AA'} = K_i\mu_{AA'} + F_i\delta\langle r^2\rangle_{AA'}$$
(2.15)

in der Übergangsfrequenz eines Übergangs *i* angegeben. Dabei entspricht K_i bzw. F_i dem Koeffizienten des Massen- bzw. Volumeneffekts, während $\mu_{AA'} = 1/m_A - 1/m_{A'}$ die relative Massenänderung und $\delta \langle r^2 \rangle_{AA'}$ die Änderung in der Ladungsverteilung auf-

grund der unterschiedlichen Kernvolumina der Isotope beschreiben. Für Isotope, die eine zusätzliche Hyperfeinstrukturaufspaltung aufweisen, berechnet sich die Isotopieverschiebung als Schwerpunkt der Einzelverschiebungen. Dies ist beispielsweise für alle fermionischen Dysprosiumisotope der Fall. Da diese, im Gegensatz zu den bosonischen Isotopen mit einem Kernspin von I = 0, einen Kernspin von I = 5/2 aufweisen, kommt es zur Aufspaltung der Energieniveaus.

Die etablierteste Darstellung einer Messung der Isotopieverschiebung ist der sogenannte King-Plot[17], wobei innerhalb eines Graphs die Verschiebung eines Übergangs auf der Abszisse und die eines anderen Übergangs desselben Elements auf der Ordinate aufgetragen werden. Nach Gl. 2.15 resultiert für diese Darstellung der lineare Zusammenhang

$$\delta\nu_2^{AA'} = F_{21}\delta\nu_1^{AA'} + K_{21}\mu_{AA'} \tag{2.16}$$

mit $K_{21} = (K_2 - F_{21}K_1)$ und $F_{21} = F_2/F_1$.

Jenseits der Physik des Standardmodells könnte sich aufgrund einer neuartigen, theoretisch vorhergesagten Wechselwirkung zwischen Elektron und Neutron eine weitere massenabhängige Verschiebung der Energieniveaus ergeben [15]. Diese zusätzliche Verschiebung der Form $H_i(A - A')$ sollte in einer präzisen Messung der Isotopieverschiebung beobachtbar sein und zu einer Brechung der Linearität im King-Plot führen. Dies ist in Abb. 2.2 schematisch dargestellt.



Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Nichtlinearität innerhalb des King-Plots. Dargestellt ist die Isotopieverschiebung $\delta \nu_{1,2}^{AA'}$ zweier Übergänge für jeweils drei Isotope der Massen A_1, A_2 und A_3 . Die resultierenden Punkte a,b und c liegen nicht auf einer Geraden wodurch die Linearität gebrochen ist.

2.1.3 Resonanzionisationsspektroskopie

Das Verfahren der Resonanzionisationsspektroskopie basiert auf der mehrstufigen Anregung atomarer Übergänge eines Atoms bis über das erste Ionisationspotential hinaus und dem anschließenden Nachweis der erzeugten Ionen. Da die erlaubten atomaren Übergänge zwischen den Energieniveaus charakteristisch für jedes Element sind, ermöglicht dieses Verfahren eine elementspezifische, spektroskopische Untersuchung. Durch die Erweiterung der Resonanzionisationsspektroskopie um eine massenspektrometrische Trennung kann eine zusätzliche Isotopenselektivität erreicht werden [39], was in Abb. 2.3 dargestellt ist.

2 Resonanzionisationsspektroskopie des 1001 nm Übergangs in Dysprosium

Das Verfahren wird dann als Resonanzionisations-Massenspektrometrie bezeichnet. Zur Realisierung der mehrstufigen Anregung werden üblicherweise Laser im Pulsbetrieb verwendet. Diese bieten vor allem hinsichtlich der Effizienz der Ionisation Vorteile. Indem die Pulsdauer kurz gegen die Lebensdauer der angeregten Zustände gewählt wird, kann aufgrund der geringen Wechselwirkungsdauer ein optisches Pumpen in dunkle Zustände verhindert werden. Damit steht eine größere Anzahl an Atomen zur Ionisation zur Verfügung. Die absolute Effizienz der Resonanzionisation, das heißt das Verhältnis von erzeugten Ionen zu angeregten Atomen, wird zudem durch den Ionisationsmechanismus maßgeblich beeinflusst. Die im Rahmen dieser Arbeit relevanten Mechanismen der Photoionisation sind in Abb. 2.4 dargestellt und werden im Folgenden näher beschrieben. Dabei wird von einem für Dysprosium typischen dreistufigen Anregungsschema ausgegangen.



Abbildung 2.3: Ausschnitt der Nuklidkarte zur Veranschaulichung der Element-und Isotopenselektivität der Resonanzionisations-Massenspektrometrie.



Abbildung 2.4: Darstellung eines typischen dreistufigen Ionisationsschemas wie es für das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Element Dysprosium genutzt wird. E_i ist die Energie des ersten und E_k die des zweiten angeregten Zustands.

Nichtresonante Ionisation

Die ersten beiden Anregungsschritte erfolgen unabhängig vom Ionisationsmechanismus resonant. Das heißt die Atome werden zunächst im ersten Schritt resonant in das Energieniveau E_i und anschließend im zweiten Schritt resonant in das Energieniveau E_k angeregt. Der dritte Anregungsschritt, und damit die eigentliche Ionisation, erfolgt durch Absorption eines Photons, dessen Energie E_{nr} größer ist als die Energiedifferenz zwischen der Energie des zweiten angeregten Zustand E_k und dem Ionisationspotential E_{IP} . Da bei diesem Prozess kein energetisch höherer Zustand angeregt wird, handelt es sich um nichtresonante Ionisation. Im Fall von gepulsten Lasern ist die Anzahl der erzeugten Ionen pro Puls und Volumeneinheit, also die Ionenrate, abhängig vom Wirkungsquerschnitt der Ionisation σ_{kI} und beträgt [33, S.30]

$$S_{\rm I} = N_{\rm k} \sigma_{\rm kI} n_{\rm L3}. \tag{2.17}$$

Dabei ist $n_{\rm L3} = I_{\rm L3}/h\nu_{\rm kI}$ die Photonenflussdichte des dritten und damit ionisierenden Lasers L3 mit Laserintensität $I_{\rm L3}$ und $N_{\rm k}$ die pro Puls in den Zustand $|k\rangle$ angeregten Atome. Letzteres ergibt sich in Abhängigkeit der pro Puls in den Zustand $|i\rangle$ angeregten Atome $N_{\rm i}$ und der Photonenflussdichte $n_{\rm L2} = I_{\rm L2}/h\nu_{\rm ik}$ des zweiten anregenden Lasers L2. Ist die Pulsdauer kurz gegen die Lebensdauern der angeregten Zustände, so ist die spontane Emission vernachlässigbar und es gilt

$$N_{\rm k} = N_{\rm i} \sigma_{\rm ik} n_{\rm L2}. \tag{2.18}$$

Hier ist σ_{ik} der Wirkungsquerschnitt der Anregung $|i\rangle \rightarrow |k\rangle$. Wird N_k aus Gl. 2.18 in Gl. 2.17 eingesetzt, ergibt sich für die Ionenrate

$$S_{\rm I} = N_{\rm i} \sigma_{\rm ik} n_{\rm L2} \sigma_{\rm kI} n_{\rm L3}. \tag{2.19}$$

Typischerweise liegt der Wirkungsquerschnitt der Ionisation bei $\sigma_{kI} = 10^{-17} \text{ cm}^{-1}$. Um den Großteil der angeregten Atome ionisieren zu können, sind folglich sehr große Photonenflussdichten n_{L3} bzw. n_{L2} nötig, die mithilfe von stark fokussierten Laserstrahlen oder Lasern im Pulsbetrieb realisiert werden können [33, S.31].

Resonante Ionisation über einen autoionisierenden Zustand

Neben der nichtresonanten Ionisation besteht die Möglichkeit einer resonanten Ionisation über einen sogenannten autoionisierenden Zustand. Dabei erfolgt die Ionisation durch Absorption eines Photons, dessen Energie E_r der Energiedifferenz zwischen den Energien des zweiten angeregten Zustands E_k und eines autoionisierenden Zustands E_{AI} entspricht. Letzteres ist eine Mehrelektronenanregung, deren Gesamtenergie oberhalb des Ionisationspotentials liegt. Da es sich hierbei um einen resonanten Prozess handelt, ist die Wahrscheinlichkeit einer Ionisation erhöht, sodass der Wechselwirkungsquerschnitt σ_{kI} für derartige Übergänge um bis zu drei Größenordnungen höher ist [33, S.32]. Damit steigt die Ionenrate im Vergleich zur nichtresonanten Ionisation, woraus eine hohe Ionisationseffizienz im zweistelligen Prozentbereich resultiert [28],[38].

2.2 Experimenteller Aufbau zur Resonanzionisationsspektroskopie

Zur Durchführung der Resonanzionisationsspektroskopie des 1001 nm Übergangs in Dysprosium sind, neben der Atomprobe selbst, mehrere Komponenten notwendig, deren Aufbau und Funktion im folgenden Abschnitt beschrieben wird. Den Anfang bildet eine kurze Beschreibung der relevanten Eigenschaften des Elements Dysprosium mit seinen Isotopen und dem zu spektroskopierenden 1001 nm Übergang. Nachfolgend werden die verwendeten Titan:Saphir Lasersysteme beschrieben. Diese werden zur Anregung der Atome bis über das erste Ionisationspotential hinaus genutzt und garantieren durch ihren Pulsbetrieb unter anderem die in Abschn. 2.1.3 geforderten großen Photonenflussdichten zur effizienten Ionisation. Anschließend wird die Mainzer-Atomstrahlapparatur (MABU -Akronym für engl. *Mainzer atomic beam unit*) beschrieben, die sowohl die Erzeugung von atomarem, gasförmigem Dysprosium zur Spektroskopie als auch die Detektion der erzeugten Ionen mittels Elektronenvervielfacher ermöglicht.

2.2.1 Dysprosium - Isotope und Übergange

Das chemische Element Dysprosium gehört zu den Lanthanoiden und ist mit dem Elementsymbol Dy und der Ordnungszahl 66 im Periodensystem zu finden. Natürlich vorkommendes Dysprosium hat sieben stabile Isotope. Dabei sind ¹⁶⁴Dy (28%), ¹⁶²Dy (25%), ¹⁶⁰Dy (2,3%), ¹⁵⁸Dy (0,1%) und ¹⁵⁶Dy (0,06%) bosonische Isotope, während ¹⁶³Dy (25%) und ¹⁶¹Dy (19%) zu den fermionischen Isotopen zählen [35]. Alle bosonischen Isotope haben einen Kernspin von I = 0, alle fermionischen I = 5/2, was entscheidend für die Hyperfeinstrukturaufspaltung der Isotope ist.

Dysprosium hat ein komplexes Energieschema mit zahlreichen Energieniveaus. Der energetisch tiefste Zustand ist der Grundzustand mit der Elektronenkonfiguration [Xe]4f¹⁰6s², woraus hervorgeht, dass die äußeren Elektronen das 4f-Orbital teilweise, das 6s-Orbital hingegen voll besetzen. Es resultiert ein Gesamtspin von S = 2 und ein Gesamtbahndrehimpuls von L = 6, die wiederum zum Gesamtdrehimpuls J = 8 koppeln. Kompakt wird die Konfiguration für den Grundzustand als 4f¹⁰6s^{2 5}I₈ geschrieben, wobei der Elektronenkonfiguration das Termsymbol ${}^{(2S+1)}L_J^p$ hinzugefügt wird. Hier steht p für die Parität des Zustands, wobei ungerade Paritäten durch o (Abkürzung für engl. odd) und gerade Paritäten ohne zusätzliche Angabe gekennzeichnet sind. Alle Zustände können analog durch diese Notation beschrieben werden.

Ausgehend vom Grundzustand gibt es zahlreiche atomare Übergänge, wobei der im Rahmen dieser Arbeit untersuchte Übergang in Abb. 2.5 dargestellt ist. Es handelt sich dabei um den 1001 nm $4f^{10}6s^2({}^{5}I_8) \rightarrow 4f^9({}^{6}H^{\circ})5d6s^2({}^{7}I_9^{\circ})$ Grundzustandsübergang mit einer theoretisch vorhergesagten Linienbreite von $\Gamma_{1001}/2\pi = 53$ Hz [21]. Die Energie eines angeregten Zustands wird in Einheiten der Wellenzahl relativ zum Grundzustand angegeben. In diesem Fall existiert für die Energie des angeregten Zustands des 162 Dy Isotops ein theoretisch berechneter Wert von 9944 cm ${}^{-1}$ [21] sowie ein experimenteller Messwert von (9990,97 ± 0,01) cm ${}^{-1}$ [23]. Der experimentelle Messwert resultiert aus der Messung der Fluoreszenzstrahlung einer Induktionslampe aus dem Jahr 1971 und ist auch in der NIST (Akronym für *National Institute of Standards and Technology*) Datenbank gelistet [36]. Zusätzlich sind in Abb. 2.5 der 626 nm $4f^{10}6s^2({}^{5}I_8) \rightarrow 4f^{10}({}^{5}I_8)6s6p({}^{3}P^{0}_1)(8,1)^{0}_9$ Grundzustandsübergang [36] mit einer Linienbreite von $\Gamma_{626}/2\pi = 136$ kHz [37] sowie der 421 nm $4f^{10}6s^2({}^{5}I_8) \rightarrow 4f^{10}({}^{5}I_8)6s6p({}^{1}P^{0}{}_1)(8,1)^{0}{}_{9}$ Grundzustandsübergang [36] mit einer Linienbreite von $\Gamma_{421}/2\pi = 32,2$ MHz [24] eingezeichnet. Beide Übergänge werden im Rahmen der Laserkühlung von Dysprosium innerhalb der AG Windpassinger genutzt und werden daher im vierten Kapitel thematisiert.



Abbildung 2.5: Ausschnitt des Energieniveauschemas von Dysprosium mit allen bekannten Energieniveaus [36] und den 1001 nm, 626 nm und 421 nm Grundzustandsübergängen. Alle Niveaus gerader Parität sind in rot, die ungerader in schwarz gekennzeichnet. Aufgrund der Standardauswahlregeln optischer Dipolübergänge sind nur Übergänge mit $\Delta J = 0, \pm 1$ erlaubt.

2.2.2 Der Mainzer Titan:Saphir Laser

Eine notwendige Komponente für jede Spektroskopie ist eine geeignete Lichtquelle, welche idealerweise monochromatisch, intensiv strahlend und in der Wellenlänge kontinuierlich durchstimmbar sein sollte. Laser sind daher als Lichtquelle hervorragend geeignet.

Für die Resonanzionisationsspektroskopie werden in der Arbeitsgruppe LARISSA eigens entwickelte Titan:Saphir(Ti:Sa)-Laser verwendet, wobei die ursprüngliche Form im Rahmen einer Dissertation [42] 2003 konzipiert wurde. Das aktive Medium dieser Laser ist ein mit Titan-Ionen dotierter Korundkristall (Saphir, Al₂O₃), wodurch ein fundamentaler Wellenlängenbereich zwischen 680 nm und 1020 nm erreicht werden kann. Mithilfe von Frequenzverdopplung, -verdreifachung und -vervierfachung kann dieser Wellenlängenbereich zusätzlich erweitert werden. Als Energiepumpe wird ein gepulster, frequenzverdoppelter Nd:YAG-Laser mit einer Wellenlänge von 532 nm verwendet. Die Repetitionsrate der einzelnen Ti:Sa-Laser wird durch den Pumplaser bestimmt und liegt bei 10 kHz. Die Pulslänge der Ti:Sa Laser beträgt typischerweise 30–60 ns. Jeder Laser wird mit einer Leistung von 13–20 W gepumpt, wobei die resultierende Ausgangsleistung von der Bauform abhängig ist. Im Rahmen dieser Arbeit werden Ti:Sa-Laser in zwei verschiedenen Bauformen genutzt.

Abbildung 2.6 zeigt zunächst die Standard Bauform. Zu sehen ist der 532 nm Pumplaserstrahl, der mithilfe einer Linse in den Ti:Sa-Kristall fokussiert wird. Der Ti:Sa-Kristall ist dabei in der Mitte des z-förmigen Resonators platziert und von zwei Hohlspiegeln (HS) umgeben. Der Standard-Ti:Sa-Laser wird durch zwei flache Endspiegel abgeschlossen, von denen einer eine hohe Reflektivität aufweist (ES), während der andere zur Auskopplung der Laserstrahlung mit einer Reflektivität von 70–80% teildurchlässig ist (AS). Die Selektion der gewünschten Wellenlänge wird mithilfe eines Etalons und eines Lyotfilters als frequenzselektive Komponenten in Kombination mit der Wahl eines geeigneten Spiegelsatzes erreicht. Der verwendete Spiegelsatz schränkt die Wellenlänge durch eine spezielle dielektrische Beschichtung auf einen Bereich von 50–100 nm (500–1000 cm⁻¹) im Verstärkungsprofil des Ti:Sa-Kristalls ein. Die spektrale Breite des Lasers kann damit insgesamt auf 3–5 GHz reduziert werden. Die Kombination verschiedener frequenzselektiver Komponenten erlaubt, aufgrund der geringen Verluste im Resonator, hohe Ausgangsleistungen von bis zu 5 W, reduziert jedoch die modensprungfreie Durchstimmbarkeit der Laser auf etwa 330 GHz (11 cm⁻¹) [38].



Abbildung 2.6: Schematischer Aufbau des verwendeten Standard Ti:Sa-Lasers. Der Resonator in z-Konfiguration besteht aus einem Einkoppelspiegel (ES), einem Auskoppelspiegel (AS) und zwei Hohlspiegeln (HS). Für Details siehe Text.

Für die Spektroskopie bietet daher die zweite verwendete Bauform, die im Rahmen einer Dissertation 2010 [43] in ihrer ursprünglichen Form entwickelt wurde, einige Vorteile. Es handelt sich dabei um den Gitter-Ti:Sa-Laser, der in Abb. 2.7 schematisch dargestellt ist.



Abbildung 2.7: Schematischer Aufbau des verwendeten Gitter-Ti:Sa-Lasers. Der Resonator in z-Konfiguration besteht aus einem Beugungsgitter (G), einem Auskoppelspiegel (AS) und zwei Hohlspiegeln (HS). Für Details siehe Text.

Durch die Verwendung von Breitbandspiegeln im Resonator und einem Beugungsgitter

(G) als frequenzselektive Komponente ist diese Laserbauform kontinuierlich über den gesamten Bereich von 680–1020 nm durchstimmbar. Das Gitter wird anstelle des hochreflektierenden Endpiegels eingebaut und die erste Beugungsordnung zurück in den Resonator gekoppelt. Aufgrund der Wellenlängenabhängigkeit der Beugung lässt sich somit über den Gitterwinkel jede gewünschte Wellenlänge einstellen. Zusätzlich wird der Laserstrahl in dieser Bauform durch eine Anordnung von Prismen aufgeweitet. Da das Auflösungsvermögen des Gitters mit der Zahl der ausgeleuchteten Gitterstriche skaliert, kann so eine Bandbreite von 1–2,5 GHz erreicht werden. Die Ausgangsleistung ist dabei durch die Beugungseffizienz limitiert und beträgt max. 2 W.

Im Experiment werden mindestens drei Ti:Sa-Laser benötigt, die jeweils auf eine der benötigten Übergangswellenlängen für die Anregungsschritte der Resonanzionisation eingestellt werden. Aufgrund der kurzen Pulslänge von 50 ns müssen die einzelnen Laserstrahlen für die mehrstufige Anregung dabei nicht nur räumlich, sondern auch zeitlich überlagert werden. Für die zeitliche Überlagerung wird mithilfe einer Photodiode das Einschwingverhalten der einzelnen Laser nach einem Pumppuls gemessen und auf einem Oszilloskop dargestellt. Das Einschwingverhalten ist abhängig von der jeweils verwendeten Pumpleistung und der Güte der einzelnen Resonatoren, wobei ein schneller Einschwingvorgang durch eine große Pumpleistung bzw. eine hohe Resonatorgüte erzielt wird. Durch entsprechende Variation der Güte, beispielsweise Justage oder Dejustage der Resonatorspiegel, bzw. durch Variation der Pumpleistung kann folglich der Pulszeitpunkt der einzelnen Laser angepasst werden.

2.2.3 Die Atomstrahlapparatur MABU

Eine weitere wichtige Komponente für jede Laserspektroskopie ist die zu untersuchende Probe, die in gasförmiger Phase vorliegen muss. Dysprosium hat einen hohen Schmelzpunkt von 1412 °C [44], weshalb hohe Temperaturen für eine thermische Evaporation der Probe vonnöten sind. In der Arbeitsgruppe LARISSA steht hierfür die Mainzer-Atomstrahlapparatur MABU zur Verfügung, die in Abb. 2.8 schematisch dargestellt ist. Der ursprüngliche Aufbau der Atomstrahlapparatur wurde im Rahmen einer Dissertation [38] 2010 konzipiert und im Laufe der Jahre weiterentwickelt [40, 41]. Für eine detaillierte Beschreibung des Aufbaus und der Funktion der MABU wird an dieser Stelle auf die genannten Quellen verwiesen, da im Folgenden nur auf die im Rahmen dieser Arbeit relevanten Aspekte eingegangen wird.

Die Ofenregion der MABU besteht aus einem Tantal-Ofenröhrchen, in das die Probe eingebracht wird. Durch resistives Heizen können im Inneren Temperaturen von bis zu 2000°C erreicht werden. Im Fall von Dysprosium liegt die Probe in Nitratlösung vor und wird auf Zirkoniumfolie als Reduktionsmittel aufgedampft, sodass durch die thermische Evaporation ein atomarer Dampf innerhalb des Röhrchens beziehungsweise ein effusiver Atomstrahl vor der Austrittsöffnung entsteht. In dieser Ofenregion können die Atome dann, wie in Abschn. 2.1.3 beschrieben, durch Einstrahlung von Laserstrahlen der entsprechenden Übergangswellenlängen ionisiert werden.

Neben der Erzeugung von atomarem, gasförmigem Dysprosium für die Spektroskopie und der anschließenden Ionisation der Atome ermöglicht die MABU aber auch die Detektion der entstandenen Ionen. Dazu werden die Ionen zunächst aus der Ofenregion extrahiert, mithilfe der Ionenoptik zu einem Strahl geformt und in den Quadrupolablenker fokussiert. Dieser befindet sich hinter der Ionenoptik und dient der Abtrennung neutraler Teilchen vom Ionenstrahl. Während der Quadrupolablenker keinen Einfluss auf neutrale Teilchen hat, werden die Ionen hier um 90° abgelenkt und somit zum Quadrupolmassenfilter geführt. Im Quadrupolmassenfilter werden durch Wahl geeigneter Wechselspannungen im Radiofrequenzbereich nur Ionen mit einem bestimmten Masse-Ladungsverhältnis $\frac{m}{q}$ auf einer stabilen Bahn gehalten, um auf dieser letztendlich den Elektronenvervielfacher zur Detektion zu erreichen.



Abbildung 2.8: Schematische Darstellung der Atomstrahlapparatur MABU. Die innerhalb des Tantal-Ofenröhrchens durch thermische Evaporation entstehenden Dysprosiumatome werden mithilfe der eingestrahlten Laserstrahlen ionisiert. Die erzeugten Ionen werden aus der Ofenregion extrahiert, durch die Ionenoptik zu einem Strahl geformt und in den Quadrupolablenker fokussiert. Während der Quadrupolablenker der Abtrennung neutraler Teilchen dient, garantiert der anschließende Quadrupolmassenfilter eine massenselektive Spektroskopie. Die Ionen werden mittels Elektronenvervielfacher detektiert.

2.2.4 Das Gesamtsystem

Für die Resonanzionisationsspektroskopie an Dysprosium werden die bisher beschriebenen Komponenten zu einem Gesamtsystem kombiniert, das in Abb. 2.9 schematisch dargestellt ist. Zur Realisierung der in Abschn. 2.1.3 beschriebenen dreistufigen Anregung der Atome werden drei Ti:Sa-Laser benötigt, von denen mindestens einer im blauen Frequenzbereich betrieben werden muss, um eine Anregung bis über das erste Ionisationspotential zu ermöglichen. Der blaue Frequenzbereich wird mithilfe von Frequenzverdopplung des fundamentalen Frequenzbereichs erreicht. Dazu wird ein doppelbrechender BBO (Akronym für engl. beta barium borate) Kristall verwendet, in welchem die Phasenanpassung mittels Ausrichtung der optischen Kristallachse relativ zum einfallenden Laserstrahl erzielt wird. Für die dreistufige Anregung stehen innerhalb der AG Larissa zwei Standard-Ti:Sa-Laser und ein Gitter-Ti:Sa-Laser bereit. Für einige der im nachfolgenden Kapitel beschriebenen Messungen wird zusätzlich ein vierter Ti:Sa-Laser benötigt.

Die Laserstrahlen werden zur Spektroskopie über verschiedene optische Elemente bis hin

zur gasförmigen Dysprosiumprobe innerhalb der Atomstrahlapparatur MABU geführt. Die Strahlgröße wird dabei mithilfe der eingezeichneten Teleskope angepasst wobei für die Messungen im Rahmen dieser Arbeit wird ein konstanter Strahldurchmesser von etwa 2 mm gewählt wird.

Zur Messung der Wellenzahl bzw. -länge der einzelnen Laserstrahlen wird ein Teil des Strahls in eine optische Glasfaser gekoppelt und an ein Wellenlängenmessgerät gegeben. Es stehen das Wellenlängenmessgerät WSU- 30^1 (HighFinesse) mit einem absoluten 3σ Messfehler von $30 \text{ MHz} (0,001 \text{ cm}^{-1})$ und das Wellenlängenmessgerät WS6-600 (HighFinesse) mit einem absoluten 3σ Messfehler von $600 \text{ MHz} (0,02 \text{ cm}^{-1})$ zur Verfügung. Während mithilfe des WSU-30 zeitgleich nur Wellenzahl- bzw. länge eines einzelnen Ti:Sa-Laserstrahls gemessen werden kann, ermöglicht das WS6-600 durch einen zusätzlichen schnellen Schalter (Mehrkanaloption des Herstellers) die zeitgleiche Messung von bis zu vier Ti:Sa-Laserstrahlen. Während allen durchgeführten Messungen werden die Wellenzahlen- bzw. längen aller verwendeten Ti:Sa-Laser mithilfe eines LabVIEW-Programms aufgenommen.



Abbildung 2.9: Schematischer Aufbau des Gesamtsystems. Zu sehen sind die einzelnen in Abschnitt 2.2.2 beschriebenen Ti:Sa-Laser, sowie der 532 nm Pumplaser. Zur Ionisation der Dysprosiumatome innerhalb der in Abschnitt 2.2.3 beschriebenen Atomstrahlapparatur MABU werden die Strahlen über verschiedene optische Elemente geführt und gegebenenfalls in ihrer Frequenz verdoppelt (SHG - Akronym für engl. Second harmonic generation). Für die Messung der Wellenzahl bzw. -länge der einzelnen Laser wird ein Teil des Strahls in eine optische Glasfaser gekoppelt und an ein Wellenlängenmessgerät gegeben.

¹mittlerweile unter der Bezeichnung WS7-30 erhältlich

2.3 Experimentelle Ergebnisse der Resonanzionisationsspektroskopie

In diesem Abschnitt werden zunächst zwei Methoden für die erste spektroskopische Untersuchung des 1001 nm Übergangs in Dysprosium vorgestellt und anschließend deren Durchführung beschrieben. Aus den Messresultaten können im Weiteren wichtige Informationen über die Existenz und die Übergangsfrequenz sowie mögliche zweite Anregungsschritte gewonnen werden. Abschließend wird die Messung einer unteren Grenze der Lebensdauer des angeregten Zustands beschrieben. Diese ist entscheidend für die Linienbreite des Übergangs und damit die Durchführbarkeit der geplanten Präzisionsspektroskopie. Da die Lebensdauer bisher nur theoretisch vorhergesagt wurde, ist eine experimentelle Verifizierung hier ebenfalls von großem Interesse.

An dieser Stelle sei auch erwähnt, dass zur Charakterisierung von Übergängen unterschiedliche Größen gebräuchlich sind. Neben der im Allgemeinen verwendeten Übergangsfrequenz des absorbierten bzw. emittierten Photons aus Abschn. 2.1.1 werden Übergänge häufig durch die entsprechende Wellenlänge der zur Spektroskopie benötigten Laserstrahlung charakterisiert. Im Zuge der Resonanzionisationsspektroskopie wird zudem häufig die Wellenzahldifferenz der beteiligten Energieniveaus betrachtet. Eine Umrechnung ist aber teilweise zur Übersicht angegeben und an jeder Stelle mithilfe der einfachen Beziehungen $\nu = c/\lambda$ zwischen Frequenz ν und Wellenlänge λ sowie $K = \frac{k}{2\pi} = 1/\lambda$ zwischen Wellenzahl K und Wellenlänge λ möglich.

Zusätzlich wird die Energie E eines angeregten Zustands im Folgenden als Äquivalent zur Wellenzahldifferenz K der beteiligten Energieniveaus betrachtet, was aus der einfachen Beziehung E = Khc für h = c = 1 folgt. Da diese Betrachtung auch von Datenbanken wie der NIST Datenbank gewählt wird, ermöglicht sie einen einfacheren Vergleich mit den dort gelisteten Energieniveaus. Bei allen Umrechnungen ist c die Lichtgeschwindigkeit und h das Plancksche Wirkungsquantum.

2.3.1 Erstmalige Spektroskopie zur Bestimmung der Übergangsfrequenz

Für die erstmalige Spektroskopie des 1001 nm Übergangs kommen zwei Messmethoden zum Einsatz. Bei der ersten Methode, die im Folgenden als Abregungsmethode bezeichnet wird, wird der Übergang indirekt über stimulierte Emission aus einem höher liegenden Energieniveau nachgewiesen. Das verwendete Anregungsschema ist in Abb. 2.10 (a) schematisch dargestellt. Die Atome werden zunächst über eine dreistufige Anregung, wie in Abschn. 2.1.3 beschrieben, ionisiert. Es kann dann ein konstantes Ionensignal gemessen werden. Ist dies der Fall, wird versucht durch Einstrahlung eines zusätzlichen Abregungsschritts einige Atome im zweiten angeregten Zustand durch stimulierte Emission in das gesuchte Energieniveau zu überführen. Die überführten Atome können dann nicht mehr ionisiert werden. Durch das Durchstimmen der Wellenzahl des Abregungsschritts sollte folglich ein Einbruch im Ionensignal sichtbar sein. Aus den Wellenzahlen der einzelnen Schritte kann anschließend auf die Energie des angeregten Zustands

$$K_{\text{gesucht}} = K_{1. \text{ Schritt}} + K_{2. \text{ Schritt}} - K_{\text{Abregungsschritt}}$$
(2.20)

und damit auf die Übergangsfrequenz geschlossen werden. Diese Methode hat zunächst den Vorteil, dass der schwache 1001 nm Übergang nicht direkt angeregt werden muss und

durch die Verwendung ausschließlich breiter Übergänge ein wesentlich größeres Ionensignal zu erwarten ist. Zusätzlich können aus dem Anregungsschema Informationen über mögliche zweite und dritte Anregungsschritte gewonnen werden, die die direkte Anregung im Anschluss erheblich erleichtern.

Bei der zweiten Methode, die im Folgenden als direkte Anregung bezeichnet wird, wird der Übergang schließlich direkt nachgewiesen. Das verwendete Anregungsschema ist in Abb. 2.10 (b) schematisch dargestellt. Die Atome werden über eine dreistufige Anregung mit dem 1001 nm Übergang im ersten Anregungsschritt ionisiert. Durch das Durchstimmen der Wellenzahl des ersten Schritts sollte ein Peak im Ionensignal sichtbar sein. Die Wellenzahl des Peakmaximums entspricht direkt der Energie des angeregten Zustands

$$K_{\text{gesucht}} = K_{1. \text{ Schritt}}.$$
(2.21)

Diese Methode hat den Vorteil, dass aufgrund der einzelnen Wellenzahlmessung, im Vergleich zur Messung dreier Wellenzahlen bei der indirekten Abregungsmethode, insgesamt ein geringerer relativer Fehler der Energie K_{gesucht} zu erwarten ist.



Abbildung 2.10: Schematische Darstellung der Anregungsschemata für die beiden verwendeten Messmethoden. Die Elektronenkonfiguration des Grundzustands und des gesuchten Energieniveaus mit Wellenzahl K_{gesucht} sind aus [36] entnommen. Für Details bezüglich der Messmethoden siehe Text.

Spektroskopie mithilfe der Abregungsmethode

Eine notwendige Vorbereitung für die Spektroskopie mithilfe der Abregungsmethode ist durch die Entwicklung eines geeigneten Anregungsschemas gegeben. Dabei wird mit der dreistufigen Anregung zur Ionisation der Atome begonnen. Unter der Berücksichtigung der Standardauswahlregeln elektrischer Dipolübergänge [31, S.190] muss bereits hier beachtet werden, dass der zweite angeregte Zustand einen Gesamtdrehimpuls von J=8, 9 oder 10 benötigt, um innerhalb der Auswahlregeln anschließend einen Übergang in den gesuchten angeregten Zustand mit J=9 ermöglichen zu können. Zur Sicherstellung kann beispielsweise ein erster Anregungsschritt mit ebenfalls J=9 gewählt werden. Ein derartiger erster Schritt kann mithilfe der in Datenbanken gelisteten Energieniveaus und Übergängen gefunden werden. Der 741 nm $4f^{10}6s^2({}^5I_8) \rightarrow 4f^9({}^6H^o)5d6s^2({}^5K_9^o)$ Grundzustandsübergang mit einer angegebenen Energie des angeregten Zustands von 13495,932 cm⁻¹ und einem Gesamtdrehimpuls von J=9 [36] stellt also zunächst eine gute Wahl dar. Dieser bietet gegenüber einer direkten Anregung des 1001 nm $4f^{10}6s^2({}^5I_8) \rightarrow 4f^9({}^6H^o)5d6s^2({}^7I_9^o)$ Grundzustandsübergangs den Vorteil, dass aufgrund der wesentlich breiteren Linienbreite von 1,8 kHz [24] und der etwa dreimal größeren, durch den Ti:Sa-Laser zur Verfügung stehenden, Laserleistung ein wesentlich größeres Ionensignal zu erwarten ist. Das zugehörige Anregungsschema wird im Folgenden als Schema A bezeichnet.

Zweite Anregungsschritte können nun ebenfalls innerhalb von Datenbanken gesucht oder alternativ mithilfe der in Abschnitt 2.1.3 beschriebenen nichtresonanten Ionisation innerhalb der Resonanzionisationsspektroskopie experimentell gemessen werden. Eine Messung bietet dabei den Vorteil, dass unabhängig von der Vollständigkeit und Richtigkeit von Datenbanken alle möglichen Übergänge in einem Wellenzahlbereich gefunden werden können. Im Folgenden wird daher zur Wahl des zweiten Anregungsschritts eine Messung durchgeführt. Dabei wird als erster Anregungsschritt die eben gewählte Wellenzahl von 13495,932 cm⁻¹ mithilfe eines Standard Ti:Sa-Lasers eingestrahlt, während der zweite Anregungsschritt in der Wellenzahl mithilfe eines Gitter-Ti:Sa-Lasers durchgestimmt wird. Da hier Wellenzahlen im Bereich von 22700–24900 cm⁻¹ (436,7–401,6 nm) durchgestimmt werden, reicht die Energie des ersten Anregungsschritts zusätzlich zur nichtresonanten Ionisation der Atome aus, wodurch kein separater dritter Schritt notwendig wird. Das heißt, bei dieser Messung fungiert der 13495,932 cm⁻¹ Laserstrahl gleichzeitig als erster und dritter Anregungsschritt. Das resultierende Ionensignal ist in Abb. 2.11 zu sehen.



Abbildung 2.11: Ionensignal resultierend aus der Durchstimmung der Wellenzahl des zweiten Anregungsschritts in Schema A. Ziel ist die Suche nach möglichen Übergängen zur Entwicklung eines Anregungsschemas im Rahmen der Abregungsmethode. Der im Weiteren verwendete Übergang ist mit einem blauen Pfeil markiert.

Jeder Peak entspricht hierbei einem möglichen zweiten Anregungsschritt, der zur Spektroskopie mithilfe der Abregungsmethode genutzt werden kann. Dem für die weiteren Untersuchungen gewählten Übergang mit einer Wellenlänge von 435 nm kann eine Energie des angeregten Zustands von $36490,070 \text{ cm}^{-1}$ und ein Gesamtdrehimpuls von J=8 zugeordnet werden [36]. In dieser Messung konnten über 90 Übergänge aufgenommen werden. Die Übergangswellenzahlen sind im Anhang Tab. A.1 zusammengefasst.

Mit dem bisherigen Anregungsschema kann eine nichtresonante Ionisation realisiert werden. Eine Steigerung der Ionisationseffizienz kann mithilfe der in Abschn. 2.1.3 beschriebenen resonanten Ionisation über einen autoionisierenden Zustand erreicht werden. Dafür muss ein entsprechender dritter Anregungsschritt gefunden werden. Zur Ermittlung eines effizienten ionisierenden Übergangs wird ausgehend von den ersten beiden Anregungsschritten ein separater dritter Anregungsschritt mithilfe eines Gitter-Ti:Sa-Lasers ermittelt. Wird dabei in einen autoionisierenden Zustand angeregt, ist ein Anstieg im Ionensignal sichtbar. Das aus der Messung des für die folgende Spektroskopie verwendeten autoionisierenden Zustands resultierende Ionensignal ist in Abb. 2.12 zu sehen.



Abbildung 2.12: Ionensignal aus der Durchstimmung der Wellenzahl des dritten Anregungsschritts in Schema A im Bereich des verwendeten autoionisierenden Zustands.

Die Wellenzahl des dritten Anregungsschritts wird damit auf $12864, 18 \,\mathrm{cm}^{-1}$ festgesetzt. Das resultierende dreistufige Anregungsschema ist als Schema A in Abb. 2.13 dargestellt. Es ist zu sehen, dass die im Rahmen dieser Arbeit hinsichtlich einer Maximierung des Ionensignals optimalen Wellenzahlen der Energieniveaus etwas von den in der NIST-Datenbank gelisteten Werten abweichen. Eine mögliche Ursache hierfür ist der Umstand, dass die Werte der NIST-Datenbank aus einer Messung des ¹⁶²Dy Isotops resultieren [23], während innerhalb dieser Arbeit zunächst am häufigsten Isotop (¹⁶⁴Dy) gemessen wird. Zudem wurde an dieser Stelle aus Gründen der Übersicht auf die Angabe der Messfehler von jeweils ± 0.02 cm⁻¹ auf den angegebenen Wert verzichtet. Eine Beschreibung der Ermittlung der einzelnen Messwerte und zugehörigen Fehler folgt im Rahmen dieses Abschnitts. In grauer Farbe ist bereits der Abregungsschritt angedeutet. Die angegebene Wellenzahl bzw. -länge für den Übergang in das gesuchte Energieniveau ist mithilfe des existierenden experimentellen Messwerts von $9990.97 \,\mathrm{cm}^{-1}$ abgeschätzt und dient als Startwert für die nachfolgende Untersuchung. Zur Überprüfung der Konsistenz der durchgeführten Messungen werden zur Spektroskopie mithilfe der Abregungsmethode neben dem Schema A zwei weitere Schemata verwendet, die als Schema B und C ebenfalls dargestellt sind. Da die nachfolgende spektroskopische Untersuchung an allen Schemata identisch durchgeführt wird, ist im Weiteren nur die Messung anhand Schema A ausführlich beschrieben und ansonsten auf Anh. A.1 verwiesen.



Abbildung 2.13: Mögliche Anregungsschemata A, B und C für eine Spektroskopie mithilfe der Abregungsmethode. Die angegebenen Wellenzahlen bzw. Wellenlängen resultieren aus den Messungen im Rahmen dieser Arbeit. Die Elektronenkonfigurationen bzw. die Einstein A-Koeffizient sind, falls bekannt, aus den Datenbanken [36] bzw. [47] entnommen. Ebenso ist kursiv für jedes Energieniveau die in der Datenbank angegebene Wellenzahl zu finden.

Als letzter Vorbereitungsschritt werden die genauen Wellenzahlen der ersten beiden Anregungsschritte des entwickelten Schemas experimentell bestimmt. Diese werden nachfolgend zur Ermittlung der Wellenzahl K_{gesucht} , des gesuchten Energieniveaus nach Gl. 2.20, benötigt. Für die experimentelle Bestimmung wird das Linienprofil des jeweiligen Anregungsschritts durch Durchstimmung der Wellenzahl aufgenommen. Um dabei eine möglichst hohe Genauigkeit zu erzielen, werden die Messungen jeweils für drei unterschiedliche Laserleistungen, das heißt für drei unterschiedliche Sättigungsintensitäten, durchgeführt. Abbildung 2.14 zeigt die resultierenden Linienprofile. Jeder dargestellte Datenpunkt entspricht dem Mittelwert aller gemessenen Datenpunkte in einem festen Wellenzahlintervall. Als Fehler der Zählrate wird dann der Fehler des Mittelwerts σ/\sqrt{N} mit σ der Standardabweichung und N der Anzahl an Datenpunkten im entsprechenden Wellenzahlintervall angenommen [45]. Für die Wellenzahl wird zunächst kein Fehler berücksichtigt. Der aus der Messung der Wellenzahl resultierende absolute Fehler ist nur vom verwendeten Wellenlängenmessgerät abhängig und kann daher zu einem späteren Zeitpunkt hinzugerechnet werden.



Abbildung 2.14: Linienprofil der ersten beiden Anregungsschritte aus Schema A für jeweils drei verschiedene Laserleistungen. Für Details siehe Text.

Aufgrund der dominierenden Dopplerverbreiterung von Spektrallinien heißer Atome kann für einen Fit der für kleine Laserleistungen gemessenen Linienprofile ein Gaußprofil nach Gl. 2.10 verwendet werden. Bei großen Laserleistungen ist aufgrund der zunehmenden Sättigungsverbreiterung ein Plateau im Linienprofil zu erkennen. Für einen Fit kann hier ein sättigungsverbreitertes Linienprofil nach Gl. 2.13 verwendet werden, wobei der Sättigungsparameter $S_{\text{Laser}}(\omega)$ aufgrund der großen Laserlinienbreite als $S_{\text{Laser}}(\omega) \approx$ $I_{\text{Laser}}(\omega)$ angenommen wird. Die spektrale Verteilung des verwendeten Lasers $I_{\text{Laser}}(\omega)$ wird durch ein Gauß-Profil genähert [34]. Aus dem jeweiligen Fit resultiert die Mittenfrequenz und damit die gesuchte Wellenzahl als Fitparamter. Für jeden Anregungsschritt werden die erhaltenen Fitwerte für die drei unterschiedlichen Laserleistungen anschließend gemittelt und der Fehler mithilfe der Gaußschen-Fehlerfortpflanzung ermittelt. Auf den Fehler wird abschließend der aus der Messung der Wellenzahl resultierende absolute Fehler des verwendeten Wellenlängenmessgeräts addiert. Für das hier verwendete Wellenlängenmessgerät WS6-600 (HighFinesse) ist ein absoluter 3σ Fehler von 600 MHz, das heißt 0,02 cm⁻¹, angegeben. Es ergibt sich:

$$K_{1. \text{ Schritt}_A} = (13495,96 \pm 0,02) \text{ cm}^{-1}$$

 $K_{2. \text{ Schritt}_A} = (22994,10 \pm 0,02) \text{ cm}^{-1}.$

An dieser Stelle zeigt sich, dass der Fitfehler gegen den Fehler der Wellenzahlmessung vernachlässigbar klein ist. Damit sind die Vorbereitungsmessungen zur Spektroskopie mithilfe der Abregungsmethode abgeschlossen.

Im Weiteren wird der zusätzliche Abregungsschritt eingestrahlt. Für die erste Suche des Übergangs wird die Wellenzahl des Abregungsschritts um den Start- bzw. NIST-Wert im Bereich von $26400-26600 \text{ cm}^{-1}$ (378,9–375,9 nm) durchgestimmt. Das nichtresonant gemessene Ionensignal ist in Abb. 2.15 zu sehen und zeigt im durchgestimmten Bereich sowohl mehrere Signalspitzen als auch -einbrüche. Zudem ist ein nicht konstanter Unter-

grund zu erkennen, der auf Leistungsschwankungen des frequenzverdoppelten Laserstrahls des Abregungsschritts zurückzuführen ist. Da die Frequenzverdopplung, wie in Abschn. 2.2.4 beschrieben, mithilfe eines doppelbrechenden BBO-Kristalls durchgeführt wird, ist zur Phasenanpassung eine optimale Ausrichtung der optischen Kristallachse zum einfallenden Laserstrahl notwendig. Da der optimale Ausrichtungswinkel zudem von der eingestrahlten Laserfrequenz abhängt, muss der Kristallwinkel während der Durchstimmung nachjustiert werden. Da dies per Hand durch einfache Justage der entsprechenden Stellschraube realisiert wird, ist der Winkel nicht zu jedem Zeitpunkt ideal eingestellt, wodurch die Effizienz der Konversion und damit die Leistung des Abregungsschritts schwankt.



Abbildung 2.15: Ionensignal resultierend aus der Durchstimmung der Wellenzahl des Abregungsschritts. (a) zeigt die Durchstimmung in einem großen Wellenzahlbereich. Mit einem schwarzen Pfeil sind Einbrüche markiert, die mithilfe der Übergänge in Datenbanken interpretiert werden konnten. Mit einem blauen Pfeil ist der gesuchte Einbruch, resultierend aus dem Übergang einiger Atome in das gesuchte Energieniveau, markiert. Der blau gekennzeichnete Bereich um den gesuchten Einbruch entspricht dem in (b) gezeigten Bereich.

Ein Peak im Ionensignal kann als Folge einer Anregung in einen autoionisierenden Zustand durch den eigentlichen Abregungsschritt interpretiert werden. Dadurch steht ein zusätzlicher Kanal zur Ionisation zur Verfügung und das Signal nimmt zu. Ein Einbruch im Ionensignal kann aus der Anregung in einen alternativen, zweiten angeregten Zustand durch den eigentlichen Abregungsschritt resultieren. Ist die nichtresonante Ionisation für den alternativen Schritt weniger effizient, nimmt das Signal ab. So kann der Einbruch bei einer Wellenzahl von 26413 cm⁻¹ als alternativer Anregungsschritt in das Energieniveau mit 39909,55 cm⁻¹ [36] und der Einbruch bei einer Wellenzahl von 26510 cm⁻¹ als alternativer Anregungsschritt in das Energieniveau mit 40005,82 cm⁻¹ [36] interpretiert werden. Des Weiteren kann ein Einbruch im Ionensignal ebenfalls durch den Übergang einiger Atome in einen energetisch tieferen Zustand entstehen. Die Atome können dann nicht mehr ionisiert werden und das Signal sinkt. Insbesondere im durchgestimmten Wellenzahlbereich kommt hierfür ein Übergang in das gesuchte Energieniveau 4f⁹(⁶H^o)5d6s²(⁷I₉) mit $K_{gesucht}$ in Frage. Nach Ausschluss der zuvor bereits interpretierten Einbrüche verbleibt ein Einbruch nahe des Startwerts, der diesem Übergang zugeordnet wird. Zur Verifizierung dieser Zuordnung muss die Messung an weiteren Anregungsschemata durchgeführt werden. Damit kann beispielsweise ausgeschlossen werden, dass der Einbruch ähnlich wie einige der Einbrüche in Abb. 2.15 (a) aus einem vom Anregungsschema abhängigen alternativen zweiten Anregungsschritt resultiert. Die in Anh. A.1 präsentierte Spektroskopie mithilfe der Abregungsmethode an den Schemata B und C bestätigen die Korrektheit der Zuordnung. Letztendlich verbleibt ein Einbruch bei einer Wellenzahl von 26567 cm⁻¹, der keinem der in den Datenbanken gelisteten Übergängen zugeordnet werden kann. Zur Ermittlung der Energie $K_{\rm Abregungsschritt}$ wird nachfolgend der Abregungsschritt in einem kleineren Wellenzahlbereich durchgestimmt. Das resultierende Ionensignal ist in Abb.2.15 (b) zu sehen. Für einen Fit wird erneut ein Gaußprofil verwendet. Die Wellenzahl des Abregungsschritts resultiert dabei als Fitparameter. Auf den zugehörigen Fitfehler wird analog zur vorherigen Ermittlung der Wellenzahl des ersten und zweiten Schritts der absolute Fehler der Wellenzahlmessung addiert und es folgt:

$$K_{\text{Abregungsschritt}_{A}} = (26499,01 \pm 0,05) \text{ cm}^{-1}.$$

Damit ergibt sich nach Gl. 2.20 für die Energie des gesuchten angeregten Zustands:

$$K_{\text{gesucht}_{A}} = (9991,05 \pm 0,05) \,\mathrm{cm}^{-1}$$

Ein Vergleich der Messresultate, der an den Schemata A, B und C durchgeführten Abregungssmethode, ist zusammen mit den im Folgenden präsentierten Messresultaten der direkten Anregung am Ende dieses Abschnitts zu finden.

Spektroskopie mithilfe der direkten Anregung

Nachdem der 1001 nm Übergang im vorherigen Abschnitt indirekt über einen höher liegenden, angeregten Zustand nachgewiesen wurde, soll innerhalb dieses Abschnitts eine direkte Anregung realisiert werden. Diese soll zudem eine möglichst genaue Bestimmung der Übergangsfrequenz ermöglichen. Die Atome werden dafür über ein dreistufiges Anregungsschema mit dem 1001 nm Übergang im ersten Anregungsschritt ionisiert. Aufgrund der vorausgegangenen Messung ist ein möglicher zweiter Anregungsschritt in Form des vorigen Abregungsschritts dabei bereits mit Sicherheit bekannt. Der dritte Anregungsschritt kann dann identisch zur vorausgegangenen Messung gewählt werden. Das erhaltene Anregungsschema ist in Abb. 2.16 (a) zu sehen.

Die Wellenzahl des ersten Schritts wird nun durchgestimmt. Ist dabei ein Anstieg im Ionensignal zu beobachten, ist die direkte Anregung erfolgreich. Da die Datenaufnahme durch das verwendete LabVIEW-Programm für Wellenzahl und Ionenzählrate nicht exakt synchronisiert ist, tritt eine geringe Abhängigkeit der Peakposition von Richtung und Geschwindigkeit der Durchstimmung auf. Während diese im Rahmen der Abregungsmethode aufgrund des insgesamt größeren Messfehlers vernachlässigbar klein ist, ist im Rahmen der Spektroskopie mithilfe der direkten Anregung eine Korrektur notwendig. Zur Kompensation der systematischen Ungenauigkeit wird daher im Folgenden bei gleicher Durchstimmgeschwindigkeit die Messung einmal durch Auf- und einmal durch Abwärtsdurchstimmung der Wellenzahl durchgeführt. Die resultierende Peakposition wird anschließend gemittelt und der Fehler mithilfe der Gaußschen-Fehlerfortpflanzung berechnet. Die gemessenen Ionensignale sind in Abb.2.16 (b) zu sehen. Der konstante Untergrund resultiert aus der, von der eingestrahlten Wellenzahl des ersten Schritts unabhängigen, thermischen Anregung des gesuchten Energieniveaus innerhalb des heißen Atomisators bei etwa 1400 °C. Für einen Fit wird aufgrund der dominierenden Dopplerverbreiterung bzw. der spektralen Verteilung des Lasers erneut ein Gauß-Profil nach Gl. 2.10 verwendet. Die Wellenzahl des ersten Anregungsschritts $K_{1. \text{ Schritt}}$ resultiert dabei als Fitparameter und entspricht nach Gl. 2.21 der gesuchten Wellenzahl K_{gesucht} . Der Fehler wird analog zum vorherigen Abschnitt aus der Addition von Fitfehler und absolutem Fehler der Wellenzahlmessung gewonnen. An dieser Stelle wird das Wellenlängenmessgerät WSU-30 der Firma High-Finesse verwendet. Der absolute 3σ Fehler wird vom Hersteller als 30 MHz, das heißt 0,001 cm⁻¹ angegeben. Aufgrund des geringeren absoluten Fehlers kann eine größere Genauigkeit des Messresultats erzielt werden. Es ergibt sich als Mittelwert aus Auf- und Abwärtsdurchstimmung:

$$K_{\text{gesucht}_{WSU1}} = (9991,001 \pm 0,005) \,\mathrm{cm}^{-1}.$$



Abbildung 2.16: (a) zeigt das Anregungsschema für die durchgeführte direkte Anregung des 1001 nm Übergangs. (b) zeigt das Linienprofil des 1001 nm Übergangs resultierend aus der Auf- bzw. Abwärtsdurchstimmung der Wellenzahl. Für die Wellenzahlmessung wird hier das Wellenlängenmessgerät WSU verwendet.

Aufgrund der großen absoluten Genauigkeit wird diese Messung für die anschließende Ermittlung der Übergangsfrequenz genutzt. Um dafür eine Statistik zu erhalten, wird die Messung weitere vier Male unter ähnlichen Bedingungen durchgeführt. Die gemessenen Spektren sind in Abb. A.3 im Anhang zu finden ist. Zur Überprüfung der Übereinstimmung der beiden verwendeten Wellenlängenmessgeräten wird für die direkte Anregung ebenfalls eine Messung mithilfe des Wellenlängenmessgerätes WS6-600 durchgeführt. Diese ist ebenfalls in Anh. A.2 zu finden. Ein Vergleich findet im Rahmen des nachfolgenden Abschnitts statt.

Alle bisherigen Messungen wurden am 164 Dy Isotop durchgeführt und sollen für dieses Isotop die spätere Detektion und Messung des 1001 nm Übergangs in kalten Atomen
ermöglichen. Um ausgehend davon auch eine Messung aller anderen stabilen Dysprosiumisotope zu ermöglichen, wird mithilfe der direkten Anregung die in Abschn. 2.1.2 beschriebene Isotopieverschiebung bestimmt. Dafür wird zunächst für jedes Isotop, durch Durchstimmen der Wellenzahl des ersten Anregungsschritts, das Linienprofil gemessen und daraus die Übergangsfrequenz bestimmt. Anschließend wird der Frequenzunterschied zur Übergangsfrequenz des ¹⁶⁴Dy Isotops ermittelt. Dieser Frequenzunterschied entspricht nach Abschn. 2.1.2 der Isotopieverschiebung. Die gemessenen Ionensignale sind in 2.17 zu sehen.



Abbildung 2.17: Linienprofil des 1001 nm Übergangs für alle stabilen Dysprosiumisotope. Die Frequenzen sind dabei relativ zur Übergangsfrequenz des ¹⁶⁴Dy Isotops angegeben. Der konstante Untergrund resultiert aus der thermischen Anregung des 9991 cm⁻¹ Niveaus und wird daher, wie das Peakmaximum, durch das Isotopenverhältnis bestimmt.

Um für eine bessere Übersicht alle Isotope innerhalb eines Graphen darstellen zu können wird an dieser Stelle eine logarithmische Skala gewählt und auf Fehlerbalken verzichtet. Für die Ermittlung der Übergangsfrequenzen werden die Linienprofile der Isotope jedoch einzeln betrachtet und analog zur vorherigen direkten Anregung des ¹⁶⁴Dv Isotops mit zugehörigem Fehler ausgewertet. Die entsprechenden Einzelgraphen sind in Anh. A.2 mit Fehlerbalken und durchgeführten Fits zu finden. In Tab. A.5 sind zusätzlich die aus den Fits resultierenden absoluten Übergangsfrequenzen sowie entsprechende Umrechnungen aufgelistet. Aus den absoluten Übergangsfrequenzen kann nun die Isotopieverschiebung berechnet werden. Da dabei nur relative Frequenzwerte betrachtet werden, muss an dieser Stelle kein absoluter Fehler durch die Wellenzahl- bzw. Frequenzmessung beachtet werden. Es sei aber erwähnt dass während der Messung Drifts im Wellenlängenmessgerät auch das relative Ergebnis beeinflussen können. Diese wurden über eine Langzeitmessung charakterisiert und auf $< 5 \,\mathrm{MHz}$ für den Messzeitraum abgeschätzt. Die Messung ist in Anh. A.3 zu finden. Der Fehler der berechneten Isotopieverschiebung wird mithilfe der Gaußschen-Fehlerfortpflanzung aus den Fitfehlern ermittelt. Tabelle 2.1 zeigt die daraus resultierende Verschiebung.

Tabelle 2.1: Isotopieverschiebung $\delta \nu$ [MHz] des 1001 nm Übergangs. Alle Frequenzen sind relativ zur Übergangsfrequenz des ¹⁶⁴Dy Isotops angegeben.

$\delta \nu_{164-163}$	$\delta \nu_{164-162}$	$\delta \nu_{164-161}$	$\delta \nu_{164-160}$	$\delta \nu_{164-158}$	$\delta \nu_{164-156}$
-907 ± 6	-1233 ± 5	-2337 ± 7	-2566 ± 6	-3685 ± 15	-5976 ± 9

Da der 1001 nm Übergang vor dieser Arbeit nie direkt laserspektroskopisch angeregt wurde, stellt dies die erste Messung der Isotopieverschiebung für diesen Übergang dar.

Vergleich der Spektroskopieresultate

Im Folgenden sollen alle Messresultate für die Energie des gesuchten angeregten Zustands verglichen werden, um abschließend eine Überprüfung der Konsistenz sowie die möglichst genaue Ermittlung der Übergangsfrequenz bzw. Wellenlänge des 1001 nm Übergangs zu ermöglichen. Eine graphische Übersicht über alle gemessenen Wellenzahlen ist in Abb. 2.18 zu finden. Die Messresultate der Abregungsmessung sind hierbei nach dem jeweils verwendeten Anregungsschema bezeichnet. Zur Unterscheidung der Resultate der direkten Anregung ist das verwendete Wellenlängenmessgerät angegeben. WSU₁₋₅ bezeichnet dabei die wiederholte Messung des Linienprofils des ¹⁶⁴Dy Isotops und WSU_{Iso} den zusätzlich aus der Messung der Isotopieverschiebung erhaltenen Messwert. Zudem als NIST-Wert eingezeichnet ist der in Abschn. 2.5 beschriebene, bereits zuvor existierende experimentelle Messung des ¹⁶²Dy Isotops resultiert, wurde mithilfe der gemessenen Isotopieverschiebung in Tab. 2.1 auf einen Wert für ¹⁶⁴Dy umgerechnet.



Abbildung 2.18: Zusammenfassung aller Messresultate für das gesuchte Energieniveau K_{gesucht} resultierend aus den verschiedenen Spektroskopiemethoden. Zusätzlich eingezeichnet ist der angepassten NIST-Wert. Für Details siehe Text.

In Tab. 2.2 sind zur Übersicht alle Wellenzahlen mit entsprechenden Umrechnungen zu finden. Es ist zu sehen, dass die Messresultate teilweise auch innerhalb der Fehlerabweichung nicht miteinander und dem NIST-Wert übereinstimmen. Denkbare Ursache ist hierfür der Umstand, dass die verwendeten absoluten Fehler der Wellenzahl- bzw. Wellenlängenmessung vom Hersteller nur in einem Wellenlängenbereich von ± 200 nm um die Kalibrierwellenlänge garantiert werden. Da zur Kalibrierung ein HeNe-Laser mit 632 nm Wellenlänge verwendet wurde, liegen die hier gemessenen Wellenlängen teilweise außerhalb dieses Bereichs und können daher größere absolute Fehler aufweisen. Speziell für die Messungen mit dem WS6-600 kommt hinzu, dass zwischen der Messung an Schema C und den Messungen an Schema A,B und der direkten Anregung mehrere Messtage liegen, das Messgerät aber nur zu Beginn der Messungen kalibriert wurde. Auch hieraus kann ein größerer absoluter Fehler für die Wellenzahlmessung resultieren.

Tabelle 2.2: Übersicht aller im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Wellenzahlen für den angeregten Zustand des 1001 nm Übergangs in ¹⁶⁴Dy. Zusätzlich sind die entsprechenden Umrechnungen in Wellenlänge und Übergrangsfrequenz sowie der angepasste NIST-Wert [36] angegeben.

	Übergangsfrequenz [THz]	Wellenlänge [nm]	Wellenzahl $[\rm cm^{-1}]$
NIST-Wert	$299,\!5230\pm0,\!0003$	$1000{,}900 \pm 0{,}001$	$9991,\!01 \pm 0,\!01$
Abregungsschema A	$299{,}524 \pm 0{,}002$	$1000,\!896\pm0,\!005$	$9991,\!05 \pm 0,\!05$
Abregungsschema B	$299{,}525 \pm 0{,}002$	$1000{,}893 \pm 0{,}006$	$9991,\!08 \pm 0,\!06$
Abregungsschema C	$299{,}521 \pm 0{,}002$	$1000{,}907 \pm 0{,}005$	$9990,\!94 \pm 0,\!05$
direkt - WS6	$299{,}525 \pm 0{,}001$	$1000,\!894\pm0,\!002$	$9991,\!07 \pm 0,\!02$
direkt - WSU_1	$299,\!5227 \pm 0,\!0001$	$1000,\!9009\pm0,\!0002$	$9991,\!001\pm0,\!002$
direkt - WSU_2	$299{,}5226 \pm 0{,}0001$	$1000,\!9009\pm0,\!0003$	$9990,\!999\pm0,\!003$
direkt - WSU_3	$299{,}5223 \pm 0{,}0002$	$1000,\!9021\pm0,\!0004$	$9990,\!987 \pm 0,\!004$
direkt - WSU_4	$299,\!5223 \pm 0,\!0002$	$1000{,}9020 \pm 0{,}0004$	$9990,\!988 \pm 0,\!004$
direkt - WSU_5	$299{,}5300 \pm 0{,}0001$	$1000,\!8995\pm0,\!0003$	$9991,\!013\pm0,\!003$
Isotope - $\mathrm{WSU}_\mathrm{Iso}$	$299{,}52282 \pm 0{,}00003$	$1000,\!9002\pm0,\!0001$	$9991,\!006 \pm 0,\!001$

Da in jedem Fall aus dem geringeren absoluten Fehler des WSU-30 eine höhere Genauigkeit resultiert, wird mithilfe dieser Messwerte ein abschließender Wert für Wellenzahl K, Wellenlänge λ und Übergangsfrequenz ν des 1001 nm Übergangs ermittelt. Dazu wird der gewichtete Mittelwert aller WSU Messungen gebildet und der Fehler mithilfe der Gaußschen Fehlerfortpflanzung berechnet. Es ergibt sich für ¹⁶⁴Dy:

$$\overline{K}_{\text{gesucht}} = (9991,004 \pm 0,001) \,\text{cm}^{-1}$$
$$\overline{\lambda}_{\text{gesucht}} = (1000,9005 \pm 0,0001) \,\text{nm}$$
$$\overline{\nu}_{\text{gesucht}} = (299,52464 \pm 0,00005) \,\text{THz}$$

2.3.2 Ermittlung potentieller zweiter Anregungsschritte

Im Hinblick auf die geplante Fluoreszenzspektroskopie an kalten Atomen ist neben der Sicherstellung der Existenz und genauen Kenntnis der Übergangsfrequenz des 1001 nm Übergangs die Gewährleistung eines zur Messung ausreichend großen Fluoreszenzsignals unabdingbar. Problematisch ist dabei der Umstand, dass, aufgrund der nach Gl. 2.13 limitierten maximalen Streurate von $\Gamma/2$, das Fluoreszenzsignal bei der Untersuchung ultraschmaler Übergänge als sehr gering zu erwarten ist. Eine mögliche Lösung bietet hier eine zweistufige Fluoreszenzspektroskopie am ultraschmalen 1001 nm Übergang im ersten Anregungsschritt und einem wesentlich breiteren Übergang beliebiger Wellenlänge im zweiten Anregungsschritt. Dabei wird das Fluoreszenzsignal des zweiten Anregungsschritts gemessen, das aufgrund der wesentlich größeren Linienbreite deutlich größer zu erwarten ist. Im Folgenden sollen daher potentielle zweite Anregungsschritte mithilfe der Resonanzionisationsspektroskopie gefunden werden.

Ein wichtiges Kriterium bei der Auswahl geeigneter Übergänge aus den Datenbanken ist eine anschließend möglichst einfache und kostengünstige Realisierung. Diese ist vor allem für zweite Anregungsschritte gegeben, deren Wellenlängen in Form von Laserdioden käuflich zum Erwerb bereitstehen. Mithilfe von kommerziellen Blu-Ray Laserdioden können dabei beispielsweise Wellenlängen im Bereich um (400 ± 5) nm mit großen Ausgangsleistungen bis zu 1 W abgedeckt werden. Als potentielle Kandidaten im blauen Frequenzbereich werden daher im Rahmen dieser Arbeit der in der Datenbank [47] gelistete 394 nm, 403 nm und 405 nm Übergang ausgewählt und im Weiteren hinsichtlich Übergangsfrequenz bzw. Wellenlänge und Sättigungsverhalten bzw. Linienbreite untersucht. Das jeweils resultierende dreistufige Anregungsschema zur Ionisation der Atome ist in Abb. 2.19 dargestellt.



Abbildung 2.19: Anregungsschemata zur Messung potentieller zweiter Anregungsschritte für die zweistufige Fluoreszenzspektroskopie. Die angegebenen Wellenzahlen bzw. Wellenlängen resultieren aus den Messungen im Rahmen dieser Arbeit. Die Elektronenkonfigurationen bzw. die Einstein A-Koeffizienten sind, falls bekannt, aus den Datenbanken [36] bzw. [47] entnommen. Ebenso ist kursiv für jedes Energieniveau die in der Datenbank angegebene Wellenzahl zu finden. Zur Bestimmung der Übergangsfrequenz bzw. Wellenlänge wird das Linienprofil des Übergangs für drei verschiedene Laserleistungen gemessen und analog zu Abschn. 2.3.1 ausgewertet. Die gemessenen Linienprofile sind in Abb. 2.20 (a), (b) und (c) dargestellt. Die resultierenden Wellenzahlen sind mit einer entsprechenden Umrechnung in Übergangsfrequenz und Wellenlänge in Tab. 2.3 zu finden.



Abbildung 2.20: (a), (b) und (c) zeigen die Linienprofile der gemessenen potentiellen zweiten Anregungsschritte im blauen Frequenzbereich für je drei verschiedene Laserleistungen. (d) zeigt das jeweilige Sättigungsverhalten der gemessenen Anregungsschritte.

Zur Untersuchung des Sättigungsverhaltens wird für jeden Übergang die Ionenzählrate gegen die eingestrahlte Laserleistung gemessen. Zur Leistungsmessung wird der Sensor S142 der Firma Thorlabs verwendet, der mithilfe des Leistungsmessgeräts PM 100A der Firma Thorlabs ausgelesen wird. Für den Sensor gibt der Hersteller einen Fehler von 5% auf den angezeigten Wert an. Dagegen kann die Messungenauigkeit des Leistungsmessgeräts vernachlässigt werden. Das aus der jeweiligen Variation der eingestrahlten Laserleistung resultierende Ionensignal ist in Abb. 2.20 (b) zu sehen. Für einen Fit kann eine Sättigungskurve der Form

$$W(P) = A \frac{P/P_0}{1 + P/P_0} + m \cdot P + W_0$$

verwendet werden [38]. Der erste Term beschreibt hierbei die Sättigung eines resonanten Übergangs, die proportional zur Besetzung des angeregten Zustands nach Gl. 2.13 ist. Der lineare Term berücksichtigt die nichtresonante Ionisation und W_0 einen konstanten Untergrund. Die Sättigung wird in Abhängigkeit der eingestrahlten Laserleistung P ermittelt und bei der Leistung P_0 erreicht. An dieser Stelle sei erwähnt, dass das Sättigungsverhalten des zweiten Übergangs innerhalb der Resonanzionisationsspektroskopie nicht unabhängig vom gewählten Anregungsschema ist. Das heißt, dass mithilfe der gemessenen Sättigungskurven keine direkte Charakterisierung des Übergangs hinsichtlich Sättigungsintensität und natürlicher Linienbreite möglich ist. Dennoch bietet vor allem die Anfangssteigung der Kurven einen guten Ausgangspunkt für einen Vergleich der Übergänge untereinander. Dabei gilt: Je größer die Steigung der Kurve, desto weniger Intensität wird zur Sättigung benötigt und desto größer ist die Linienbreite des Übergangs. In Tab. 2.3 sind daher zum Vergleich die aus dem Fit in Form von $1/P_0$ resultierenden Anfangssteigungen der jeweils gemessenen Sättigungskurve dargestellt. Es ist zu sehen, dass unter den hier untersuchten Übergängen die Steigung des 403 nm Übergangs am größten ist. Im Hinblick auf die geplante zweistufige Fluoreszenzspektroskopie ist für diesen Übergang folglich das größte Fluoreszenzsignal zu erwarten.

Tabelle 2.3: Übersicht der Übergangsfrequenzen der gemessenen potentiellen zweiten Anregungsschritte für eine zweistufige Fluoreszenzspektroskopie mit Umrechnung in Wellenzahl und Wellenlänge. Zusätzlich ist die jeweils gemessene Sättigungsleistung eingetragen.

Übergangsfrequenz [THz]	Wellenlänge [nm]	Wellenzahl $[\rm cm^{-1}]$	$1/P_0 \ [1/\mathrm{mW}]$
$761,\!6454\pm0,\!0007$	$393{,}6116 \pm 0{,}0003$	$25405{,}76\pm0{,}02$	$0,\!037\pm0,\!005$
$744{,}6336 \pm 0{,}0006$	$402{,}6040\pm0{,}0003$	$24838{,}30\pm0{,}02$	$0{,}17\pm0{,}02$
$740,\!4352\pm0,\!0006$	$404,\!8868\pm0,\!0003$	$24698{,}26\pm0{,}02$	$0{,}041\pm0{,}008$
$390{,}9433 \pm 0{,}0007$	$766,\!844\pm0,\!001$	$13040{,}47 \pm 0{,}02$	_

Abschließend wird die Suche nach potentiellen zweiten Anregungsschritten auf den nahinfraroten Frequenzbereich erweitert. Dafür wird im zweiten Schritt eine Anregung in das Energieniveau $4f^{9}(^{6}\text{H}^{o})5d6s6p(^{3}\text{P}_{0}^{o})$ mit $K = 23031,46 \text{ cm}^{-1}$ [36] realisiert. Das resultierende Anregungsschema ist in Abb. 2.19 dargestellt. Analog zu den Messungen im blauen Frequenzbereich wird hierbei die Übergangsfrequenz bzw. Wellenlänge sowie das Sättigungsverhalten des Übergangs untersucht. Das jeweils gemessene Ionensignal ist in Abb. 2.21 (a) bzw. 2.21 (b) zu sehen. Die als Fitparameter erhaltene Wellenzahl ist mit Umrechnungen in Tab. 2.3 abgebildet. Es ist zu erkennen, dass der Übergang mit der zur Verfügung stehenden maximalen Leistung nicht gesättigt werden kann. Offensichtlich ist dieser weniger breit als die zuvor gemessenen Übergänge im blauen Frequenzbereich. Ein weiterer Nachteil des roten Frequenzbereichs ist der Umstand, dass für diesen die Reflektivität der Fenster der Vakuumkammer, innerhalb der die kalten Atome für die Spektroskopie zur Verfügung stehen, ein Maximum aufweist. Trotzdem bietet dieser Übergang einen guten Ausgangspunkt für einen ersten Test der zweistufigen Fluoreszenzspektroskopie, da eine entsprechende Laserdiode innerhalb der AG Windpassinger bereits zur Verfügung steht. Zur Optimierung des Fluoreszenzsignals sollte aber langfristig ein breiter Übergang im blauen Frequenzbereich gewählt werden.



Abbildung 2.21: (a) zeigt das Linienprofil des gemessenen potentiellen zweiten Anregungsschritts im nah-infraroten Frequenzbereich für drei verschiedene Laserleistungen. (b) zeigt das Sättigungsverhalten des gemessenen Anregungsschritts.

2.3.3 Messung einer unteren Grenze der Lebensdauer

Für die benötigte Präzision der Fluoreszenzspektroskopie [16] ist unter anderem die große Lebensdauer und damit ultraschmale Linienbreite des 1001 nm Übergangs entscheidend. Da diese bisher nur theoretisch vorhergesagt wurde, ist eine experimentelle Verifizierung von großem Interesse. Im Folgenden soll daher eine erste Messung der Lebensdauer unternommen werden. Dazu wird der erste Anregungsschritt in Form des 1001 nm Übergangs schrittweise zeitlich gegen den zweiten und dritten Anregungsschritt verzögert. Zu jedem Verzögerungsschritt wird dabei das Ionensignal N gemessen.

Zur einfachen Realisierung der notwendigen zeitlichen Verzögerung werden an dieser Stelle zwei Pumplaser verwendet, von denen einer für den Gitter-Ti:Sa-Laser des ersten Anregungsschritts und der zweite für alle anderen Ti:Sa-Laser genutzt wird. Aus der zeitlichen Verzögerung der Pumppulse resultiert dann die gewünschte Verzögerung des ersten Anregungsschritts. Da das Ionensignal während dieser Messung nicht automatisch aufgenommen sondern für jeden eingestellten Verzögerungsschritt abgelesen und notiert wurde, ergibt sich eine größere Messdauer im Vergleich zu den vorausgegangenen Messungen. Während der Messdauer war zu beobachten, dass das Ionensignal auch ohne Änderung der Zeitstruktur nicht konstant ist, weshalb zusätzlich nach jedem Verzögerungsschritt das maximale Ionensignal $N_{\rm max}$, also das Signal ohne Verzögerung, gemessen wird. Zur Auswertung wird anschließend der Quotient aus Ionensignal und maximalem Ionensignal $N/N_{\rm max}$ betrachtet. Zur Bestimmung der Ausgangseinstellung, also der Einstellung ohne zeitliche Verzögerung, wird das Einschwingverhalten der einzelnen Laser, wie in Abschn. 2.2.2 beschrieben, auf einem Oszilloskop betrachtet und die Verzögerung der Pumppulse so eingestellt, dass alle Signale kongruent sind. Da diese Einstellung nicht exakt ist, wird der Fehler der zeitlichen Verzögerung als halbe Pulsbreite, also 25 ns, festgelegt. Des Weiteren wird die Ionenzählrate für diese Messung zu jedem Verzögerungsschritt einzeln abgelesen. Aufgrund des zeitlich fluktuierenden Signals wird hierbei ein Fehler von 5% des abgelesenen Werts angenommen. Das resultierende Signal für die Lebensdauermessung des 1001 nm Übergangs ist mit Fehlerbalken in Abb. 2.22 (a) zu sehen. Für einen Fit kann ein exponentieller Abfall nach Gl. 2.5 verwendet werden. Die Lebensdauer resultiert dabei als Fitparameter. Es ergibt sich $\tau_{1001} = (2,9 \pm 0,1) \,\mu$ s. Die experimentell gemessene Lebensdauer liegt also zwei Größenordnungen unter der theoretisch erwarteten Lebensdauer von 3 ms [21].



Abbildung 2.22: Ionensignal resultierend aus der Lebensdauermessung des angeregten Zustands des (a) 1001 nm Übergangs und (b) 741 nm Übergangs. Durch die schrittweise zeitliche Verzögerung des ersten Anregungsschritts gegenüber dem zweiten und dritten Anregungsschritt sinkt das Ionensignal. Aus dem exponentiellen Abfall kann die Lebensdauer ermittelt werden. Für Details siehe Text.

Zur Untersuchung der Abweichung wird die Lebensdauermessung an einem breiteren Übergang wiederholt. Hierfür wird der 741 nm $4f^{10}6s^2({}^5I_8) \rightarrow 4f^9({}^6H^o)5d6s^2({}^5K_9)$ Grundzustandsübergang aus Abschn. 2.3.1 mit einer Lebensdauer von 86 µs [24] verwendet. Das resultierende Signal für die Lebensdauermessung ist in Abb. 2.22 (b) zu sehen. Hierbei sind zwei exponentielle Abfälle des Ionensignals zu beobachten. Für den ersten Abfall ergibt sich eine Zerfallszeit von $\tau_{741}^1 = (32 \pm 2)$ ns, was in etwa der Pulsbreite eines Ti:Sa-Laserpulses von 50 ns entspricht. Da für dieses Anregungsschema die Energie des ersten Anregungsschritts zusätzlich zur nichtresonanten Ionisation ausreicht, kann der erste Abfall durch die abnehmende Ionisationsrate aufgrund der zeitlichen Verzögerung des ersten gegenüber des zweiten und dritten Anregungsschritts erklärt werden. Da mit dieser der Ionisationskanal über 740 nm nicht mehr zur Verfügung steht, werden weniger Atome ionisiert und das Ionensignal sinkt. Folglich sollte der zweite Abfall aus der Lebensdauer des angeregten Zustands resultieren. Es ergibt sich $\tau^2_{741} = (2,8\pm0,3)\,\mu {\rm s}.$

Innerhalb der Fehlerabweichungen stimmen die gemessenen Lebensdauern der beiden angeregten Zustände also überein. Es ist daher davon auszugehen, dass die Lebensdauer der Atome innerhalb der zur Verfügung stehenden Messapparatur, aufgrund der hohen Temperaturen in der Atomquelle und der daraus resultierenden großen Anzahl an Stößen zwischen den Atomen, limitiert ist. Die tatsächlichen Lebensdauern liegen also oberhalb der gemessenen Werte. Zur Vergleichbarkeit der beiden durchgeführten Lebensdauermessungen wurden die Heizströme mit 100 A für die Messung des 1001 nm Übergangs und 110 A für die Messung des 741 nm Übergangs ähnlich gewählt. Abschließend ergibt sich für den angeregten Zustand des 1001 nm Übergangs eine experimentell gemessene Lebensdauer von

$$\tau_{1001} > (2,9 \pm 0,1) \,\mu s,$$

woraus eine Linienbreite von $\Gamma_{1001}/2\pi < 53 \,\text{kHz}$ resultiert. Zur Verifizierung der für die Präzisionsspektroskopie benötigten Linienbreite im Hz-Bereich ist folglich eine genauere Messung notwendig. Diese kann beispielsweise durch eine Messung an kalten Atomen realisiert werden.

3 Reduzierung der Linienbreite eines ECDLs mit Wellenlänge 1001 nm

Mithilfe der Resultate des vorausgegangenen Kapitels soll eine Fluoreszenzspektroskopie des 1001 nm Übergangs ermöglicht werden. Um innerhalb dieser Spektroskopie die für den geplanten Test der fundamentalen Physik benötigte Präzision einer Messung der Isotopieverschiebung zu erreichen, sind zwei Aspekte entscheidend. Zum einen muss die Linienbreite des für die Spektroskopie verwendeten Lasers, zum anderen die Linienbreite des atomaren Übergangs ausreichend schmal sein. Für die geforderte 1 Hz Genauigkeit [16] ist es notwendig, dass beide Linienbreiten ebenfalls im Hz-Bereich liegen. Ziel dieses Kapitels ist daher die ausreichende Reduzierung der Linienbreite des innerhalb der AG Windpassinger zur Spektroskopie zur Verfügung stehenden ECDLs. Dieser ist mit einer derzeitigen Linienbreite von etwa 100 kHz (Herstellerangabe) zu breit für die Präzisionsspektroskopie. Die Limitierung von Verbreiterungsmechanismen, die die Linienbreite des atomaren Übergangs beeinflussen, wird Thema des nächsten Kapitels sein.

3.1 Theoretische Grundlagen zur Reduzierung der Laserlinienbreite

Vor allem im Bereich der hochauflösenden Spektroskopie ist es essenziell, dass die Frequenz des Lasers möglichst stabil und ihre Schwankungen klein gegenüber der aufzulösenden Linienbreite gehalten werden. Zum theoretischen Verständnis der Ursache der Limitierung der Frequenzstabilität eines Lasers ist die Betrachtung der Wellenlänge λ bzw. der Frequenz ν einer einzelnen Lasermode entscheidend. Diese ist durch die Resonatorlänge d und den Brechungsindex n im Resonator gemäß [30]

$$m\lambda = 2nd$$
 oder $\nu = \frac{mc}{2nd}$ mit $m = 1,2,3...$ (3.1)

festgelegt. Dabei ist c die Lichtgeschwindigkeit. Veränderungen von d oder n führen nach Gl. 3.1 zur Variation der Laserfrequenz. Die Frequenzänderungen werden allgemein in Langzeit- und Kurzzeitschwankungen unterteilt. Langzeitschwankungen beinhalten hauptsächlich durch langsame Temperatur- oder Druckänderungen hervorgerufene Frequenzänderungen, während Kurzzeitschwankungen beispielsweise aus der akustischen Vibration der Resonatorspiegel oder der Atmosphärenluft im Resonator resultieren.

Zur Kompensation der Frequenzschwankungen wird in der experimentellen Anwendung üblicherweise eine Frequenzstabilisierung vorgenommen. Dabei wird der Laser in einem elektronischen Regelkreis aktiv auf eine Referenzfrequenz stabilisiert. Dazu wird ein Regelsignal aus der Messung relativer Frequenzänderungen erzeugt, das mittels direkter Rückkopplung zur Regelung der Laserfrequenz durch eine entsprechende Steuerung der Resonatorlänge genutzt werden kann. Für herkömmliche Laserdioden mit Ausgangslaserlinienbreiten im Bereich um einige hundert Kilohertz ist eine Frequenzstabilisierung durch Kompensation der Langzeitschwankungen bereits ausreichend. Ist des Weiteren eine Reduzierung der Linienbreite bis in den Hz-Bereich erforderlich, ist ein zusätzlicher Regelkreis mit größerer Regelbandbreite zur Kompensation der Kurzzeitschwankungen notwendig [48]. Eine Möglichkeit der Erzeugung des benötigten Regelsignals bietet das sogenannte Pound-Drever-Hall-Verfahren [29], dessen Grundkonzeption im folgenden Abschnitt kurz erläutert wird.

3.1.1 Frequenzstabilisierung nach dem Pound-Drever-Hall-Verfahren

Die Idee des Pound-Drever-Hall-Verfahrens ist eine Umwandlungen der Laserfrequenzschwankungen in ein Intensitätssignal und damit mittels Photodiode in ein elektrisches Signal. Das erzeugte elektrische Signal wird als Fehlersignal bezeichnet und kann anschließend durch einen PID (Akronym für engl. *proportional-integral-derivative*) Regler zum benötigten Regelsignal weiterverarbeitet werden. Die Referenzfrequenzquelle ist im Zuge des Pound-Drever-Hall-Verfahrens beispielsweise durch einen optischen Resonator gegeben. Die einfachste Bauform eines solchen Resonators ist der sogenannte Fabry-Pérot-Resonator, bestehend aus zwei parallelen hochreflektierenden Spiegeln, die in einem Abstand l voneinander angebracht sind. Die Finesse F dient hierbei der Quantifizierung von Speicherverlusten innerhalb des Resonators und ist daher als Maß der Güte in Abhängigkeit der Reflekivität R der verwendeten Spiegel durch

$$F = \frac{\pi\sqrt{R}}{1-R} \tag{3.2}$$

gegeben [49, S.442ff.]. Eine hohe Finesse ist dabei ein Anhaltspunkt geringer Speicherverluste, wobei im Grenzfall des verlustfreien Resonators (R = 1) eine Finesse $F \to \infty$ erhalten wird. Die Betrachtung von Verlusten innerhalb des Resonators ermöglicht gleichzeitig die Ermittlung der spektralen Breite $\Delta \nu$ einer einzelnen Resonator-Mode. Da mit steigenden Verlusten auch die spektrale Breite zunimmt, ist diese umgekehrt proportional zur Finesse und damit gegeben durch

$$\Delta \nu = \frac{\Delta \nu_{\rm FS}}{F}.$$
(3.3)

Hierbei ist $\Delta \nu_{\rm FS} = c/2l$ der freie Spektralbereich des Resonators. Aus der spektralen Breite einer Resonator-Mode ergibt sich analog zu Gl. 2.7 für die Lebensdauer eines angeregten Zustands die durchschnittliche Photonenlebensdauer innerhalb des Resonators. Innerhalb des Pound-Drever-Hall-Verfahrens wird neben einer ausreichend schnellen Regelelektronik zur Reduzierung einer Laserlinienbreite in den Hz-Bereich eine ausreichend schmale Resonator-Mode als Referenzfrequenz benötigt. Letzteres sollte dabei eine maximale Breite im kHz-Bereich aufweisen [48, 50]. Ein entsprechender Resonator wird aufgrund der großen Güte als Hochfinesse-Resonator bezeichnet.

Zur Erzeugung eines Regelsignals nach dem Pound-Drever-Hall-Verfahren wird ein Teil des Strahls des zu stabilisierenden Lasers in einen Hochfinesse-Resonator eingekoppelt. Entspricht dabei die Laserfrequenz einem Vielfachen der Resonanzfrequenz der Grundmode, so wird der Transmissionskoeffizient $\mathscr{T}(\omega)$, der den durch den Resonator transmittierten Anteil des Strahls beschreibt, maximal und damit der Reflexionskoeffizient $\mathscr{R}(\omega)$, der den am Resonator reflektierten Anteil des Strahls beschreibt, minimal. Im Weiteren beschränkt sich die Betrachtung auf den Reflexionskoeffizienten der durch

$$\mathscr{R}(\omega) = \frac{E_{\text{ref}}}{E_{\text{ein}}} = \frac{R\left(\exp\left(i\frac{\omega}{\Delta\nu_{\text{FS}}}\right) - 1\right)}{1 - R^2 \exp\left(i\frac{\omega}{\Delta\nu_{\text{FS}}}\right)}$$
(3.4)

gegeben ist. Hierbei ist $E_{\rm ein}$ die elektrische Feldamplitude des einfallenden und $E_{\rm ref}$ die des reflektierten Strahls. Der Reflexionskoeffizient ist abhängig von der Laserfrequenz ω , was im Bereich der Resonanz in Abb. 3.1 (a) graphisch dargestellt ist.



Abbildung 3.1: Theoretisch erwartete Intensität und Phase des Reflexionskoeffizienten bei der Einkopplung in einen Resonator. Für die Intensität entspricht die Position des Minimums der Resonanzposition, für die Phase dem Nulldurchgang. Für die Simulation wird o.B.d.A. eine Finesse von F = 150 und ein freier Spektralbereich von $\Delta \nu_{\rm FS} = 1.5$ GHz angenommen.

Durch Messung der Intensität des Reflexionskoeffizienten lässt sich die Frequenzabweichung des Lasers von der Resonanzfrequenz und damit der Referenzfrequenz bestimmen, wodurch ein Fehlersignal generiert wird. Nachteil dieses Fehlersignals ist allerdings, dass aufgrund der Symmetrie keine Information über die Richtung der Frequenzabweichung enthalten ist. Einen entscheidenden Vorteil bietet daher die im Zuge des Pound-Drever-Hall-Verfahrens verwendete Phase

$$\phi(\omega) = \arctan\left(\frac{\operatorname{Im}(\mathscr{R}(\omega))}{\operatorname{Re}(\mathscr{R}(\omega))}\right)$$
(3.5)

des Reflexionskoeffizienten, die in Abb. 3.1 (b) graphisch dargestellt ist. Dazu wird die Frequenz des zu stabilisierenden Lasers phasenmoduliert und anschließend das Interferenzsignal aus Trägerfrequenz und Seitenbandfrequenzen mithilfe einer Photodiode gemessen. Das phasenmodulierte elektrische Feld hat die Form

$$E_{\rm ein} = E_0 e^{i(\omega t + \beta \sin \Omega t)} \approx E_0 e^{i\omega t} [J_0(\beta) + J_1(\beta) e^{i\Omega t} - J_1(\beta) e^{-i\Omega t}],$$
(3.6)

mit der komplexen Amplitude E_0 und dem Modulationsindex β . Der letzte Term in Gl. 3.6 zeigt die Entwicklung in Besselfunktionen $J_{0,1}(\beta)$, wobei hierdurch deutlich wird, dass das phasenmodulierte elektrische Feld aus drei Anteilen zusammengesetzt ist: einem Träger mit Frequenz ω und zwei Seitenbändern mit Frequenzen $\omega \pm \Omega$. Dabei wird Ω als Modulationsfrequenz bezeichnet und im Folgenden als fest betrachtet. Die Phasenmodulation des einfallenden Strahls hat auch Auswirkungen auf den reflektierten Strahl, dessen elektrisches Feld nach Gl. 3.4 und 3.6 nun durch

$$E_{\rm ref} \approx E_0 e^{i\omega t} [\mathscr{R}(\omega) J_0(\beta) + \mathscr{R}(\omega + \Omega) J_1(\beta) e^{i\Omega t} - \mathscr{R}(\omega - \Omega) J_1(\beta) e^{-i\Omega t}]$$
(3.7)

gegeben ist. Daraus folgt, dass die Intensität $I_{\rm ref}\sim |E_{\rm ref}|^2$ des reflektierten Strahls gegeben ist durch

$$I_{\text{ref}} \sim J_0^2(\beta) |\mathscr{R}(\omega)|^2 + J_1^2(\beta) (|\mathscr{R}(\omega + \Omega)|^2 + |\mathscr{R}(\omega - \Omega)|^2) + 2J_0(\beta) J_1(\beta) [\text{Re}(\mathscr{R}(\omega) \mathscr{R}^*(\omega + \Omega) - \mathscr{R}^*(\omega) \mathscr{R}(\omega - \Omega)) \cos \Omega t + \text{Im}(\mathscr{R}(\omega) \mathscr{R}^*(\omega + \Omega) - \mathscr{R}^*(\omega) \mathscr{R}(\omega - \Omega)) \sin \Omega t] + (2\Omega \text{Terme}).$$
(3.8)

Die ersten beiden Beiträge der gemessenen Intensität entsprechen den konstanten Beiträge durch Träger und Seitenbänder, während die mit Ω bzw. 2Ω oszillierenden Beiträge aus der Interferenz von Träger und Seitenband bzw. aus der Interferenz der beiden Seitenbänder resultieren. Ein Vergleich mit dem als Fehlersignal gewünschten Phasensignal des Reflexionskoeffizenten nach Gl.3.5 zeigt, dass ein entsprechender Signalanteil hier im Interferenzanteil von Träger und Seitenband enthalten ist. Mithilfe einer abschließenden Demodulation des gemessenen Signals kann der gewünschte Signalanteil extrahiert und zur Regelung an den Laser rückgekoppelt werden. Der schematische Gesamtaufbau dieses Verfahrens ist in Abb. 3.2 zu sehen.



Abbildung 3.2: Schematische Darstellung eines Aufbaus zur Realisierung des Pound-Drever-Hall-Verfahrens. Zur Stabilisierung der Laserfrequenz wird ein Teil des Laserstrahls in einen Hochfinesse-Resonator eingekoppelt und mithilfe von Phasenmodulation eine Messung des Phasensignals des Reflexionskoeffizienten als Fehlersignal ermöglicht. Das gemessene Signal wird mithilfe des Mischers und Tiefpassfilters demoduliert und durch den PID-Regler zum Regelsignal weiterverarbeitet. Dieses wird an den Kontrolleingang des Lasers rückgekoppelt.

3.2 Experimenteller Aufbau zur Reduzierung der Laserlinienbreite

Für die Fluoreszenzspektroskopie steht innerhalb der AG Windpassinger der ECDL DL Pro der Firma Toptica mit einer Linienbreite von etwa 100 kHz und einer Ausgangswellenlänge von 1001 nm zur Verfügung. Da für die benötigte Präzision der Spektroskopie eine Laserlinienbreite im Hz-Bereich benötigt wird, wird im Folgenden beschrieben wie eine Linienbreitenreduzierung mithilfe des in Abschn. 3.1.1 beschriebenen Pound-Drever-Hall-Verfahrens durchgeführt wurde. Der optische Aufbau hierfür ist in Abb. 3.3 dargestellt.



Abbildung 3.3: Schematische Darstellung des optischen Aufbaus zur Realisierung des Pound-Drever-Hall-Verfahrens. Der Strahl des zu stabilisierenden Lasers wird in Form und Größe mithilfe des Zylinderlinsenteleskops angepasst (siehe Anh. A.4), durch den fasergekoppelten elektro-optischen Modulator (EOM) phasenmoduliert und in den Hochfinesse-Resonator eingekoppelt. Die Linse (F = 500 mm) dient der Modenanpassung innerhalb des Resonators, die $\lambda/4$ -Platte zur Separation von einfallendem und reflektiertem Strahl am Strahlteilerwürfel (PBS).

Zur Erzeugung des benötigten Regelsignals wird die Frequenz $f = \omega/2\pi$ des zu stabilisierenden ECDLs zunächst mithilfe des EOM NIR-MPX-LN-02(Photline) phasenmoduliert. Aus der verwendeten Modulationsfrequenz von $f_{\rm mod} = \Omega/2\pi = 20 \,\text{MHz}$ resultieren dabei entsprechend Seitenbänder der Frequenz $f \pm 20 \text{ MHz}$. Der modulierte Laserstrahl wird anschließend in den zur Verfügung stehenden Hochfinesse-Resonator eingekoppelt. Dabei handelt es sich um einen Zylinderresonator der Firma Stable Laser Systems, bestehend aus einem planen Spiegel zur Einkopplung und einem sphärischen Auskoppelspiegel mit einem Krümmungsradius von $R = 50 \,\mathrm{cm}$. Aus dem Spiegelabstand von 10 cm folgt ein freier Spektralbereich von 1,5 GHz. Die Beschichtung der Spiegel wurde vom Hersteller speziell auf die Anforderungen innerhalb der AG Windpassinger angepasst, wodurch die höchste Finesse von F = 50000-150000 für eine Wellenlänge von 1001 nm angegeben wird. Zusätzlich ist der Resonator zwecks Stabilität aus einem thermisch besonders stabilen sogenannten ULE (Akronym für engl. *ultra low expansion*) Glas der Firma Corning gefertigt und in Vakuum gelagert. Der einfallende Laserstrahl wird innerhalb des Resonators optimal reflektiert, wenn der Krümmungsradius der Wellenfront an der Position der Spiegel mit dem jeweiligen Spiegelradius übereinstimmt. Die eingezeichnete Linse mit einer Brennweite von $F = 500 \,\mathrm{mm}$ dient daher der erforderlichen Modenanpassung. Um eine Einkopplung des Strahls in die Grundmode des Resonators nachzuweisen, kann das Intensitätsprofil des durch den Resonator transmittierten Strahlanteils mithilfe einer Kamera (UI-1540LE-M-GL der Firma iDS) gemessen werden. Das so aufgenommene Intensitätsprofil verschiedener Moden ist in Abbildung 3.4 zu sehen.



Abbildung 3.4: Intensitätsprofil verschiedener Moden in der xy-Ebene. Während TEM_{00} der Grundmode entspricht, stellen TEM_{11} und TEM_{02} höhere Moden dar (allgemeine Notation: TEM_{xy}).

Zur Messung des reflektierten Strahls wird ein polarisierender Strahlteilerwürfel in Kombination mit einer $\lambda/4$ -Wellenplatte verwendet. Durch das zweimalige Passieren der Wellenplatte wird der rücklaufende Strahl am Strahlteiler reflektiert und damit vom einfallenden Strahl separiert. Aufgrund der großen Güte des Resonators wird bei der verwendeten Wellenlänge eine große Leistungserhöhung innerhalb des Resonators erwartet. Zum Schutz der Spiegel wird daher eine geringe Laserleistung von 70 μ W eingekoppelt, woraus eine Laserleistung von $10\,\mu\text{W}$ für den reflektierten Strahl resultiert. Zur Messung wird daher eine Photodiode mit großem internen Verstärkungsfaktor benötigt. An dieser Stelle wird eine AC-gekoppelte Photodiode der Firma Koheron verwendet. Es handelt sich um das Modell PD100, dessen Verstärkungsfaktor vom Hersteller speziell für diese Anwendung von $2.7 \,\mathrm{mV}/\mu\mathrm{W}$ auf $14 \,\mathrm{mV}/\mu\mathrm{W}$ erhöht wurde. Die Bandbreite dieser Spezialanfertigung beträgt 50 MHz. Das so gemessene Signal wird zur Demodulation mit dem an den EOM gegebenen 20 MHz Modulationssignal gemischt. Als Mischer wird hier ein PDD 110F Modul der Firma Toptica verwendet. Das resultierende Fehlersignal ist in Abb. 3.5 zu sehen und wird über einen elektronischen Regelkreis an den Kontrolleingang des ECDLs rückgekoppelt.



Abbildung 3.5: Nach dem Pound-Drever-Hall-Verfahren erzeugtes Fehlersignal.

Zur Regelung wird ein FALC 110 Modul (Toptica) verwendet. Dieses bietet in Form zweier unabhängiger PID-Regler sowohl einen langsamen als auch einen schnellen Regelkreis und ist somit zur Reduzierung der Laserlinienbreite nach Abschn. 3.1 geeignet. Die Einstellung der Regelparameter erfolgt nach Betriebsanleitung bzw. [48].

3.3 Messungen im Rahmen der Reduzierung der Laserlinienbreite

Im vorherigen Abschnitt wurde der Aufbau der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Frequenzstabilisierung des 1001 nm ECDLs nach dem Pound-Drever-Hall-Verfahren beschrieben. Dabei wurden im Hinblick auf die Voraussetzungen für eine zusätzliche Reduzierung der Laserlinienbreite zum einen ein Resonator hoher Finesse und zum anderen, neben dem üblicherweise verwendeten langsamen Regelkreis zur Kompensation von Langzeitschwankungen, ein schneller Regelkreis, das heißt ein Regelkreis großer Regelbandbreite, zur Kompensation von Kurzzeitschwankungen verwendet. Bei optimal eingestellten Regelparametern sollte an dieser Stelle eine Reduzierung der Laserlinienbreite erreicht werden. Zur Quantifizierung dieser Reduzierung ist eine Messung der Laserlinienbreite notwendig. Dies kann mithilfe einer Schwebungsmessung realisiert werden, wobei beispielsweise die Laserstrahlen zweier Lasersysteme identischer Linienbreite überlagert werden. Aus dem Schwebungssignal kann anschließend mittels Fourier-Transformation die Laserlinienbreite ermittelt werden [48, 51]. Aufgrund des erheblichen finanziellen Aufwands einer Linienbreitenmessung wird im Rahmen dieser Arbeit alternativ eine Abschätzung der reduzierten Laserlinienbreite durchgeführt. Diese ermöglicht die Ermittlung einer oberen Grenze, die ausreichend Aussagekraft hinsichtlich einer Interpretation der Eignung zur Präzisionsspektroskopie bietet.

Zur Abschätzung der reduzierten Laserlinienbreite wird im folgenden Abschnitt zunächst der im Rahmen des Pound-Drever-Hall-Verfahrens zur Stabilisierung verwendete Resonator hinsichtlich seiner Finesse charakterisiert. Die Charakterisierung bietet einerseits die Möglichkeit einer experimentellen Verifizierung der ausreichend geringen Modenbreite des Resonators und andererseits den Ausgangspunkt für die nachfolgende Ermittlung einer oberen Grenze der Laserlinienbreite. Letzteres wird abschließend mittels Rauschanalyse des Fehlersignals während der Stabilisierung durchgeführt.

3.3.1 Messung der Finesse des Hochfinesse-Resonators

Für eine Messung der Finesse des im Rahmen des Pound-Drever-Hall-Verfahrens zur Stabilisierung verwendeten Resonators wird eine sogenannte Cavity-Ring-Down-Spektroskopie durchgeführt [52]. Dabei wird die Finesse über die Photonenlebensdauer innerhalb des Resonators, also der Zerfallszeit von im Resonator gespeichertem Licht, ermittelt.

Zur Bestimmung der Photonenlebensdauer wird der durch den Resonator transmittierte Strahlanteil mithilfe der Photodiode PDA10CS-EC der Firma Thorlabs gemessen. Der verwendete ECDL wird zunächst auf den Resonator stabilisiert, wobei ein konstantes Transmissionssignal zu beobachten ist. Anschließend wird der einfallende Laserstrahl abgeschaltet, wobei der exponentielle Zerfall des im Resonator gespeicherten Lichts im Transmissionssignal gemessen werden kann. Zur Abschaltung des Laserstrahls wird an dieser Stelle der akusto-optische Modulator (AOM) 3080-194 des Herstellers Gooch and Housego verwendet, der vor dem fasergekoppelten EOM in Abb. 3.3 platziert wird. Neben der Modulation von Licht ermöglicht dieser die Ablenkung des modulierten Lichtanteils. Wird dieser modulierte Lichtanteil in den fasergekoppelten EOM gegeben, kann durch einfaches Ausschalten des AOMs die Kopplung unterbrochen und der Laserstrahl damit nicht weiter zum Hochfinesse-Resonator geleitet werden. Die Verwendung eines AOMs bietet an dieser Stelle den Vorteil, dass schnelle Abschaltzeiten, wie sie im Rahmen einer Cavity-Ring-Down-Spektroskopie benötigt werden, erreicht werden können. Nur wenn die Abschaltzeit klein gegen die Zerfallszeit des Lichts ist, kann die tatsächliche Photonenlebensdauer gemessen werden. Die Abschaltzeit des verwendeten AOMs beträgt 200 ns für den vorhandenen Laserstrahl mit einem Durchmesser von etwa 1 mm. Das gemessene Transmissionssignal ist in Abb. 3.6 zu sehen.



Abbildung 3.6: Intensität des durch den Hochfinesse-Resonator transmittierten Strahlanteils während der Cavity-Ring-Down-Spektroskopie. Nach Abschalten des Laserstrahls fällt das Transmissionssignal exponentiell ab.

Für einen Fit kann das Zerfallsgesetz

$$N(t) = N_0 e^{-\frac{t}{\tau}} + N_{\text{konst}}$$

in Analogie zu Gl. 2.5 genutzt werden. N(t) entspricht an dieser Stelle der Anzahl an Photonen, die zur Zeit t im Resonator gespeichert sind, N_0 dem Anfangswert und N_{konst} einem konstanten Untergrund. Die Photonenlebensdauer τ wird als Fitparameter zu $\tau = (14, 4 \pm 0, 4)$ µs erhalten und kann nach Abschn. 3.1.1 mithilfe der Gl. 2.7 bzw. 3.3 in die Finesse F umgerechnet werden. Es folgt eine Finesse von $F = 133253 \pm 4452$. Der angegebene Fehler entspricht dabei dem Fitfehler. Neben der hier präsentierten Messung wurden weitere neun Wiederholungen durchgeführt, die im Anh. A.5 mit Graph und gemessener Finesse zu finden sind. Die gemessenen Finessen stimmen im Rahmen der Fehlerabweichung überein. Der Mittelwert der Finesse \overline{F} ergibt sich zu

$$\overline{F} = 133782 \pm 1021,$$

wobei der resultierende Fehler als Fehler des Mittelwerts σ/\sqrt{N} mithilfe der Standardabweichung σ und der Anzahl an Messresultaten N berechnet wird. Die ermittelte Finesse liegt im oberen Drittel des vom Hersteller erwarteten Bereichs, was hinsichtlich der Güte des Resonators positiv zu bewerten ist. Zudem kann aus der ermittelten Finesse mithilfe von Gl. 3.3 die Breite einer einzelnen Resonator-Mode $\Delta \nu$ als

$$\Delta \nu = (11, 21 \pm 0, 09) \, \text{kHz}$$

berechnet werden. Die Modenbreite liegt im kHz-Bereich, wodurch der vermessene Resonator nach Abschn. 3.1.1 prinzipiell zur Reduzierung der Laserlinienbreite in den Hz-Bereich geeignet ist. Die ermittelte Modenbreite bietet zudem den Ausgangspunkt der nachfolgenden Abschätzung der reduzierten Laserlinienbreite.

3.3.2 Abschätzung der reduzierten Laserlinienbreite

Zur Abschätzung der Laserlinienbreite wird eine Rauschanalyse des Fehlersignals während der Stabilisierung durchgeführt. Hierfür wird das Fehlersignal über mehrere Sekunden mithilfe eines Oszilloskops aufgenommen, was in Abb. 3.7 (a) dargestellt ist.



Abbildung 3.7: (a) zeigt das mithilfe des Pound-Drever-Hall-Verfahrens erzeugte Fehlersignal während der Stabilisierung. (b) zeigt ein Histogramm mit der gemessenen Rauschamplitude. Mithilfe eines Gaußfits kann die Halbwertsbreite der Verteilung ermittelt werden, die der mittleren Rauschamplitude entspricht.

Zur Ermittlung der mittleren Rauschamplitude werden die gemessenen Datenpunkte in einem Histogramm dargestellt. Die resultierende Verteilung ist in Abb. 3.7 (b) abgebildet. Die Halbwertsbreite der Verteilung entspricht der gesuchten mittleren Rauschamplitude \overline{A} und wird mittels Durchführung eines Gaußfits als Fitparameter erhalten. Es ergibt sich:

$$\overline{A} = (0,129 \pm 0,001) \,\mathrm{V}.$$

Die mittlere Rauschamplitude während der Stabilisierung ermöglicht Rückschlüsse auf die Regelung selbst. Eine große Rauschamplitude signalisiert dabei eine große notwendige Stellgröße, was bedeutet, dass der zu stabilisierende Laser stark in seiner Frequenz schwankt. Eine kleine Rauschamplitude hingegen signalisiert kleine Regelstrecken und damit geringe Frequenzschwankungen. Je kleiner die mittlere Rauschamplitude, desto geringer die Frequenzschwankungen und desto geringer auch die Laserlinienbreite. Um einen direkten Rückschluss auf die reduzierte Laserlinienbreite zu ermöglichen, ist eine Umrechnung der gemessenen mittleren Rauschamplitude in eine Frequenzbreite notwendig. Der notwendige Umrechnungsfaktor wird im Folgenden mithilfe des Fehlersignals vor der Stabilisierung bestimmt. Dazu wird der Träger des entsprechenden Fehlersignals mittels Durchstimmung der Laserfrequenz um die Resonanz gemessen, was in Abb. 3.8 (a) zu sehen ist.



Abbildung 3.8: (a) zeigt das durch die Durchstimmung der Laserfrequenz um die Resonanz gemessene Trägersignal des erzeugten Fehlersignals vor der Stabilisierung. Eingezeichnet ist der Amplitudenabstand (Spitze-Spitze-Wert) U_{SS}. (b) zeigt das theoretisch erwarteten Trägersignal. Für die Simulation wird mithilfe der in Abschn. 3.3.1 ermittelten Finesse der Reflexionskoeffizient nach Gl. 3.4 berechnet und damit nach Gl. 3.8 das erwartete Fehlersignal abgeleitet. Eingezeichnet ist zudem die lineare Näherung des Signals um den Nulldurchgang.

Aufgrund der Fluktuationen im gemessenen Trägersignal zeigt sich an dieser Stelle, dass die geplante Analyse des Signals hinsichtlich der Ermittlung eines Umrechnungsfaktors nicht realisierbar ist. Stattdessen wird die Analyse analog mithilfe des theoretisch erwarteten Signals, das in Abb. 3.8 (b) zu sehen ist, durchgeführt. Dieses hat nach Abschn. 3.1.1 Gl. 3.8 die Form

$$\operatorname{Im}(\mathscr{R}(\omega)\mathscr{R}^{*}(\omega+\Omega)-\mathscr{R}^{*}(\omega)\mathscr{R}(\omega-\Omega)),$$

wobei der Reflexionskoeffizient $\mathscr{R}(\omega)$ nach Gl. 3.4 und 3.2 mithilfe der in Abschn. 3.3.1 ermittelten Finesse berechnet werden kann. Zur Normierung des simulierten, theoretischen Signals wird der Amplitudenabstand (Spitze-Spitze-Wert) $U_{\rm SS} = 0.96$ V des gemessenen Signals verwendet. Eine detaillierte Beschreibung ist in Anh. A.6 zu finden.

Der benötigte Umrechnungsfaktor wird mithilfe der Steigung des Trägersignals ermittelt. Dazu wird das Signal um den Nulldurchgang als linear genähert und eine Gerade der Form $m \cdot \omega$ an die entsprechenden Werte angepasst. Die Steigung *m* der Geraden entspricht dann dem benötigten Umrechnungsfaktor und ergibt sich zu

$$m = (0,12 \pm 0,02) \frac{\mathrm{V}}{\mathrm{kHz}}.$$

Mithilfe dieses Faktors ist nun eine Umrechnung der gemessenen mittleren Rauschamplitude in die Frequenzeinheit möglich. Die resultierende Größe entspricht der reduzierten Laserlinienbreite Γ_{Laser} . Es ergibt sich $\Gamma_{\text{Laser}}/2\pi = (1, 1 \pm 0, 2)$ kHz.

An dieser Stelle sei erwähnt, dass es sich hierbei um eine obere Grenze handelt. Das betrachtete Rauschsignal enthält neben dem Frequenzrauschen auch elektronisches Rauschen, das die Rauschamplitude beeinflussen kann. Zudem ist aufgrund der Fluktuationen im gemessenen Trägersignal (Abb. 3.8) die Auflösung der Amplitudenspitzen limitiert. Bei optimaler Auflösung ist eine größere Amplitudendifferenz $U_{\rm SS}$ und damit eine größere Steigung m zu erwarten. Abschließend wird für die reduzierte Laserlinienbreite eine Grenze von

$$\Gamma_{\rm Laser}/2\pi < (1,1\pm0,2)\,\rm kHz$$

festgelegt. Es ist zu sehen, dass die Linienbreite des nach dem Pound-Drever-Hall-Verfahren stabilisierten ECDLs erfolgreich reduziert wurde. Die erreichte Linienbreite ist ausreichend für eine erste Charakterisierung des Übergangs in kalten Atomen. Für Optimierungsvorschläge bezüglich einer weiteren Reduzierung wird an dieser Stelle auf den Ausblick verwiesen.

4 Optimierung der Laserkühlung für verschiedene Dysprosiumisotope

Neben der im vorausgegangenen Kapitel beschriebenen Reduzierung der Linienbreite des Spektroskopielasers ist für eine Messung der Isotopieverschiebung mit der angestrebten Präzision eine Limitierung der Verbreiterungsmechanismen, die die Linienbreite des atomaren 1001 nm Übergangs beeinflussen, notwendig. Der dominierende Mechanismus ist an dieser Stelle die in Abschn. 2.1.1 beschriebene Dopplerverbreiterung. Diese resultiert aus der maxwellschen Geschwindigkeitsverteilung der heißen Dysprosiumatome, die bei der Erzeugung einer gasförmigen Probe aufgrund der hohen benötigten Temperatur während der thermischen Evaporation entstehen. Wird, wie im Zuge der Resonanzionisationsspektroskopier, beträgt die dopplerverbreiterte Linienbreite des 1001 nm Übergangs etwa 0,7 GHz. Selbst bei einer Spektroskopie unter einem Winkel (nahe) 90° zum Atomstrahl beträgt die Verbreiterung noch mehrere MHz [53], wodurch eine Präzisionsmessung ausgeschlossen ist. Eine Reduzierung der Dopplerverbreiterung ist beispielsweise durch Laserkühlung, also Kühlung der Atome mithilfe von Laserstrahlen, möglich.

Innerhalb der AG Windpassinger wurde bisher das Kühlen und Speichern des ¹⁶²Dy Isotops mittels einer Kombination aus Zeeman-Slower (engl. für Zeeman-Abbremser) und magneto-optischer Falle realisiert. Um eine Messung der Isotopieverschiebung zu ermöglichen, ist auch das Kühlen und Speichern der übrigen Isotope vonnöten. Im Rahmen dieses Kapitels wird daher die Optimierung des bestehenden Aufbaus zur Laserkühlung verschiedener Dysprosiumisotope beschrieben.

4.1 Theoretische Grundlagen zum Abbremsen von Atomstrahlen

Wird ein Photon von einem Atom absorbiert, so wird dessen Impuls auf das Atom übertragen. Diese Wechselwirkung wird im Zuge der Laserkühlung zum Abbremsen von Atomen genutzt. Zum grundlegenden Verständnis dieses Vorgangs wird im Folgenden zunächst die Streukraft, die aus dem Impulsübertrag zwischen Photon und Atom resultiert, vorgestellt. Anschließend wird die im Rahmen dieser Arbeit verwendete Methode der Abbremsung mithilfe eines sogenannten Zeeman-Slowers unter Ausnutzung des Zeeman-Effekts beschrieben.

4.1.1 Streukraft

Absorbiert ein Atom ein Photon, so erfährt es durch den Impulsübertrag einen Rückstoß in Richtung der Bewegung des Photons. Emittiert das Atom das Photon anschließend spontan, so erfährt es einen zweiten Rückstoß entgegen der Emissionsrichtung. Während die Absorption abhängig von der Bewegungsrichtung des Photons ist, läuft die spontane Emission isotrop ab. Die Streuung vieler Photonen gleicher Bewegungsrichtung führt daher im Mittel zu einer Streukraft F_{Streu} , die sowohl eine Abhängigkeit von der Photonenstreurate $R_{\text{Streu}} = \Gamma p_{ff}$ als auch vom Photonenimpuls $P = \hbar k$ aufweist. In einem Zwei-Niveau-System ist die Population des angeregten Zustands p_{ff} nach Gl. 2.13 und 2.14 gegeben, wodurch die Streukraft zu

$$F_{\text{Streu}} = PR_{\text{Streu}} = \hbar k \frac{\Gamma}{2} \frac{S_0}{1 + S_0 + 4\delta^2 / \Gamma^2}$$

$$\tag{4.1}$$

resultiert [54, S. 179 f.]. Dabei ist $\delta = \omega - \omega_0$ die Verstimmung zwischen Laserfrequenz ω und atomarer Resonanzfrequenz ω_0 im System des bewegten Atoms. Letztere unterscheidet sich aufgrund der Dopplerverschiebung nach Gl. 2.8 von der Resonanzfrequenz $\omega_0' = \omega_0 - \mathbf{kv}$ im Ruhesystem des Atoms. In Abhängigkeit der Geschwindigkeit \mathbf{v} eines Atoms ist die Verstimmung durch

$$\delta = \omega - \omega_0' - \mathbf{k}\mathbf{v} = \omega - \omega_0' \mp kv \tag{4.2}$$

gegeben. Der letzte Schritt zeigt dabei die Vereinfachung auf eine eindimensionale Betrachtung. Für das Abbremsen eines Atoms mithilfe der Streukraft F_{Streu} muss die Bewegungsrichtung der Photonen entgegen der Bewegungsrichtung der Atome gewählt werden. Das Vorzeichen in Gl. 4.2 wird dann positiv. Um die bewegten Atome in Resonanz zu bringen, muss die Dopplerverschiebung kompensiert werden. Hierfür kann entweder die Frequenz des Laserstrahls in Form von Rotverstimmung ($\omega < \omega_0'$) oder die atomare Resonanzfrequenz in Form von Blauverstimmung ($\omega_0 > \omega_0'$) an die Geschwindigkeit des Atoms angepasst werden. Letzteres kann mithilfe des sogenannten Zeeman-Effekts realisiert werden, was im nachfolgenden Abschnitt erläutert wird.

4.1.2 Zeeman-Effekt

Ein Elektron, das mit dem Bahndrehimpuls ${\bf L}$ um einen Atomkern kreist, erzeugt einen Kreisstrom, der ein magnetisches Moment

$$\boldsymbol{\mu}_{\boldsymbol{L}} = -\frac{g_L \mu_B}{\hbar} \mathbf{L},\tag{4.3}$$

proportional zum Bahndrehimpuls **L**, induziert [55, S. 186 ff.]. Dabei ist g_L der Landé-Faktor des Bahndrehimpulses und μ_B das Bohrsche Magneton. Neben dem aus der Kreisbewegung resultierenden magnetischen Moment weist das Elektron, aufgrund seines Spins **S**, ein weiteres magnetisches Moment der Form

$$\boldsymbol{\mu}_{\boldsymbol{S}} = -\frac{g_{S}\mu_{B}}{\hbar}\mathbf{S},\tag{4.4}$$

proportional zum Spin \mathbf{S} , auf. Die Wechselwirkung der beiden magnetischen Momente kann mithilfe des Wechselwirkungsoperators

$$\hat{H}_{\rm LS} = \boldsymbol{\mu}_{\boldsymbol{L}} \cdot \boldsymbol{\mu}_{\boldsymbol{S}} \sim \mathbf{L} \cdot \mathbf{S} \tag{4.5}$$

beschrieben werden und wird als Spin-Bahn-Kopplung bezeichnet. Unter Einführung des Gesamtdrehimpulses $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ (mit |L - S| < J < |L + S|) ergibt sich in erster Ordnung

der Störungstheorie eine Kopplungsenergie von [55, S. 196 ff.]

$$\Delta E_{\rm LS} = \langle \hat{H}_{\rm LS} \rangle \sim \left[J(J+1) - L(L+1) - S(S+1) \right].$$
(4.6)

Abhängig von den Quantenzahlen J, L und S im Mehrelektronensystem kommt es folglich zu einer Aufspaltung der Energieniveaus, der sogenannten Feinstrukturaufspaltung. Jeder Zustand mit Gesamtdrehimpuls J ist zudem (2J+1)-fach entartet. Das aus der Kopplung resultierende magnetische Moment lässt sich mithilfe von Gl. 4.3 und 4.4 zu

$$\boldsymbol{\mu}_{\boldsymbol{J}} = \boldsymbol{\mu}_{\boldsymbol{L}} + \boldsymbol{\mu}_{\boldsymbol{S}} = -\frac{\mu_B}{\hbar} (g_L \mathbf{L} + g_S \mathbf{S}) \approx -\frac{g_J \mu_B}{\hbar} \mathbf{J}$$
(4.7)

ermitteln. Im letzten Schritt wird der Landé-Faktor des Gesamtdrehimpulses

$$g_J = 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)}$$
(4.8)

eingesetzt. Wird nun ein externes magnetisches Feld **B** angelegt, so existiert eine zusätzliche Wechselwirkung zwischen resultierendem magnetischen Moment μ_J und externem magnetischen Feld **B**. Diese kann durch den Wechselwirkungsoperator

$$H_{\text{ext}} = \boldsymbol{\mu}_{\boldsymbol{J}} \cdot \mathbf{B} \tag{4.9}$$

beschrieben werden und führt im Fall $\hat{H}_{ext} \ll \hat{H}_{LS}$ zu einer Aufspaltung in die sogenannten Zeeman-Niveaus $m_J = -J, -J + 1, \ldots, J - 1, J$. Diese Aufhebung der Entartung der Energieniveaus wird als Zeeman-Effekt bezeichnet. Die Zeeman-Verschiebung in z-Richtung ist dabei gegeben durch

$$\Delta E_{\text{ext}} = \langle \tilde{H}_{\text{ext}} \rangle = \mu_B B_z g_J m_J. \tag{4.10}$$

Für Atome, die neben einer Feinstrukturaufspaltung eine Hyperfeinstrukturaufspaltung besitzen, wie die fermionischen Isotope von Dysprosium, führt ein externes magnetisches Feld analog zur Aufspaltung der Hyperfeinstrukturzustände F in die Zeeman-Niveaus $m_F = -F, -F + 1, \ldots, F - 1, F$. In beiden Fällen kann die Abhängigkeit der Zeeman-Verschiebung ΔE_{ext} von der Amplitude des externen magnetischen Felds B_z für das Abbremsen von Atomstrahlen mithilfe eines Zeeman-Slowers genutzt werden, um die sich verändernde Dopplerverschiebung zu kompensieren und die Atome so in Resonanz zu halten.

4.1.3 Zeeman-Slower

Die Grundidee eines Zeeman-Slowers ist das Abbremsen von Atomen mithilfe der optischen Streukraft F_{Streu} nach Abschn. 4.1.1 unter Ausnutzung des Zeeman-Effekts nach Abschn. 4.1.2. Die Atome werden dabei durch das Anlegen eines externen magnetischen Felds B_z in Resonanz mit der Frequenz des Laserstrahls gebracht, wodurch die Verstimmung nach Gl. 4.2 unter Verwendung von Gl. 4.10 als

$$\delta_0 = \omega - \omega_0' \mp kv + \frac{\mu' B_z}{\hbar} \tag{4.11}$$

geschrieben werden kann. Dabei entspricht $\mu' = (g_f m_f - g_i m_i)\mu_B$ der Differenz des magnetischen Moments des angeregten Zustands zum magnetischen Moment des Grundzustands. m_i bzw. m_f kennzeichnen die entsprechenden Zeeman-Niveaus und g_i bzw. g_f die Landé Faktoren. Die Atome befinden sich in Resonanz mit der Frequenz des Laserstrahls, wenn gilt

$$\omega_0' - \frac{\mu' B_z}{\hbar} = \omega + kv. \tag{4.12}$$

Da die Geschwindigkeit der Atome nach jedem Photonenstreuvorgang abnimmt, muss das externe magnetische Feld B_z entsprechend angepasst werden. Ein Zeeman-Slower zeichnet sich daher durch ein ortsabhängiges magnetisches Feld aus. Die benötigte Form dieses Felds ergibt sich aus der Betrachtung der Geschwindigkeit der Atome, die im Abstand z vom Ausgangspunkt gegeben ist durch [56]

$$v = v_0 \left(1 - \frac{z}{L_0}\right)^{1/2}.$$
(4.13)

Dabei ist $L_0 = v_0^2/(F_{\text{Streu}}^{\text{max}}/m)$ die typische Abbremslänge für ein Atom der Masse m und Anfangsgeschwindigkeit v_0 . Für das benötigte externe magnetische Feld folgt damit für $0 \le z \le L_0$

$$B_z = B_0 \left(1 - \frac{z}{L_0} \right)^{1/2} + B_1 \tag{4.14}$$

 mit

$$B_0 = \frac{\hbar k v_0}{\mu'} \quad \text{und} \quad B_1 = \frac{\hbar \delta}{\mu'}.$$
(4.15)

Im Rahmen dieser Arbeit soll das Abbremsen verschiedener Dysprosiumisotope mithilfe eines Zeeman-Slowers realisiert und optimiert werden. Änderungen im optimalen Magnetfeldverlauf B_z sind dabei aufgrund der unterschiedlichen verwendeten Zeeman-Niveaus $m_{i,f}$ und den unterschiedlichen Landé-Faktoren $g_{i,f}$ von bosonischen und fermionischen Isotopen zu erwarten. Für das Abbremsen der Atome wird innerhalb der AG Windpassinger der in Abschn. 2.2.1 beschriebene 421 nm Grundzustandsübergang genutzt. Unter Berücksichtigung der Aufspaltung der Energieniveaus aufgrund des Zeeman-Effekts wird für bosonische Isotope der Zeeman-Übergang $m_i = 8 \rightarrow m_f = 9$ und für fermionische Isotope der Zeeman-Übergang $m_i = 10,5 \rightarrow m_f = 11,5$ des Hyperfeinübergangs $F = 10,5 \rightarrow F = 11,5$ genutzt. Diese Übergänge bieten den Vorteil, aufgrund der Standardauswahlregeln elektrischer Dipolübergänge ($\Delta m = 0, \pm 1$) geschlossen zu sein. Die Landé-Faktoren bosonischer (fermionischer) Isotope sind für den Grundzustand durch $g_i = 1,24159$ ($g_i = 0,9460$) und für den angeregten Zustand durch $g_f = 1,22$ ($g_f = 0,955$) gegeben [57]. Die Unterschiede in Masse und Übergangsfrequenz der verschiedenen Isotope sind gegenüber den genannten Einflüssen vernachlässigbar gering.

Die theoretisch erwartete Änderung zwischen dem optimalen Magnetfeldverlauf der Bosonen $B_{z,Boson}$ und dem optimalen Magnetfeldverlauf der Fermionen $B_{z,Fermion}$ kann daher abgeschätzt werden als $B_{z,Boson}/B_{z,Fermion} \approx \mu'_{Boson}/\mu'_{Fermion} = 99,8\%$. Aufgrund der geringen Abweichungen ist keine messbare Änderung des optimalen Magnetfeldverlauf zu erwarten.

4.2 Experimenteller Aufbau zur Laserkühlung von Dysprosium

Innerhalb der AG Windpassinger besteht neben der Möglichkeit der Spektroskopie an einem Dysprosium-Atomstrahl die Möglichkeit zur Spektroskopie an kalten Dysprosiumatomen. Zur Kühlung der Atome werden schmalbandige Dauerstrichlaser eingesetzt. Um einen Überblick über den experimentellen Aufbau zu geben, wird im Folgenden zunächst das Vakuum- und anschließend das Lasersystem beschrieben. Für eine detaillierte Beschreibung wird an dieser Stelle auf [58] und [59] verwiesen.

4.2.1 Das Vakuumsystem

Der experimentelle Aufbau zur Laserkühlung besteht im wesentlichen aus einer Vakuumkammer, die in Abb. 4.1 dargestellt ist.



Abbildung 4.1: CAD-Zeichnung des experimentellen Aufbaus zur Laserkühlung und Speicherung von Dysprosium. Innerhalb der etwa zwei Meter langen Vakuumkammer wird Dysprosium zunächst durch thermische Evaporation verdampft und anschließend sowohl transversal als auch longitudinal mithilfe von Laserstrahlen gekühlt. Nach erreichen der Hauptkammer stehen die kalten Atome zur Speicherung oder zur Spektroskopie zur Verfügung.

Für die thermische Evaporation der zunächst in fester Phase vorliegenden Dysprosiumprobe wird eine Effusionszelle genutzt. Diese besteht aus einem Tantaltiegel, gefüllt mit 4 bis 8 g Dysprosium. Durch das Erhitzen auf eine Temperatur von 1250 °C werden einige Atome in den gasförmigen Zustand überführt und verlassen nach Passieren der 3 mm breiten Ofenöffnung als Atomstrahl die Ofenregion.

Anschließend folgt die Abbremsung des Atomstrahls mithilfe von Laserstrahlen. Dabei werden die Atome zunächst transversal aus zwei orthogonalen Raumrichtungen gekühlt. Dadurch kann die Divergenz des Atomstrahls reduziert werden, wodurch mehr Atome den Zeeman-Slower (ZS) erreichen. Innerhalb des ZS wird das Maximum der longitudinalen Geschwindigkeitsverteilung der Atome, wie in Abschn. 4.1.3 beschrieben, von ursprünglich 480 m/s auf 22 m/s abgebremst. Der ZS Strahl wird dabei entgegen der Bewegungsrichtung der Atome eingestrahlt. Der Magnetfeldgradient kann mithilfe des Spulenstroms und der Verstimmung zwischen Laserstrahlfrequenz und atomarer Übergangsfrequenz angepasst werden.

Die abgebremsten Atome erreichen letztendlich die Hauptkammer. Dort stehen sie zur Speicherung innerhalb einer dreidimensionalen magneto-optischen Falle oder zur Spektroskopie zur Verfügung. Letzteres findet beispielsweise im Rahmen der Optimierungsmessungen zur Laserkühlung verschiedener Dysprosiumisotope innerhalb dieser Arbeit Anwendung.

4.2.2 Das Lasersystem

Neben dem im Rahmen des dritten Kapitels beschriebenen Lasersystems mit einer Wellenlänge von 1001 nm wird innerhalb der AG Windpassinger gegenwärtig Licht der Wellenlängen 421 nm und 626 nm verwendet. Dieses wird sowohl zur Kühlung als auch zur Spektroskopie eingesetzt. Der im Rahmen dieser Arbeit relevante Teil dieses Lasersystem ist in Abb. 4.2 schematisch dargestellt.



Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des Lasersystems. Das 421 nm Laserlicht wird aus der Frequenzverdopplung (SHG I und SHG II) des 842 nm ECDLs erhalten. Die Leistung des ECDLs wird dafür zunächst mithilfe von Trapezverstärkern (TA I und TA II) erhöht und die Frequenz mittels Pound-Drever-Hall-Verfahren auf den ULE-Resonator stabilisiert. Das 626 nm Laserlicht wird aus der Summenfrequenz der 1050 nm und 1550 nm Faserlaser innerhalb des PPLN-Kristalls erhalten. Das erzeugte Laserlicht wird ebenfalls mittels Pound-Drever-Hall-Verfahren auf den ULE-Resonator stabilisiert.

Das Laserlicht der Wellenlänge 421 nm, das für das transversale Kühlen, den Zeeman-Slower und die Spektroskopie im Rahmen dieser Arbeit benötigt wird, entsteht mittels Frequenzverdopplung des ECDLs DL Pro (Toptica), bei einer Wellenlänge von 842 nm, innerhalb zweier Frequenzverdopplungseinheiten (SHG I und SHG II). Jede Einheit besteht aus einem doppelbrechenden BBO Kristall zur nichtlinearen Frequenzkonversion, der innerhalb eines Resonators zur Überhöhung der umlaufenden Laserleistung gelagert ist. Die Länge des Resonators wird über ein Piezoelement mittels Pound-Drever-Hall-Verfahren auf die Frequenz des 842 nm ECDLs stabilisiert. Die Frequenz des 842 nm ECDLs selbst wird auf den in Abschn. 3.2 bereits eingeführten ULE-Resonator stabilisiert. Um trotz Stabilisierung eine Anpassung der Laserfrequenz an die atomare Übergangsfrequenz in Dysprosium zu ermöglichen, werden mithilfe des Faser-EOMs zusätzliche Seitenbänder erzeugt. Die Seitenbandfrequenz kann dann durch Einstellen des Frequenzabstands zum Träger an die atomare Übergangsfrequenz angepasst werden. Der Frequenzabstand kann dabei durch einen spannungsgesteuerten Oszillator (VCO - Akronym für engl. *voltage controlled oscillator*) zwischen 750 MHz und 1,5 GHz variiert werden. Die Ausgangsleistung des 842 nm Laserlichts wird mithilfe von Trapezverstärkern (TA I und TA II - Akronym für engl. *tapered amplifier*) auf etwa 2W erhöht und ermöglicht so die Erzeugung von bis zu 220 mW blauen Laserlichts pro SHG. Mithilfe der Frequenzschiebung durch die in Abb. 4.2 eingezeichneten (d)AOMs ((Doppelpass) Akusto-optische Modulatoren) kann gleichzeitig ein nah-resonanter Laserstrahl für das transversale Kühlen und ein rotverstimmter Laserstrahl für den Zeeman-Slower generiert werden.

Das Laserlicht der Wellenlänge 626 nm, das für die magneto-optische Falle und zur Spektroskopie im Rahmen der Optimierungsmessungen innerhalb dieser Arbeit benötigt wird, entsteht mittels Summenfrequenzerzeugung der beiden Faserlaser Koheras BoostiK Y10 (NKT Phtonics) mit einer Wellenlänge von 1050 nm und Koheras BoostiK E15 (NKT Phtonics) mit einer Wellenlänge von 1550 nm. Zur nichtlinearen Frequenzkonversion werden die beiden Laserstrahlen innerhalb eines PPLN (Akronym für engl. *periodically poled lithium niobate*) Kristalls überlagert. Hierbei wird durch die periodische Polung des temperaturstabilisierten Kristalls eine Quasi-Phasenanpassung erzielt. Bei einer Eingangsleistung von 5 W je Faserlaser können bis zu 2 W Ausgangsleistung erreicht werden. Analog zum blauen System werden auch hier mithilfe eines Faser-EOMs zusätzliche Seitenbänder erzeugt, deren Frequenz auf die atomare Übergangsfrequenz angepasst werden kann. Anders als zuvor wird dies für das Lasersystem zur Erzeugung des 626 nm Lichts aber nicht über die Modulation der fundamentalen Frequenz sondern über die Modulation der Summenfrequenz realisiert. Das heißt auch, dass die Frequenz des 626 nm Lichts an dieser Stelle selbst auf den ULE-Resonator stabilisiert wird.

4.3 Anpassung der Einstellungen zur Laserkühlung verschiedener Isotope

Aufgrund der isotopenspezifischen Übergangsfrequenzen von Atomen ist im Hinblick auf das Kühlen verschiedener Dysprosiumisotope eine Anpassung der Frequenz der Kühllaserstrahlen vonnöten. Die notwendige Frequenzänderung ergibt sich aus der Isotopieverschiebung des zu kühlenden Isotops. Da die Frequenzen der Kühllaserstrahlen während des Kühlvorgangs auf den ULE-Resonator stabilisiert werden sollen, wird die Anpassung, wie in Abschn. 4.2.2 beschrieben, innerhalb des experimentellen Aufbaus durch Änderung des Frequenzabstands zwischen Träger und Seitenband des in den Resonator eingekoppelten Lichts eingestellt.

Neben der Ermittlung der Isotopieverschiebung des 421 nm Übergangs und des 626 nm Übergangs wird im Rahmen dieses Abschnitts daher die Bestimmung der Lage der atomaren Übergangsfrequenzen relativ zur Resonanzfrequenz des ULE-Resonators beschrieben. Abschließend wird das Abbremsen verschiedener Dysprosiumisotope mittels Zeeman-Slower realisiert und die gefundenen Einstellungen für das blaue Lasersystem damit experimentell verifiziert.

4.3.1 Anpassung der Frequenz der Kühllaserstrahlen

Bei der Anpassung der Frequenz der Kühllaserstrahlen wird mit den 421 nm Strahlen begonnen. Zur Messung der Isotopieverschiebung wird mithilfe des in Abb. 4.2 dargestellten blauen Spektroskopiestrahls senkrecht zum Atomstrahl gemessen. Die Intensität des Spektroskopiestrahls beträgt 0,005 Sättigungsintensitäten. Die Frequenz des 421 nm Lasersystems wird während der Messung über eine Steuerspannung am Piezoelement des 842 nm ECDLs durchgestimmt. Dabei wird das Fluoreszenzsignal mittels Photoelektronenvervielfacher gemessen. Das resultierende Spektrum ist in Abb. 4.3 zu sehen.

Jeder Peak entspricht der atomaren Übergangsfrequenz eines Dysprosiumisotops. Eine Identifizierung der einzelnen Peaks wurde mithilfe von [60] vorgenommen. Für die fermionischen Isotope, die nach Abschn. 2.2.1 im Gegensatz zu den bosonischen Isotopen eine Hyperfeinstrukturaufspaltung besitzen, sind nur Hyperfeinübergänge mit $\Delta F = +1$ zu erkennen. Grund hierfür ist die wesentlich geringere Übergangswahrscheinlichkeit für Übergänge mit $\Delta F = 0$ bzw. -1 [61, 62]. Wie in Abschn. 4.1.3 bereits beschrieben, wird für die Kühlung der fermionischen Isotope der $F = 10.5 \rightarrow F = 11.5$ Übergang verwendet. Die beiden bosonischen Isotope ¹⁵⁸Dy und ¹⁵⁶Dy sind aufgrund ihrer geringen relativen Häufigkeiten nicht zu erkennen. Zusätzlich zum Fluoreszenzsignal wird während der Durchstimmung das nach dem Pound-Drever-Hall-Verfahren erzeugte Fehlersignal bei 842 nm aufgenommen. Dieses ermöglicht eine Frequenzkalibrierung der Zeitachse durch den bekannten Frequenzabstand zwischen Träger und Seitenbändern. Dabei muss beachtet werden, dass die im infraroten Frequenzbereich aufgenommenen Frequenzabstände zur Umrechnung in den blauen Frequenzbereich zu verdoppeln sind. Die Position des Trägers in der aufgenommenen Durchstimmung des Fehlersignals entspricht der Position der Resonanzfrequenz des ULE-Resonators. Diese ist in Abb. 4.3, für das 421 nm Lasersystem, durch die grau gestrichelte Linie gekennzeichnet.



Abbildung 4.3: Zu sehen ist das Fluoreszenzsignal der Spektroskopie des 421 nm Übergangs. Die Beschriftung gibt die Masse des Isotops und im Fall der fermionischen Isotope zusätzlich den $F \to F + 1$ Hyperfeinübergang an. Alle Frequenzen ν sind relativ zur atomaren Übergangsfrequenz ν_{164} des ¹⁶⁴Dy Isotops angegeben. Die grau gestrichelte Linie kennzeichnet die Resonanzfrequenz des zur Stabilisierung der Frequenz des 842 nm ECDLs verwendeten ULE Resonators umgerechnet für das 421 nm Lasersystem.

Zur Ermittlung der Isotopieverschiebung kann ein Fit das gemessene Fluoreszenzsignals durchgeführt werden. Hierfür wird eine Summe an Voigt-Profilen nach Gl. 2.12 verwendet. Die Frequenzposition resultiert dabei als Fitparameter. Die erhaltenen Übergangsfrequenzen sind relativ zur Übergangsfrequenz des ¹⁶⁴Dy Isotops in Tab. 4.1 zusammengefasst. Zusätzlich angegeben ist der jeweilige Fitfehler.

Tabelle 4.1: Isotopieverschiebung $\delta \nu$ [MHz] des 421 nm Übergangs. Alle Frequenzen sind relativ zur Übergangsfrequenz des ¹⁶⁴Dy Isotops angegeben. Für die fermionischen Isotope ist jeweils der im Rahmen dieser Arbeit relevante Abstand zum $F = 10,5 \rightarrow F = 11,5$ Hyperfeinübergang angegeben.

$\delta \nu_{164-163}$	$\delta u_{164-162}$	$\delta u_{164-161}$	$\delta u_{164-160}$
$-272,20 \pm 0,02$	$-912,\!23 \pm 0,\!02$	$-2174,\!29\pm0,\!03$	$-1902,\!31\pm0,\!01$

Ein Vergleich der Isotopieverschiebung der bosonischen Isotope mit den Werten in [19] zeigt eine maximale Abweichung von 0,3%. Die Messresultate stimmen also annähernd überein. Für die fermionischen Isotope ist im Gegensatz zum üblicherweise angegebenen Schwerpunkt der Isotopieverschiebung aller Hyperfeinübergänge eines Isotops an dieser Stelle die Verschiebung des im Rahmen dieser Arbeit verwendeten $F = 10, 5 \rightarrow F = 11, 5$ Hyperfeinübergangs angegeben. Dadurch wird ein Rückschluss auf die einzustellenden

Frequenzänderungen vereinfacht. Neben der Änderung der atomaren Übergangsfrequenz ist für die Kühlung verschiedener Isotope die Lage der Übergangsfrequenz relativ zur Resonanfrequenz des verwendeten ULE-Resonators entscheidend. Diese ermöglicht in Kombination mit der Isotopieverschiebung letztendlich die Einstellung der in Abschn. 4.2.2 beschriebenen Seitenbandfrequenz. Für das ¹⁶⁴Dy Isotop ergibt sich ein Abstand zwischen atomarer Übergangsfrequenz und Resonanzfrequenz des ULE-Resonators von $\Delta f_{164-\text{ULE}} = (83,00 \pm 0,01) \text{ MHz}$. Die speziell für den hier verwendeten Aufbau ermittelten Seitenbandfrequenzen sind in Anh. A.7 zu finden.

Bei der Anpassung der Frequenz der 626 nm Kühllaserstrahlen wird analog zur Frequenzanpassung der 421 nm Kühllaserstrahlen vorgegangen. Als Spektroskopiestrahl dient für diese Messung der in Abb. 4.2 dargestellte orange Spekroskopiestrahl mit einer Intensität von 6 Sättigungsintensitäten. Die Frequenz des 626 nm Lasersystems wird während der Messung über eine Steuerspannung am Piezoelement des 1050 nm Faserlasers durchgestimmt. Das resultierende Fluoreszenzsignal ist in Abb. 4.4 zu sehen.



Abbildung 4.4: Dargestellt ist das Fluoreszenzsignal der Spektroskopie des 626 nm Übergangs. Die Beschriftung gibt die Masse des Isotops und im Fall der fermionischen Isotope zusätzlich den $F \rightarrow F + 1$ Hyperfeinübergang an. Alle Frequenzen ν sind relativ zur atomaren Übergangsfrequenz ν_{164} des ¹⁶⁴Dy Isotops angegeben. Die grau gestrichelten Linien kennzeichnen die Resonanzfrequenzen des zur Stabilisierung der Frequenz des 626 nm Laserlichts verwendeten ULE Resonators.

Die Identifizierung der Peaks im Fluoreszenzspektrum wurde mithilfe von [63] vorgenommen. Zur Frequenzkalibrierung wird das Fehlersignal bei 626 nm aufgenommen. Auch hier sind die Positionen der Resonanzfrequenzen des ULE-Resonators durch grau gestrichelte Linien gekennzeichnet. Die erhaltenen Übergangsfrequenzen relativ zu der des ¹⁶⁴Dy Isotops sind mit Fitfehler in Tab. 4.2 zusammengefasst.

Tabelle 4.2: Isotopieverschiebung $\delta \nu$ [MHz] des 626 nm Übergangs. Alle Frequenzen sind relativ zur Übergangsfrequenz des ¹⁶⁴Dy Isotops angegeben. Für die fermionischen Isotope ist jeweils der im Rahmen dieser Arbeit relevante Abstand zum $F = 10, 5 \rightarrow F = 11, 5$ Hyperfeinübergang angegeben.

$\delta u_{164-163}$	$\delta \nu_{164-162}$	$\delta \nu_{164-161}$	$\delta \nu_{164-160}$
$-2926,31 \pm 0,06$	$-961,\!08 \pm 0,\!01$	$511,\!83\pm0,\!08$	$-1998,\!38\pm0,\!02$

Die Isotopieverschiebung der bosonischen Isotope stimmt innerhalb der Fehlerabweichung mit den Werten in [63] überein. Für das ¹⁶⁴Dy Isotop ergibt sich ein Abstand zwischen atomarer Übergangs- und Resonanzfrequenz des ULE-Resonators von $\Delta f_{164-\text{ULE}} = (324,86\pm0,02)$ MHz. Die speziell für den hier verwendeten Aufbau ermittelten Seitenbandfrequenzen sind ebenfalls in Anh. A.7 zu finden.

4.3.2 Abbremsen verschiedener Dysprosiumisotope

Abschließend wird das Abbremsen verschiedener Dysprosiumisotope durch den Zeeman-Slower realisiert. Damit möglichst viele Atome durch den Zeeman-Slower die Hauptkammer erreichen, werden neben dem 421 nm ZS Strahl auch die 421 nm Kühllaserstrahlen für das transversale Kühlen eingestrahlt. Alle Strahlen sind in Abb. 4.2 dargestellt. Die Frequenz des blauen Lasersystems wird, entsprechend der gefundenen Frequenzeinstellungen im Rahmen des vorherigen Abschnitts, für die einzelnen Isotope angepasst. Nach Abschn. 4.1.3 ist eine Anpassung hinsichtlich des optimalen Zeeman-Slower Magnetfeldverlaufs für die verschiedenen Isotope nicht notwendig und wird daher nicht vorgenommen. Es wird aber an dieser Stelle darauf hingewiesen dass eine experimentelle Verifizierung dieser Annahme der Vollständigkeit halber durchgeführt wurde und in Anh. A.8 zu finden ist.

Die Atome werden nach dem transversalen Kühlen und dem Passieren des Zeeman-Slowers innerhalb der Hauptkammer mithilfe des 626 nm Übergangs spektroskopiert. Zwischen Laserstrahl und Atomstrahl wird ein Winkel von 45° gewählt. Dies bietet den Vorteil, dass langsame und schnelle longitudinale Geschwindigkeiten durch den Dopplereffekt um einige hundert Megahertz getrennt und damit im Spektrum gut zu unterscheiden sind. Im Folgenden werden nur die Atome langsamer longitudinaler Geschwindigkeit betrachtetet, da nur diese für eine Speicherung innerhalb der dreidimensionalen magneto-optischen Falle in Frage kommen. Die absolute Geschwindigkeit der langsamen Atome gibt zudem Aufschluss über die Stärke der Abbremsung durch den Zeeman-Slower. Abbildung 4.5 zeigt das aufgenommene Spektrum für die fünf häufigsten Dysprosiumisotope. Die Umrechnung der Frequenzachse in longitudinalen Geschwindigkeiten erfolgt durch $v = f \cdot (626 \text{ nm}/\cos 45^\circ)$. Zusätzlich zum longitudinalen Spektrum wird jeweils ein Spektrum transversal zum Atomstrahl aufgenommen. Die spektroskopierten Atome haben in diesem Fall keine longitudinalen Geschwindigkeitsanteile, wodurch die Festlegung des Nullpunkts innerhalb der longitudinalen Spektren ermöglicht wird.

In Abb. 4.5 ist zu erkennen, dass das Maximum der longitudinalen Geschwindigkeitsverteilung für alle Isotope, mit Ausnahme von 161 Dy, an nahezu identischer Position zu finden ist. Die mittlere Geschwindigkeit liegt bei etwa 18 m/s, was mit den Ergebnissen für das ¹⁶²Dy Isotop vor den Messungen im Rahmen dieser Arbeit übereinstimmt [58, 59]. Da für das ¹⁶²Dy Isotop eine anschließende Speicherung innerhalb der magneto-optischen Falle bereits realisiert werden konnte, ist davon auszugehen, dass auch die Speicherung der Isotope ¹⁶⁴Dy, ¹⁶²Dy und ¹⁶³Dy mit den gefundenen Einstellungen für die Frequenzen der Kühllaserstrahlen möglich ist. Für das ¹⁶¹Dy Isotop wurde aufgrund der gegenüber dem ¹⁶³Dy Isotop umgekehrten Hyperfeinstrukturaufspaltung [44] der Magnetfeldgradient des Zeeman-Slowers umgepolt. Die mittlere Geschwindigkeit der Atome beträgt etwa 30 m/s. Eine stärkere Abbremsung könnte zukünftig beispielsweise durch die zusätzliche Anpassung der Polarisation des Zeeman-Slower-Strahls an den umgepolten Magnetfeldgradienten erzielt werden. Auch für dieses Isotop sollte dann eine Speicherung innerhalb der magneto-optischen Falle möglich sein.

Damit besteht in Zukunft für die fünf häufigsten Dysprosiumisotope die Möglichkeit zur Spektroskopie an kalten Atomen.



Abbildung 4.5: Abgebildet ist das Fluoreszenzsignal der Spektroskopie des 626 nm Übergangs der fünf häufigsten Dysprosiumisotope unter einem Winkel von 45° zum Atomstrahl. Der Ausschnitt zeigt die Atome mit langsamer longitudinaler Geschwindigkeitsverteilung. Für bosonische Isotope wird die Amplitude durch das Isotopenverhältnis bestimmt, während das Signal für fermionische Isotope aufgrund der Besetzung aller Hyperfeinstrukturzustände deutlich geringer ist.

5 Fazit und Ausblick

Die Zielsetzung dieser Arbeit war die Sicherstellung der Durchführbarkeit einer Fluoreszenzspektroskopie des 1001 nm Übergangs verschiedener kalter Dysprosiumisotope sowie die Gewährleistung der für einen Test der fundamentalen Physik benötigten Präzision dieser Spektroskopie.

Zur Sicherstellung der Durchführbarkeit wurde im Rahmen dieser Arbeit erfolgreich die Vorsuche des Übergangs mithilfe von Resonanzionisationsspektroskopie an heißen Atomen innerhalb der AG Larissa realisiert. Dabei konnte die Sicherheit über die Existenz des Übergangs gewonnen sowie der NIST-Wert der Energie des zugehörigen angeregten Zustands bestätigt werden. Aus der erstmaligen direkten Anregung aller sieben stabilen Dysprosiumisotope resultieren zudem erste Erkenntnisse hinsichtlich Übergangsfrequenz und Isotopieverschiebung. Des Weiteren konnten der 403 nm Übergang als vielversprechender Kandidat für einen potentiellen zweiten Anregungsschritt ausgehend vom 1001 nm Übergang als ersten Anregungsschritt gefunden werden. Dieser ermöglicht eine zweistufige Fluoreszenzspektroskopie, die in Kombination mit den gewonnenen Kenntnissen der Vorsuche eine zukünftige Fluoreszenzspektroskopie des Übergangs in kalten Atomen mit ausreichen großem Fluoreszenzsignal ermöglichen soll.

Zur Gewährleistung der benötigten Präzision muss zum einen die Linienbreite des für die Spektroskopie verwendeten Lasers und zum anderen die Linienbreite des atomaren Übergangs ausreichend schmal sein. Zur Realisierung von Ersterem wurde im Rahmen dieser Arbeit erfolgreich die Linienbreite des zur Verfügung stehenden ECDLs mittels Pound-Drever-Hall-Verfahren reduziert. Die reduzierte Linienbreite konnte auf $\Gamma_{\text{Laser}}/2\pi < 1.1 \,\text{kHz}$ abgeschätzt werden, was für eine erste Charakterisierung des Übergangs in kalten Atomen ausreichend ist. Der 1001 nm Übergang hat eine theoretisch vorhergesagte natürliche Linienbreite von 53 Hz. Da diese für die Durchführbarkeit der Präzsissionsspektroskopie entscheidend ist, ist eine experimentelle Verifizierung hier von großem Interesse. Im Rahmen dieser Arbeit konnte mithilfe der Resonanzionisationsspektroskopie an heißen Atomen bereits eine obere Grenze der Linienbreite von $\Gamma_{1001}/2\pi < 53 \,\mathrm{kHz}$ ermittelt werden. Eine genauere Bestimmung ist für den weiteren Verlauf des Experiments geplant. Die atomare Linienbreite ist innerhalb des experimentellen Aufbaus aufgrund der Dopplerverbreiterung dominierend. Eine Limitierung der Linienverbreiterung wird innerhalb der AG Windpassinger durch das Kühlen der Atome mithilfe von Laserstrahlen erzielt. Vor der Anfertigung dieser Arbeit wurde bereits das Kühlen und Speichern des ¹⁶²Dy realisiert. Im Hinblick auf eine Kühlung und zukünftige Speicherung verschiedener Dysprosiumisotope wurden im Rahmen dieser Arbeit zum einen die Frequenzen der Kühllaserstrahlen bei 421 nm und 626 nm erfolgreich angepasst und zum anderen der Magnetfeldverlauf des Zeeman-Slowers hinsichtlich des einzustellenden Spulenstroms und der Verstimmung des abbremsenden 421 nm Laserstrahls untersucht.

Im weiteren Verlauf des Experiments wird aufbauend auf die erfolgreich realisierte Laserkühlung der verschiedenen Dysprosiumisotope die Speicherung derselbigen innerhalb der dreidimensionalen magneto-optischen Falle verwirklicht. Die gefangenen Atome mit Temperaturen im Bereich einiger Mikrokelvin bilden den Ausgangspunkt für das Umladen in eine optische Dipolfalle. Durch evaporatives Kühlen können hier Temperaturen um einige hundert Nanokelvin erreicht werden [8], wodurch die Dopplerverbreiterung des atomaren Übergangs weiter reduziert wird. An den ultrakalten Atomen kann anschließend mithilfe des zur Verfügung stehenden ECDLs eine erste Spektroskopie des 1001 nm Übergangs realisiert werden. Dabei besteht zum einen die Möglichkeit der Messung der Lebensdauer des zum 1001 nm Übergang zugehörigen angeregten Zustands und damit der atomaren Linienbreite. Aufgrund der geringen Temperatur der Atome ist die Lebensdauer innerhalb nicht länger durch Stöße limitiert und damit genauer bestimmbar. Zum anderen besteht bereits die Möglichkeit der Messung der Isotopieverschiebung. Wird die für den Test der fundamentalen Physik geforderten 1 Hz Genauigkeit dabei noch nicht erreicht, sind weitere Optimierungen des Aufbaus vonnöten.

Diese beinhalten eine weitere Reduzierung der Laserlinienbreite des für die Spektroskopie zur Verfügung stehenden ECDLs. Mithilfe einer detaillierten Netzwerkanalyse können hierbei die für die Stabilisierung verwendeten Regelkreise in ihrer Funktion nachvollzogen und insbesondere die Einstellung der Regelparameter des schnellen Regelkreises weiter optimiert werden [48]. Eine zusätzliche Rauschanalyse kann zudem Aufschluss über die Notwendigkeit einer Intensitätsstabilisierung des ECDLs oder einer Limitierung der Phasenschwankungen des verwendeten Faser-EOMs ermöglichen. Eine höhere Genauigkeit kann auch durch die Spektroskopie innerhalb des sogenannten Lamb-Dicke Regimes erzielt werden [10, 11, 48]. Dazu werden die Atome innerhalb der optischen Dipolfalle in ein optisches Gitter umgeladen. Im Grenzfall großer Gittertiefen wirkt jeder Gitterplatz als harmonischer Potentialtopf, wodurch die Atome fest gehalten werden. In Spektroskopierichtung wird die Dopplerverbreiterung der atomaren Linienbreite dadurch vernachlässigbar klein, wodurch eine präzisere Spektroskopie ermöglicht wird. Die präzise Messung der Isotopieverschiebung mit 1 Hz Genauigkeit sollte spätestens an dieser Stelle realisierbar sein.

Abschließend wird diese zusammen mit der innerhalb der AG Budker gemessenen Isotopieverschiebung des $4f^{10}({}^{5}I_{8})5d6s({}^{3}D){}^{3}[10]_{10} \rightarrow 4f^{9}({}^{6}H^{o})5d^{2}({}^{3}F)({}^{8}K_{1}^{o})6s$ Mikrowellenübergangs in einem King-Plot dargestellt. Nichtlinearitäten im resultierenden King-Plot ermöglichen dabei die Interpretation hinsichtlich einer Physik jenseits des Standardmodells [15].

A Anhang

A.1 Ergänzung zur Resonanzionisationsspektroskopie mithilfe der Abregungsmethode

Für die Entwicklung des Anregungsschema A im Rahmen der Abregungsmethode in Abschn. 2.3.1 wird zur Ermittlung eines zweiten Anregungsschritts die Wellenzahl im Bereich von $22700-24900 \text{ cm}^{-1}$ durchgestimmt. Das resultierende Ionensignal (Abb. 2.11) zeigt über 90 Übergänge deren Übergangsfrequenzen in Tab. A.1 zusammengefasst sind.

Tabelle A.1: Übersicht aller gemessenen Übergänge im Rahmen der Suchen nach möglichen zweiten Anregungsschritten zur Verwendung innerhalb des dreistufigen Anregungsschemas für die Abregungsmethode.

Übergangswellenzahl $[\rm cm^{-1}]$
$22729{,}67 \pm 0{,}02$
$22772{,}70\pm0{,}02$
$22896{,}19\pm0{,}02$
$22991,\!26\pm0,\!03$
$22994{,}15\pm0{,}02$
$23057{,}92\pm0{,}02$
$23065{,}01 \pm 0{,}02$
$23103{,}53\pm0{,}02$
$23182,\!24\pm0,\!04$
$23221,\!63\pm0,\!02$
$23230{,}14\pm0{,}02$
$23264{,}67 \pm 0{,}03$
$23292,\!85\pm0,\!02$
$23311,\!48\pm0,\!02$
$23326{,}39\pm0{,}02$
$23338{,}57 \pm 0{,}03$
wird fortgesetzt

Fortsetzung $23376{,}80\pm0{,}02$ $23409{,}54\pm0{,}02$ $23458{,}45\pm0{,}02$ $23468,40 \pm 0,02$ $23511{,}67 \pm 0{,}02$ $23580{,}10\pm0{,}04$ $23591{,}54\pm0{,}02$ $23605{,}81 \pm 0{,}04$ $23611,67 \pm 0,04$ $23675{,}13\pm0{,}02$ $23676{,}25\pm0{,}03$ $23682,\!61\pm0,\!04$ $23683{,}46\pm0{,}04$ $23685{,}04\pm0{,}04$ $23700{,}46 \pm 0{,}02$ $23713,\!12\pm0,\!03$ $23717{,}30\pm0{,}03$ $23739{,}41\pm0{,}02$ $23741{,}01\pm0{,}04$ $23799,\!97 \pm 0,\!04$ $23808,68 \pm 0.02$ $23811,\!65\pm0,\!03$ $23818{,}67 \pm 0{,}03$ $23823{,}06\pm0{,}02$ $23828,\!15\pm0,\!03$ $23828,87 \pm 0.02$ $23836,38 \pm 0,02$ $23839,49 \pm 0,03$ $23841\ 68 \pm 0{,}03$ $23843{,}94\pm0{,}02$ $23849{,}08\pm0{,}02$ $23850,34 \pm 0,03$ $23870, 15 \pm 0, 03$ $23872,\!28\pm0,\!02$ $23875{,}79\pm0{,}04$ $23877{,}23\pm0{,}03$ $23878,\!39\pm0,\!03$ $23881,99 \pm 0.04$ $23885{,}12\pm0{,}02$ $23887,15 \pm 0,04$ $23902{,}59\pm0{,}02$ $23935{,}15\pm0{,}03$ $24031{,}30\pm0{,}02$ $24042{,}99\pm0{,}02$ wird fortgesetzt
Fortsetzung $24095, 89 \pm 0.02$ $24139,84 \pm 0.04$ $24150, 43 \pm 0, 04$ $24181,03 \pm 0,02$ $24204,25 \pm 0,02$ $24210{,}26\pm0{,}03$ $24229,38 \pm 0,02$ $24255,16 \pm 0,02$ $24321,61 \pm 0.03$ $24325,95 \pm 0,03$ $24345,97 \pm 0,02$ $24353,\!68 \pm 0,\!04$ $24389{,}35\pm0{,}02$ $24411,78 \pm 0.04$ $24437,74 \pm 0.02$ $24472, 17 \pm 0.04$ $24496,92 \pm 0,02$ $24557,76 \pm 0.02$ $24582,30 \pm 0,02$ $24617,35 \pm 0,03$ $24654,62 \pm 0,02$ $24661,\!15\pm0,\!04$ $24688,39 \pm 0.02$ $24709,02 \pm 0,02$ $24718,75 \pm 0.04$ $24730,54 \pm 0.05$ $24753,43 \pm 0,02$ $24759,01 \pm 0,02$ $24789,45 \pm 0,02$ $24834,01 \pm 0,02$ $24860{,}38\pm0{,}02$

Desweiteren wird die beschriebene Spektroskopie mithilfe der Abregungsmethode neben dem vorgestellten Schema A auch an den in Abb. 2.13 dargestellten Schemata B und C durchgeführt. Für Schema B ist der erste Anregungsschritt identisch mit Schema A während der zweite Anregungsschritt in Form des 411 nm $4f^{9}({}^{6}\mathrm{H}^{o})5d6s^{2}({}^{5}\mathrm{K}_{9}^{o}) \rightarrow$ $4f^{10}({}^{5}I)6s6p$ Übergangs mithilfe der in Abb. 2.3 präsentierten Messung gefunden wurde. Für Schema C entspricht der erste Anregungsschritt dem in Datenbank [36] gefundenen $419 \text{ nm } 4f^{10}6s^{2}({}^{5}\mathrm{I}_{8}) \rightarrow 4f^{10}({}^{5}\mathrm{I}_{8})6s6p({}^{1}\mathrm{P}_{1}^{o})(8,1)_{8}^{o}$ Grundzustandsübergang. Der zweite Anregungsschritt wurde im Rahmen einer Diplomarbeit [46] innerhalb der AG LARISSA gefunden. Der jeweilige Ionisationsschritt in einen autoionisierenden Zustand wird, wie bereits bei Schema A, durch Durchstimmen der Wellenzahl eines separaten dritten Anregungsschritts gefunden.

Bei der spektroskopischen Untersuchung wird mit der Aufnahme der Linienprofile des



jeweiligen ersten und zweiten Anregungsschritts begonnen. Die resultierende Messung ist in Abb. A.1 zu sehen.

Abbildung A.1: Linienprofil der ersten beiden Anregungsschritte aus Schema B und C der Abregungsmethode für jeweils drei verschiedene Laserleistungen. Für Details siehe Text.

Anschließend wird die Wellenzahl der ersten beiden Anregungsschritte des jeweiligen Schemas ermittelt. Dabei wird schrittweise vollkommen analog zu Schema A vorgegangen. Es ergibt sich:

$$K_{1. \text{ Schritt}_B} = (13495,96 \pm 0,02) \text{ cm}^{-1}$$

$$K_{2. \text{ Schritt}_B} = (24345,93 \pm 0,02) \text{ cm}^{-1}$$

$$K_{1. \text{ Schritt}_C} = (23877,71 \pm 0,02) \text{ cm}^{-1}$$

$$K_{2. \text{ Schritt}_C} = (11771,90 \pm 0,02) \text{ cm}^{-1}.$$

Nachfolgend wird nun zusätzlich der Abregungsschritt eingestrahlt und der resultierende Einbruch im Ionensignal in einem kleinen Wellenzahlbereich aufgenommen. Das jeweilige gemessene Ionensignal ist in Abb. A.1 zu sehen. In Abb. (a) ist dabei ein Doppeleinbruch zu erkennen. Da der rechte Einbruch bei einer Wellenzahl von 27851.4 cm^{-1} als alter-

nativer erster Anregungsschritt in das Energieniveau $4f^{9}(^{6}H^{o})5d^{2}(^{3}P)(^{8}I^{o})6s$ interpretiert werden kann, wird der linke Einbruch dem Übergang in das gesuchte Energieniveau zugeordnet. Für die Wellenzahlen der jeweiligen Abregungsschritte ergibt sich dann:

$$K_{\text{Abregungsschritt}_B} = (27850, 82 \pm 0.05) \text{ cm}^{-1}$$

 $K_{\text{Abregungsschritt}_C} = (25658, 67 \pm 0.04) \text{ cm}^{-1}.$

Die jeweils resultierende Energie des gesuchten angeregten Zustands kann mithilfe von Gl. 2.20 ermittelt werden und ist in Tabelle 2.2 zu finden.



Abbildung A.2: Ionensignal resultierend aus der Durchstimmung der Wellenzahl des Abregungsschritts in Schema B und C. Für Details siehe Text.

A.2 Ergänzung zur Resonanzionisationsspektroskopie mithilfe der direkten Anregung

Für die Wellenzahlmessung innerhalb der Spektroskopie mithilfe der direkten Anregung in Abschn. 2.3.1 wird aufgrund der großen absoluten Genauigkeit das Wellenlängenmessgerät WSU der Firma HighFinesse verwendet. Da der daraus resultierende Messwert zur anschließenden Ermittlung der Übergangsfrequenz genutzt werden soll, wird die Messung analog weitere vier Male durchgeführt, um eine Statistik zu erhalten. Die gemessenen Linienprofile für alle Wiederholungen sind in Abb. A.3 zu sehen. Die jeweils als Fitparameter resultierende Wellenzahl des ersten Anregungsschritts ist in Tab. 2.2 zu finden.



Abbildung A.3: Wiederholte Messung des Linienprofils des 1001 nm Übergangs mithilfe von Auf- und Abwärtsdurchstimmung der Wellenzahl. Für die Wellenzahlmessung wird hier das Wellenlängenmessgerät WSU verwendet. Die Zählrate variiert aufgrund von unterschiedlichen Heizstromeinstellungen für die thermische Evaporation der Dysprosiumprobe bei den einzelnen Messungen.

Zusätzlich wird für die direkten Anregung eine Messung mit dem für die Spektroskopie mithilfe der Abregungsmethode verwendeten Wellenlängenmessgerät WS6-600 der Firma HighFinesse durchgeführt. Damit soll eine Überprüfung der Übereinstimmung der beiden zur Verfügung stehenden Messgeräte ermöglicht werden. Die Spektroskopie wird dabei vollkommen analog durchgeführt. Das resultierende Ionensignal aus der Aufwärts- und Abwärtsdurchstimmung der Wellenzahl des ersten Anregungsschritts ist in Abb. A.4 zu sehen. Auch hier ist die als Fitparameter resultierende Wellenzahl in Tab. 2.2 zu finden.



Abbildung A.4: Linienprofil des 1001 nm Übergangs mithilfe von Auf- und Abwärtsdurchstimmung der Wellenzahl. Für die Wellenzahlmessung wird hier das Wellenlängenmessgerät WS6-600 verwendet.

Da bisher nur das ¹⁶⁴Dy Isotop zur Spektroskopie verwendet wurde, wird abschließend eine direkte Anregung aller stabilen Dysprosiumisotope durchgeführt. Hierfür wird aufgrund der größeren absoluten Genauigkeit erneut das Wellenlängenmessgerät WSU verwendet. Die resultierenden Linienprofile der einzelnen Isotope sind in Abb. A.5 zu sehen. Da mithilfe dieser Messung anschließend die Isotopieverschiebung in Form einer Frequenzdifferenz ermittelt werden soll, wird hierbei auf der Abszisse anstatt der Wellenzahl die Frequenz aufgetragen. Damit resultiert die Übergangsfrequenz direkt als Fitparameter. Zur Übersicht ist mit den in Abschn. 2.3 angegebenen Formeln dennoch eine Umrechnung in die entsprechende Wellenlänge bzw. Wellenzahl möglich. Alle Werte sind daher mit zugehörigen Fehlern in Tab. A.5 zu finden.



Abbildung A.5: Linienprofil des 1001 nm Übergangs aller stabilen Dysprosiumisotope aufgenommen mithilfe von Auf- und Abwärtsdurchstimmung der Wellenzahl.

Tabelle A.5: Übersicht über alle gemessenen Wellenzahlen des angeregten Zustands für den 1001 nm Übergang aller stabilen Dysprosiumisotope. Zusätzlich angegeben sind die Umrechnungen in Übergangsfrequenz und Wellenlänge.

Masse [u]	Übergangsfrequenz [THz]	Wellenlänge [nm]	Wellenzahl $[\rm cm^{-1}]$
164	$299{,}52281 \pm 0{,}00003$	$1000,\!9002\pm0,\!0001$	$9991,\!006 \pm 0,\!001$
163	$299{,}52191 \pm 0{,}00004$	$1000,\!9033 \pm 0,\!0001$	$9990,\!975\pm0,\!001$
162	$299{,}52158 \pm 0{,}00003$	$1000,\!9044\pm0,\!0001$	$9990,\!965\pm0,\!001$
161	$299{,}52047 \pm 0{,}00004$	$1000,\!9080\pm0,\!0001$	$9990,\!928\pm0,\!001$
160	$299{,}52025 \pm 0{,}00004$	$1000,\!9088 \pm 0,\!0001$	$9990,\!920\pm0,\!001$
158	$299{,}51913 \pm 0{,}00004$	$1000,\!9126\pm0,\!0002$	$9990,\!883 \pm 0,\!001$
156	$299{,}51683 \pm 0{,}00004$	$1000,\!9202\pm0,\!0002$	$9990,\!806 \pm 0,\!001$

A.3 Langzeitmessung zur Charakterisierung der Frequenzdrifts der verwendeten Wellenlängenmessgeräte

Im Rahmen dieser Arbeit wird eine Langzeitmessung zur Charakterisierung der verwendeten Wellenlängenmessgeräte durchgeführt. Diese dient der Abschätzung der Frequenzdrifts im Wellenlängenmessgerät während des Messzeitraums. Für die Charakterisierung werden das WS6-600 sowie das WSU-30 zunächst mithilfe eines HeNe-Lasers kalibriert und anschließend über mehrere Tage die Frequenz gemessen. Die resultierende Langzeitmessung ist in Abb. A.6 zu sehen.





Abbildung A.6: Langzeitmessung zur Charakterisierung der Frequenzdrifts der verwendeten Wellenlängenmessgeräte. Oben: Raumtemperatur ausgelesen mithilfe des WS6-600. Mitte: Umgebungsdruck ausgelesen mithilfe des WS6-600. Unten: Differenz der gemessenen Frequenz zur Frequenz des zur Kalibrierung verwendeten HeNe-Lasers für das WS6-600 und das WSU-30.

A.4 Ergänzung zum optischen Aufbau zur Realisierung des Pound-Drever-Hall-Verfahrens

Im Rahmen der Reduzierung der Linienbreite des 1001 nm ECDLs in Abschn. 3.2 wird im ersten Schritt eine Modifizierung des Strahlprofils mithilfe eines Zylinderlinsenteleskops durchgeführt (siehe Abb. 3.3). Grund hierfür ist die zuvor starke Asymmetrie des Strahls, welche die Effizienz der Einkopplung in eine Faser stark limitiert. Durch die Anpassung kann eine Steigerung der Effizienz um 50% erzielt werden. Das Strahlprofil vor und nach der Anpassung wurde mithilfe der Kamera UI-1540LE-M-GL der Firma iDS aufgenommen, was in Abb. A.7 zu sehen ist.



(a) vor dem Teleskop



(b) nach dem Teleskop

Abbildung A.7: Modifizierung des Strahlprofils des 1001 nm ECDLs zur Steigerung der Kopplungseffizienz. Der $1/e^2$ Durchmesser des Strahls beträgt vor dem Teleskop $d_x = 1,47$ mm bzw. $d_y = 0,77$ mm und nach dem Teleskop $d_x = 0,88$ mm bzw. $d_y = 0,66$ mm.

A.5 Ergänzung zur Messung der Finesse des im Rahmen des Pound-Drever-Hall-Verfahrens verwendeten Resonators

Neben der in Abschn. 3.3.1 präsentierten Messung im Rahmen der Cavity-Ring-Down-Spektroskopie werden weitere neun Wiederholungen durchgeführt. Die resultierenden Graphen sind in A.8 zu sehen. Mithilfe der Messresultate kann ein Mittelwert mit geringerem relativen Fehler als bei den Einzelmessungen ermittelt werden.



Abbildung A.8: Wiederholungsmessungen für die Intensität des durch einen Hochfinesse-Resonator transmittierten Strahlanteils während einer Cavity-Ring-Down-Spektroskopie. Nach Abschalten des Laserstrahls fällt das Transmissionssignal exponentiell ab, wobei die Photonenlebensdauer τ als Fitparameter folgt. Aus der Photonenlebensdauer kann nach Abschn. 3.1.1 mithilfe von Gl. 2.7 bzw. 3.3 die angegebene Finesse F berechnet werden. Der angegebene Fehler entspricht dem Fitfehler.

A.6 Ergänzung zur Abschätzung der mithilfe des Pound-Drever-Hall-Verfahrens reduzierten Laserlinienbreite

In Abschn. 3.3.2 wird zur Abschätzung der reduzierten Laserlinienbreite das theoretisch erwartete Trägersignal des erzeugten Fehlersignals verwendet. Das erzeugte Fehlersignal hat nach Abschn. 3.1.1 Gl. 3.8 die Form

$$\operatorname{Im}(\mathscr{R}(\omega)\mathscr{R}^*(\omega+\Omega)-\mathscr{R}^*(\omega)\mathscr{R}(\omega-\Omega))$$

und ist damit abhängig vom Reflexionskoeffizienten $\mathscr{R}(\omega)$. Dieser kann nach Gl. 3.4 mithilfe des freien Spektralbereichs $\Delta \nu_{\rm FS}$ und der Spiegelreflektivität R des verwendeten Resonators berechnet werden. Ersteres ist dabei durch den Abstand der Resonatorspiegel von $l = 10 \,\mathrm{cm}$ (Herstellerangabe) als

$$\Delta \nu_{\rm FS} = \frac{c}{2l} = 1.5 \,\rm GHz$$

gegeben. Die Spiegelreflektivität R kann mithilfe von Gl. 3.2 aus der in Abschn. 3.3.1 gemessenen Finesse ermittelt werden werden. Es folgt:

$$R = \frac{2F^2 + \pi^2 - \pi\sqrt{4F^2 + \pi^2}}{2F^2} = 0\ 999977$$

Damit kann mithilfe des Reflexionskoeffizienten das theoretisch erwartete Fehlersignal nach Gl. 3.8 für eine Seitenbandfrequenz von $f_{\rm mod} = \Omega/2\pi = 20 \,\text{MHz}$ simuliert werden. Der resultierende Graph ist in Abb. A.9 (a) graphisch dargestellt.



Abbildung A.9: Zusammenhang zwischen Transmissions- und Fehlersignal im Rahmen des Pound-Drever-Hall-Verfahrens. (a) zeigt das theoretisch erwartete Fehlersignal für eine Modulationsfrequenz von $f_{\rm mod} = \Omega/2\pi = 20$ MHz und eine Modenbreite von $\Delta \nu = 11,21$ kHz. (b) zeigt den Träger des Fehlersignals sowie das Transmissionssignal. Die Amplitude ist jeweils in willkürlichen Einheiten (w.E.) angegeben.

Es ist zu sehen, dass das theoretisch erwartete Fehlersignal mit dem gemessenen Fehlersignal in Abb. 3.5 übereinstimmt. Abbildung A.9 (b) zeigt den Träger des Fehlersignals. Zusätzlich eingezeichnet ist das Transmissionssignal, also die Intensität des durch den Hochfinesse-Resonator transmittierten Strahlanteils. Diese ist durch ein Lorentz-Profil der Form

$$I(\omega) = I(\omega_0) \frac{\Delta \omega / 2\pi}{(\omega - \omega_0)^2 + (\Delta \omega / 2)^2}$$
(A.1)

gegeben. Die Halbwertsbreite $\Delta \omega$ entspricht der Modenbreite des Resonators und ist nach Abschn. 3.3.1 durch $\Delta \omega = 2\pi \Delta \nu = 2\pi \cdot 11,21 \text{ kHz}$ gegeben. Es ist zu sehen, dass die Halbwertsbreite des Transmissionssignals in etwa dem Frequenzabstand zwischen Signalmaximum und -minimum entspricht.

A.7 Einstellungen für die Anpassung der Frequenzen der Kühllaserstrahlen zum Kühlen verschiedener Isotope

In Abschn. 4.3.1 wurde die Anpassung der Frequenzen der Kühllaserstrahlen zur Kühlung verschiedener Isotope beschrieben. Die notwendige Frequenzänderung wurde in Form der Isotopieverschiebung der zur Kühlung verwendeten Übergänge bei 421 nm und 626 nm ermittelt. Wird zusätzlich die relative Lage der Resonanzfrequenz des ULE-Resonators zum Spektrum atomarer Übergangsfrequenzen betrachtet, können auch die innerhalb des experimentellen Aufbaus einzustellenden Seitenbandfrequenzen bestimmt werden. Dabei ermöglicht die Verwendung von Seitenbändern eine gleichzeitige Stabilisierung und Anpassung der Laserfrequenz. Mithilfe des zur Verfügung stehenden VCOs sind Frequenzabstände Δf zwischen Träger und Seitenband von 750 MHz bis 1,5 GHz einstellbar. Das Seitenband muss daher entsprechend ausgewählt werden.

Abbildung A.10 bzw. Abbildung A.11 zeigt zur Übersicht das jeweils gemessene Spektrum zusammen mit den aufgenommenen Fehlersignalen. Im Fall des 421 nm Lasersystems wurde die Frequenz des 842 nm ECDLs druchgestimmt und währenddessen sowohl das Fehlersignal bei 842 nm als auch das Spektrum atomarer Übergangsfrequenzen für den 421 nm Übergang aufgenommen. Dabei ist zu beachten, dass eine Frequenzänderung im infraroten Frequenzbereich der doppelten Frequenzänderung im blauen Frequenzbereich entspricht. Die Durchstimmung des Fehlersignals bei 842 nm setzt sich aus kleinen, zur Erzeugung des Fehlersignals notwendigen Seitenbändern, in einem Abstand von 20 MHz zum Träger, und großen für die spätere Kühlung geplanten Seitenbändern, in einem zunächst konstanten Abstand von 1000 MHz zum Träger, zusammen. Im Fall des 626 nm Lasersystems wurde die Frequenz des 1050 nm Faserlasers durchgestimmt und währenddessen sowohl das Fehlersignal bei 626 nm als auch das Spektrum atomarer Übergangsfrequenzen für den 626 nm Übergang aufgenommen. Die Durchstimmung des Fehlersignals setzt sich aus den zur Erzeugung des Fehlersignals notwendigen kleinen Seitenbändern, in einem Abstand von 11 MHz zum Träger, und den für die spätere Kühlung geplanten großen Seitenbändern, in einem zunächst konstanten Abstand von 1000 MHz zum Träger, zusammen.



A.7 Einstellungen für die Anpassung der Frequenzen der Kühllaserstrahlen zum Kühlen verschiedener Isotope

Abbildung A.10: In blau ist das Fluoreszenzsignal der Spektroskopie des 421 nm Übergangs dargestellt. Die Beschriftung gibt die Masse des Isotops und im Fall der fermionischen Isotope zusätzlich den $F \rightarrow F + 1$ Hyperfeinübergang an. Alle Frequenzen ν sind relativ zur atomaren Übergangsfrequenz ν_{164} des ¹⁶⁴Dy Isotops angegeben. In grün ist das gemessene Fehlersignal bei 842 nm zu sehen. Alle Frequenzen f sind relativ zur atomaren Übergangsfrequenz des ¹⁶⁴Dy Isotops, umgerechnet in den infraroten Frequenzbereich ($\nu_{164}/2$), angegeben. Träger und zugehörige große Seitenbänder sind entsprechend beschriftet und nummeriert.





Abbildung A.11: In blau ist das Fluoreszenzsignal der Spektroskopie des 626 nm Übergangs dargestellt. Die Beschriftung gibt die Masse des Isotops und im Fall der fermionischen Isotope zusätzlich den $F \rightarrow F + 1$ Hyperfeinübergang an. Alle Frequenzen ν sind relativ zur atomaren Übergangsfrequenz ν_{164} des ¹⁶⁴Dy Isotops angegeben. In grün ist das gemessene Fehlersignal bei 626 nm zu sehen. Träger und zugehörige große Seitenbänder sind entsprechend beschriftet und nummeriert.

Zur Kennzeichnung der Träger und zugehörigen großen Seitenbänder ist eine entsprechende Beschriftung mit Nummerierung angegeben. Der 0. Träger entspricht jeweils dem zur atomaren Übergangsfrequenz des ¹⁶⁴Dy Isotops nächstgelegenen. Der entsprechende Frequenzabstand zwischen Übergangsfrequenz und Resonanzfrequenz des ULE-Resonators ist in Abschn. 4.3.1 in Form von $\Delta f_{164-\text{ULE}}$ angegeben. Mithilfe von $\Delta f_{164-\text{ULE}}$ und der jeweiligen Isotopieverschiebung des Übergangs in Tab. 4.1 bzw. Tab. 4.2 lassen sich die innerhalb des experimentellen Aufbaus zur Kühlung verschiedener Dysprosiumisotope einzustellenden Frequenzabstände zwischen Träger und großem Seitenband festlegen. Die einzustellenden Frequenzabstände $\Delta f_{\text{resonant}}$ sind zusammen mit der Seitenbandbezeichnung in Tab. A.6 bzw. A.7 zusammengefasst. Tabelle A.6: Übersicht über die am 842 nm Lasersystem einzustellenden Frequenzabstände $\Delta f_{\text{resonant}}$ sowie das auszuwählende große Seitenband für eine resonante Spektroskopie am atomaren 421 nm Übergang verschiedener Dysprosiumisotope. Zusätzlich ist der zur optimalen Kühlung notwendige rotverstimmte Frequenzabstand $\Delta f_{\text{verstimmt}}$ angegeben.

Isotop	$\Delta f_{\rm resonant}$ [MHz]	Seitenbandbezeichnung	$\Delta f_{\text{verstimmt}}$ [MHz]
164	1417,0	linkes Seitenband, 1. Träger	1437,0
163	$1279,\!9$	linkes Seitenband, 1. Träger	1299,9
162	$959,\!9$	linkes Seitenband, 1. Träger	$979,\!9$
161	1170,2	rechtes Seitenband, 0. Träger	1150,2
160	1034,2	rechtes Seitenband, 0. Träger	1014,2

Im Fall des 421 nm Lasersystems ergibt sich für den in Abb. 4.2 dargestellten Aufbau zusätzlich eine Besonderheit. Der verwendete Spektroskopiestrahl wird normalerweise im Zuge der Messungen an den innerhalb der magneto-optischen Falle gespeicherten Atomen als Abbildungsstrahl genutzt. Um Sättigungseffekte bei der Absorptionsabbildung zu reduzieren, wird dieser dabei um 40 MHz gegen die atomare Resonanzfrequenz rotverstimmt. Die Modulationsfrequenzen der eingezeichneten AOMs sind daher momentan so gewählt, dass erst durch die Rotverstimmung des Abbildungsstrahls die optimale Verstimmung der transversalen Kühlstrahlen und des Zeeman-Slower-Strahls folgen. Die Frequenzabstände $\Delta f_{\text{verstimmt}}$ in Tab. A.6 berücksichtigen daher die notwendige Rotverstimmung um den Abbildungsstrahl, welcher hier als Spektroskopiestrahl verwendet wurde, innerhalb des Aufbaus zur Laserkühlung um 40 MHz gegen die atomare Resonanzfrequenz zu verstimmen. Damit sind durch $\Delta f_{\text{verstimmt}}$ die für den derzeitigen Aufbau einzustellenden Frequenzabstände gegeben.

Tabelle A.7: Übersicht über die am 626 nm Lasersystem einzustellenden Frequenzabstände $\Delta f_{\text{resonant}}$ sowie das auszuwählende große Seitenband für eine resonante Spektroskopie am atomaren 626 nm Übergang verschiedener Dysprosiumisotope.

Isotop	$\Delta f_{\rm resonant}$ [MHz]	Seitenbandbezeichnung
164	1175,1	linkes Seitenband, 1. Träger
163	$1233,\!8$	linkes Seitenband, 3. Träger
162	1291,7	rechtes Seitenband, 0. Träger
161	$1311,\!14$	rechtes Seitenband, -1. Träger
160	836,6	rechtes Seitenband, 1. Träger

A.8 Untersuchung der optimalen Zeeman-Slower Einstellungen für das Abbremsen verschiedener Isotope

Gleichung 4.14 beschreibt den zum Abbremsen eines Atoms optimalen Zeeman-Slower-Magnetfeldverlauf. Für das Abbremsen verschiedener Dysprosiumisotope ist nach Abschn. 4.1.3 keine messbare Änderung des optimalen Verlaufs zu erwarten. Diese theoretische Erwartung soll im Folgenden experimentell verifiziert werden. An den optimalen Magnetfeldverlauf müssen innerhalb des experimentellen Aufbaus der Spulenstrom des Zeeman-Slower-Magnetfelds sowie die Verstimmung zwischen Laserstrahlfrequenz des abbremsenden Zeeman-Slower-Strahls und atomarer Übergangsfrequenz angepasst werden. Wird sowohl für bosonische als auch für fermionische Isotope der Einfluss des Spulenstroms und der Verstimmung auf die Funktion des Zeeman-Slowers untersucht, ist umgekehrt ein Rückschluss auf die Änderung des optimalen Magneteldverlaufs möglich. Bei optimaler Einstellung wird eine möglichst große Anzahl an Atomen vom Zeeman-Slower möglichst stark abgebremst.

Die Vorgehensweise der durchgeführten Messung ist identisch zu der in [58] und [59] beschriebenen Optimierungsmessung für das ¹⁶²Dy Isotop. Es werden daher an dieser Stelle nur die wesentlichen Aspekte der Durchführung skizziert, während für eine detailliertere Beschreibung auf die angegebenen Quellen verwiesen wird. Während der Messung werden die Atome analog zu Abschn. 4.3.2 innerhalb der Hauptkammer mithilfe des 626 nm Übergangs unter einem Winkel von 45° zum Atomstrahl spektroskopiert. Es wird auch hier das Spektrum der langsamen Atome betrachtet. Die Geschwindigkeit gibt dabei Aufschluss darüber, wie stark der Zeeman-Slower die Atome abbremst. Zur Berechnung der mittleren Geschwindigkeit \bar{v} wird zunächst das Intensitätsmaximum bestimmt und danach das gewichtete Mittel der Geschwindigkeiten, deren Intensität mindestens 75% des Maximums beträgt, berechnet. Die Fläche unter der Kurve gibt zudem Aufschluss über die Anzahl N abgebremster Atome. Zur vereinfachten Betrachtung wird der Quotient N/\bar{v} eingeführt, der sowohl Informationen über die Anzahl der abgebremsten Atome als auch die Stärke der Abbremsung enthält.

Der Spulenstrom wird in Schritten von 0,5 A zwischen 7,5 A und 11,5 A variiert. Der Frequenzbereich der Verstimmung wird für jede Stromeinstellung anhand der Sichtbarkeit des Spektrums angepasst. Abbildung A.12 zeigt den resultierenden Quotienten N/\overline{v} , wobei der Maximalwert auf 1 normiert wurde. An den weißen Stellen erfolgte keine Messung. Es ist zu sehen, dass die gemessenen Graphen der beiden bosonischen Isotope ¹⁶⁴Dy und ¹⁶²Dy einen ähnlichen Verlauf zeigen. Der gemessene Graph des fermionischen Isotops ¹⁶³Dy zeigt vor allem bei kleinen Stromeinstellungen einen abweichenden Verlauf. Ein Maximum für den Quotienten N/\overline{v} kann aber für alle drei Isotope bei einem Spulenstrom von 10,5 A und einer Verstimmung von $-11,2\Gamma_{421}$ gefunden werden. Der Magnetfeldverlauf des Zeeman-Slowers muss also zur Abbremsung verschiedener Isotope nicht angepasst werden. Dies ist auch in Übereinstimmung mit den theoretischen Erwartungen nach Abschn. 4.1.3.

A.8 Untersuchung der optimalen Zeeman-Slower Einstellungen für das Abbremsen verschiedener Isotope



Abbildung A.12: Abhängigkeit des Quotienten N/\overline{v} vom Spulenstrom des Zeeman-Slower Magnetfelds und der Verstimmung des abbremsenden 421 nm Laserstrahls für (a) das ¹⁶⁴Dy, (b) das ¹⁶²Dy Isotop und (c) das ¹⁶³Dy Isotop. Dabei ist N die Anzahl an abgebremsten Atomen und \overline{v} die mittlere longitudinale Geschwindigkeit. Ein Optimum kann für alle Isotope bei einem Spulenstrom von 10,5 A und einer Verstimmung von $-11,2\Gamma_{421}$ gefunden werden.

Literaturverzeichnis

- M.H. Anderson, J.R. Ensher, M.R. Matthews, C.E. Wieman und E.A. Cornell, "Observation of Bose-Einstein Condensation in a Dilute Atomic Vapor". Science 269, 198-201, 1995.
- [2] K.B. Davis, M.O. Mewes, M.R. Andrews, N.J. van Druten, D.S. Durfee, D.M. Kurn und W. Ketterle "Bose-Einstein Condensation in a Gas of Sodium Atoms". Physical Review Letters 75, 3969, 1995.
- [3] C.C. Bradley, C.A. Sackett und R.G. Hulet "Bose-Einstein Condensation of Lithium: Observation of Limited Condensate Number". Physical Review Letters **78**, 985, 1997.
- [4] B. DeMarco und D.S. Jin, "Onset of Fermi Degeneracy in a Trapped Atomic Gas". Science 285, 1703-1706, 1999.
- [5] A.G. Truscott, K.E. Strecker, W.I. McAlexander, G.B. Partridge und R.G.Hulet, "Observation of Fermi Pressure in a Gas of Trapped Atoms". Science 291, 2570-2572, 2001.
- [6] I. Bloch, J. Dalibard und W. Zwerger, "Many-body physics with ultracold gases". Reviews of Modern Physics 80, 885, 2008.
- [7] T. Lahaye, C. Menotti, L. Santos, M. Lewenstein und T. Pfau, "The physics of the dipolar bosonic quantum gases". Reports on Progress in Physics 72, 126401, 2009.
- [8] M. Lu, N.Q. Burdick, S.H. Youn und B.L. Lev, "Strongly Dipolar Bose-Einstein Condensate Dysprosium". Physical Review Letters 107, 190401, 2011.
- [9] M. Lu, N.Q. Burdick und B.L. Lev, "Quantum Degenerate Dipolar Fermi Gas". Physical Review Letters 108, 215301, 2012.
- [10] C.W. Hoyt, Z.W. Barber, C.W. Oates, T.M. Fortier, S.A. Diddams und L. Hollberg, "Observation and Absolute Frequency Measurement of the ¹S₀-³P₀ Optical Clock Transition in Neutral Ytterbium". Physical Review Letters **95**, 083003, 2005.
- [11] G.K. Campbell, A.D. Ludlow, S. Blatt, J.W. Thomsen, M.J. Martin, M.H.G. de Miranda, T. Zelevinsky, M.M. Boys, J. Ye, S.A. Diddams, T.P. Heavner, T.E. Parker und S.R. Jefferts, "The absolute frequency of the ⁸⁷Sr optical clock transition". Metrologia 45, 539-548, 2008.
- [12] A.V. Gorshkov, A.M. Rey, A.J. Daley, M.M. Boyd, J. Ye, P. Zoller und M.D. Lukin, "Alkaline-Earth-Metal Atoms as Few-Qubit Quantum Registers". Physical Review Letters 102, 110503, 2009.
- [13] K. Shibata, S. Kato, A. Yamaguchi, S. Uetake und Y. Takahashi, "A scalable quantum computer with ultranarrow optical transition of neutral atoms in an optical lattics". Applied Physics B 97, 753-758, 2009.

- [14] A.J. Daley, M.M. Boyd, J. Ye und P. Zoller, "Quantum Computing with Alakline-Earth-Metal Atoms". Physical Review Letters 101, 170504, 2008.
- [15] C. Delaunay, R. Ozeri, G. Perez und Y. Soreq, "Probing the Atomic Higgs Force". Physical Review D 96, 093001, 2017.
- [16] J.C. Berengut, D. Budker, C. Delaunay, V.V. Flambaum, C. Frugiuele, E. Fuchs, C. Grojean, R. Harnik, R. Ozeri, G. Perez und Y. Soreq, "Probing new light force-mediators by isotope shift spectroscopy". arXiv: 1704.05068v1, 2017.
- [17] W.H. King, "Comments on the Article Peculiarities of the Isotope Shift in the Samarium Spectrum". Journal of the Optical Society of America 53, 638-639, 1963.
- [18] F. Gebert, Y. Wan, F. Wolf, C.N. Angstmann, J.C. Berengut und P.O. Schmidt, "Precision Isotope Shift Measurements in Calcium Ions Using Quantum Logic Detection Schemes". Physical Review Letters 115, 053003, 2015.
- [19] N. Leefer, A. Cingöz und D. Budker, "Measurement of the hyperfine structure and isotope shifts in the Dy 421 nm transition". Optical Letters 34, 2548-2550, 2009.
- [20] F. Brandi, I. Velchex, W. Hogervorst und W. Ubachs, "Vacuum-ultraviolet spectroscopy of Xe: Hyperfine splittings, isotope shifts, and isotope-dependent ionization energies". Physical Review A 64, 032505, 2001.
- [21] V.A. Dzuba und V.V. Flambaum, "Theoretical study of some experimentally relevant states of dysprosium". Physical Review A 81, 052515, 2010.
- [22] D. Budker, D. DeMille, E.D. Commins und M.S. Zolotorev, "Experimental investigation of excited states in atomic dysprosium". Physical Review A 50, 132-143, 1994.
- [23] J.G. Conway und E.F. Worden, "Preliminary Level Analyses of the First and Second Spectra of Dysprosium, Dy I and Dy II". Journal of the Optical Society of America 61, 704-726, 1971.
- [24] M. Lu, S.H. Youn und B.L. Lev, "Spectroscopy of a narrow-line laser cooling transition in atomic dysprosium". Physical Review A 83, 012510, 2011.
- [25] V.S. Letokhov und V.I. Mishin, "Highly selective multistep ionization of atoms by laser radiation". Optics Communications 29, 168-171, 1979.
- [26] U. Köster, V.N. Fedoseyev und V.I. Mishin, "Resonant laser ionization of radioactive atoms". Spectrochimica Acta Part B 58, 1047-1068, 2003.
- [27] K.D.A. Wendt, K. Blaum, Ch. Geppert, R. Horn, G. Passler, N. Trautmann und B.A. Bushaw, "Laser resonance ionization for efficient and selective ionization of rare species". Nuclear Instruments and Methods in Physical Research B 204, 325-330, 2003.
- [28] D. Studer, P. Dyrauf, P. Naubereit, R. Heinke und K. Wendt, "Resonance ionization spectroscopy in dysprosium". Springer, Hyperfine Interact 238, 2017.
- [29] E.D. Black, "An introduction to Pound-Drever-Hall laser frequency stabilization". American Journal of Physics 69, 79-87, 2001.

- [30] W. Demtröder, "Laserspektroskopie 1". Springer-Verlag, 6. Auflage, Berlin Heidelberg 2011.
- [31] T. Mayer-Kuckuck, "Atomphysik". Teubner, Stuttgart 1977.
- [32] H.J. Metcalf, P. van der Straten, "Laser Cooling and Trapping". Springer, New York 1999.
- [33] W. Demtröder, "Laserspektroskopie 2". Springer-Verlag, 6.Auflage, Berlin Heidelberg 2013.
- [34] M. Sewtz, "Optische Spektroskopie an Fermium (Z=100)". Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Mainz 2003.
- [35] M. Berglund und M.E. Wieser, "Isotopic compositions of the elements 2009 (IUPAC Technical Report)". Pure and Applied Chemistry 83, 397-410, 2010.
- [36] National Institute of Standards and Technology, "NIST Atomic Spectra Database". http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm, Stand 2/2018.
- [37] W.C. Martin, R. Zalubas und L. Hagan, "Atomic energy levels the rare-earth elements: the spectra of lanthanum, cerium, praseodymium, neodymium, promethium, samarium, europium, gadolinium, terbium, dysprosium, holmium, erbium, thulium, ytterbium, and lutetium". U.S. Government Printing Office, Washington, 1978.
- [38] S. Raeder, "Spurenanalyse von Aktiniden in der Umwelt mittels Resonanzionisations-Massenspektrometrie". Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Mainz 2010.
- [39] T. Kron, "Pushing the Limits of Resonance Ionization Mass Spectrometry Ionization Efficiency in Palladium and Spectral Resolution in Technetium". Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Mainz 2016.
- [40] J. Roßnagel, "Aufbau einer Atomstrahl-Massenspektrometer-Apparatur zur resonanten Laserionisation". Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Mainz 2011.
- [41] M. Franzmann, "Resonanzionisations-Massenspektrometrie an Aktiniden mit der Mainzer Atomstrahlquelle MABU". Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Mainz 2013.
- [42] R. Horn, "Aufbau eines Systems gepulster, abstimmbarer Festkörperlaser zum Einsatz in der Resonanzionisations-Massenspektrometrie". Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Mainz 2003.
- [43] C. Mattolat, "Spektroskopische Untersuchungen an Technetium und Silizium Ein Festkörperlasersystem für die Resonanzionisationsspektroskopie". Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Mainz 2010.
- [44] D.R. Lide, ed., "CRC Handbook of Chemistry and Physics". Internet Version 2005, http: //www.hbcpnetbase.com, CRC Press, Boca Raton, FL, 2005.
- [45] I.G. Hughes und T.P.A. Hase, "Measurements and their Uncertainties A Practical Guide to Modern Error Analysis". Oxford University Press, New York, 2010

- [46] D. Studer, "Resonanzionisationsspektroskopie hochliegender Zustände in Dysprosium und Erbium zur Entwicklung effizienter Anregungsschemata und Bestimmung des ersten Ionisationspotentials". Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Mainz, 2015.
- [47] P.L. Smith, C. Heise, J.R. Esmond und R.L. Kurucz, "Atomic spectral Line Database". http://www.pmp.uni-hannover.de/cgi-bin/ssi/test/kurucz/sekur.html, Stand 2/2018.
- [48] A. Thobe, "Ultracold Yb Gases with Control over Spin and Orbital Degrees of Freedom". Dissertation, Universität Hamburg, Hamburg 2014.
- [49] B.E.A. Saleh und M.C. Teich, "Grundlagen der Photonik". Wiley-VCH, 2. Auflage, Weinheim 2008.
- [50] M. Bass, "Handbook of Optics". McGraw-Hill, 2. Auflage, New-York, 1995.
- [51] H. Stoehr, F. Mensing, J. Helmcke und U. Sterr, "Diode laser with 1 Hz linewidth". Optics letters 31, 736-738, 2006.
- [52] M.C. Darrow, "Finesse Measurement in Fabry-Perot Interferometers". Macalester Journal of Physics and Astronomy 2, 2014.
- [53] V. Sonnenschein, S. Raeder, A. Hakimi, I.D. Moore und K. Wendt, "Determination of the ground-state hyperfine structure in neutral ²²⁹Th", Journal of Physics B 45, 165005, 2012.
- [54] C.J. Foot, "Atomic physics". Oxford University Press, Oxford, 2005.
- [55] H. Kaken und H.C. Wolf, "Atom- und Quantenphysik: Einführung in die experimentellen und theoretischen Grundlagen". Springer-Verlag, 6. Auflage, Berlin [u.a.], 1996.
- [56] A. Frisch, "Dipolar Quantum Gases of Erbium". Dissertation, Universität Innsbruck, Innsbruck, 2014.
- [57] M. Lu, "Quantum Bose and Fermi Gases of Dysprosium: Production and Initial Study". Dissertation, Stanford University, Stanford, 2014.
- [58] F. Mühlbauer, N. Petersen, C. Baumgärtner, L. Maske und P. Windpassinger "Systematic optimization of laser cooling of dysprosium" in Vorbereitung.
- [59] C. Baumgärtner, "Laserkühlen von Dysprosium". Masterarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Mainz, 2017.
- [60] N. Leefer, A. Cingöz und D. Budker, "Measurement of hyperfine structure and isotope shifts of the Dy 421-nm transition". arXiv: 0904.1438v2.
- [61] N. Leefer, A. Cingöz, B. Gerber-Siff, A. Sharama, J.R. Torgerson und D. Budker, "Transverse laser cooling of a thermal atomic beam of dysprosium". Physical Review A 81, 043427, 2010.
- [62] Daniel A. Steck, "Cesium D Line Data". http://steck.us/alkalidata, Stand 03/2018.
- [63] W. Hogervorst, G.J. Zaal, J. Bouma und J. Blok, "Isotope shifts and hyperfine structure of neutral Dysprosium". Physics Letters 65A, 220-222, 1978.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei Allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Ich danke Prof. Dr. Patrick Windpassinger, der mir die Anfertigung dieser Arbeit innerhalb seiner Arbeitsgruppe ermöglicht und sich stets Zeit für das Beantworten offener Fragen genommen hat. Zudem danke ich ihm für ein spannendes und herausforderndes Arbeitsthema und die Ermöglichung an Summer Schools in Innsbruck und Barcelona teilzunehmen. Mein Dank geht außerdem an die gesamte Arbeitsgruppe QOQI für das angenehme Arbeitsklima und die stetige Hilfsbereitschaft bei technischen und fachlichen Belangen sowie die stets unterhaltsamen gemeinschaftlichen Aktivitäten wie die Grillabende. Insbesondere danke ich meinen Betreuern Florian Mühlbauer und Niels Petersen, die immer ein offenes Ohr für Fragen hatten und mich tatkräftig bei der Laborarbeit unterstützten. Danke für die fachlichen Beratungen während der Anfertigung dieser Arbeit und das Korrigieren der Erstfassung. Darüber hinaus danke ich André Wenzlawski und Till Lenz für das Korrekturlesen und die Diskussionen zu jeglichen Unklarheiten.

Mein Dank geht an Prof. Dr. Klaus Wendt, für die Möglichkeit die Messungen zum ersten Teil dieser Arbeit innerhalb seiner Arbeitsgruppe durchzuführen und für die freundliche Übernahme des Zweitgutachtens. Ich danke zudem der gesamten Arbeitsgruppe LARIS-SA für die freundliche Aufnahme sowohl während der Laborarbeiten als auch bei den Tee- und Kickerrunden. Insbesondere danke ich Dominik Studer für die Zusammenarbeit während der gesamten Messzeiten und die geduldige Beantwortung aller offenen Fragen während der Datenauswertung und der Anfertigung dieser Arbeit.

Zuletzt möchte ich meiner Familie und meinen Freunden für die Unterstützung und den Rückhalt während des gesamten Studiums danken. Mein Dank geht insbesondere an meinen Freund Patrick, Balle der mir mit einer unermüdlichen Selbstverständlichkeit bei allen Belangen des Lebens zur Seite steht.