

VU Research Portal

Advancing Precision Ramsey-Comb Spectroscopy through High-Harmonic Generation

Dreissen, L.S.

2020

document version

Publisher's PDF, also known as Version of record

[Link to publication in VU Research Portal](#)

citation for published version (APA)

Dreissen, L. S. (2020). *Advancing Precision Ramsey-Comb Spectroscopy through High-Harmonic Generation*. [PhD-Thesis - Research and graduation internal, Vrije Universiteit Amsterdam].

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal

Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

E-mail address:

vuresearchportal.ub@vu.nl

Samenvatting

De energiestructuur van eenvoudige atomaire systemen, in het bijzonder van het waterstofatoom, wordt al ruim een eeuw bestudeerd. De theoretische beschrijving van de energieniveaus in atomair waterstof werd als eerst beschreven door Niels Bohr. Hij poneerde dat het elektron in het atoom enkel discrete energieniveaus kon bezetten, wat later heeft geleid tot de formulering van de kwantummechanica. De experimentele observatie van een overgang tussen verschillende energieniveaus met behulp van licht heet spectroscopie. Zulke overgangen kunnen tot stand worden gebracht wanneer de fotonenergie van het licht (gerelateerd aan de golflengte of de frequentie) precies overeenkomt met het energieverschil tussen de twee niveaus. Het veld van spectroscopie heeft een snelle ontwikkeling doorgemaakt met de komst van de laser, omdat deze licht met hoge spectrale zuiverheid mogelijk maakt. Door de verbeterde spectroscopische nauwkeurigheid werden substructuren in de energiespectrum onthuld. Deze extra karakteristieken leidde tot meer uitgebreide theoretische modellen, waarbij bijvoorbeeld relativistische effecten meegenomen werden, en uiteindelijk tot de formulering van de kwantumelectrodynamica of QED (quantum electrodynamics). Deze laatste theorie beschrijft de wisselwerking van licht met materie, en de invloed van de creatie en annihilatie van virtuele deeltjes op de energieniveaus in een atoom. QED is rigoreus getest door voortdurend de vergelijking te maken tussen steeds nauwkeurigere metingen en verbeterde berekeningen van de energieniveaus in atomen en moleculen. De ontwikkeling van de frequentiekamlaser (FK-laser) is cruciaal geweest in dit proces, omdat het een absolute frequentiekalibratie verschaft. Met behulp van deze FK-laser is de $1S - 2S$ overgangsenergie (die evenredig is met de frequentie) in atomair waterstof gemeten met een indrukwekkende nauwkeurigheid van 15 cijfers. De theoretische bepaling van deze overgangsfrequentie is afhankelijk van een aantal fundamentele constanten, zoals de Rydberg constante en de effectieve ladingstraal van de proton, welke enkel ex-

perimenteel kunnen worden bepaald. In sommige gevallen wordt de nauwkeurigheid van de berekende overgangsfrequentie gelimiteerd door de onzekerheid van een dergelijke fundamentele grootte en niet door het theoretische model zelf, wat verdere toetsing van de theorie belemmert. In waterstof is dit het geval met de protonstraal (r_p) en daarom is de waarde hiervan verbeterd door middel van spectroscopie aan een meer exotisch atoom: *muonisch* waterstof. Het muon is ~ 200 keer zwaarder dan het elektron, waardoor het zich gemiddeld gezien dicht bij de atoomkern bevindt en dus gevoeliger is voor de invloed van de kern. De resulterende verkregen waarde voor r_p was daardoor tien keer nauwkeuriger dan de tot dan toe algemeen geaccepteerde waarde, maar week hier ook 4% vanaf, wat overeenkomt met een verschil van 5.6σ . Dit raadsel is sindsdien bekend als de *protonstraalpuzzel* en wordt onderzocht met continu nauwkeurigere metingen in atomair waterstof, maar ook met behulp van andere systemen omdat deze wellicht kunnen leiden tot nieuwe inzichten.

Het werk waarop dit proefschrift berust, is gericht op hoge-precisie spectroscopie in enkelvoudig geïoniseerd helium (He^+) en *moleculair* waterstof (H_2). Het eerste systeem heeft maar één enkel elektron, d.w.z. het is atomair waterstof-achtig, en de energiestructuur kan daarom met een hoge precisie worden berekend. De interessante QED-termen schalen met hogere-orde van het atoomgetal (Z) en omdat He^+ een zwaarder atoom is, zijn deze dus groter in dit systeem. Hierdoor zou potentieel de validiteit van QED met een hogere precisie getest kunnen worden. Bovendien kan er een vergelijking gemaakt worden met metingen die zijn uitgevoerd in muonisch He^+ , wat een vergelijkbare situatie opleverd als in atomair waterstof en dus potentieel kan leiden tot nieuwe inzichten in de protonstraalpuzzel. Het tweede systeem, moleculair waterstof, is een ijksysteem voor moleculaire kwantumtheorie, omdat de ionisatie- en dissociatie-energie berekend kan worden met een zeer hoge nauwkeurigheid. H_2 bestaat uit twee gebonden waterstof atomen die ten opzichte van elkaar kunnen vibreren en roteren. Deze bijkomende vrijheidsgraden in moleculen verrijken de energiestructuur en geven daarom extra mogelijkheden tot het onderzoeken van potentiële uitbreidingen van het standaardmodel, waaronder een hypothetische fundamentele vijfde kracht op een angstrom lengteschaal. In beide systemen is de grote uitdaging de korte golflengtes die nodig zijn om de energiestructuur te kunnen onder-

zoeken. Excitatie van de eerste elektronisch aangeslagen toestand in H_2 vereist licht bij een golflengte van 202 nm, wat ook wel diep-ultraviolet genoemd wordt. Excitatie van de $1S-2S$ overgang in He^+ heeft zelfs een nog kortere golflengte nodig, namelijk ≤ 60 nm. Dit ligt in het extreem-ultraviolette deel van het spectrum en wordt geabsorbeerd door meeste materialen, inclusief lucht. Voor het genereren van dit soort licht bestaan geen (bekende) laser materialen en precisie spectroscopie bij deze golflengtes is (voornamelijk) gebaseerd op niet-lineaire processen voor frequentieconversie. Deze processen berusten op de niet-lineaire respons van elektronen in een materiaal en vereisen daarom hoge piekintensiteiten. Zulke piekintensiteiten kunnen veelal bereikt worden met gepulste lasers omdat de energie dan in een korte tijd geconcentreerd wordt. Echter, omdat deze pulsen zijn opgebouwd uit een groot aantal frequenties, limiteert de brede bandbreedte doorgaans de nauwkeurigheid van het experiment. Het repetitieve karakter van de frequentiekamlaser maakt een hogere nauwkeurigheid mogelijk. Wij gebruiken de Ramsey-kam spectroscopie techniek, gebaseerd op twee versterkte frequentiekam laserpulsen om het hoge benodigde piekintensiteit te combineren met hoge precisie. De Ramsey-kam techniek is ontwikkeld in ons lab en succesvol gedemonstreerd in het nabije infrarood en het diepe ultraviolet, waarbij het licht in het laatstgenoemde experiment gegenereerd is met behulp van lage-harmonische generatie in niet-lineaire kristallen. De techniek kan dus direct worden toegepast voor hoge-precisie spectroscopie van de eerste elektronische overgang ($X - EF$) in H_2 door middel van vierde-harmonische generatie van 808 nm. Excitatie van de $1S-2S$ overgang in He^+ is aanzienlijk moeilijker omdat hiervoor de Ramsey-kam techniek gecombineerd moet worden met hoge-harmonische generatie.

Zoals al eerder aangegeven berust Ramsey-kam spectroscopie op een Ramsey-achtige excitatie met twee versterkte (en op-geconverteerde) frequentiekampulsen. In Ramsey-spectroscopie leidt excitatie met twee achtereenvolgende pulsen tot interferentie tussen de twee gecreëerde superposities van de grond- en de aangeslagen toestand. Voor twee fase-coherente pulsen is de resulterende populatieverdeling afhankelijk van het tijds- en faseverschil tussen de twee pulsen. Door één van deze twee parameters te scannen kan een oscillatie van de populatie in de aangeslagen toestand geobserveerd worden. Deze oscillatie staat bekend als een Ramsey-oscillatie en kan gebruikt worden om de overgangsfrequentie

tussen de twee toestanden te bepalen. De pulsen die worden uitgezonden door een frequentiekamlaser zijn ideaal voor Ramsey-spectroscopie, omdat ze op een nauwkeurig bekend tijdsverschil worden uitgezonden en een goed gedefinieerde faserelatie tot elkaar hebben. Desalniettemin induceert het versterkingsproces een significante (en meestal onbekende) faseverschuiving, wat leidt tot een systematische verschuiving van het excitatiepatroon en daarmee de daaruit bepaalde overgangsfrequentie. Om dit probleem te vermijden wordt er een *serie* van Ramsey-oscillaties gemeten op een vast tijdsinterval van elkaar welke gelijk is aan een geheel aantal keer de repetitietijd van de laser. Hierdoor kan de overgangsfrequentie worden bepaald uit alleen het *faseverschil* tussen de gemeten oscillaties, wat leidt tot een significante onderdrukking van alle effecten die een *constante* faseverschuiving tussen de pulsen veroorzaken (en ook de ac-Stark verschuiving).

De uitbreiding van Ramsey-kam spectroscopie met hoge-harmonische generatie is niet triviaal omdat dit proces kan leiden tot een *tijdsafhankelijke* faseverschuiving van de excitatiepulsen. Zoals uitgebreid in Hoofdstuk 2 beschreven staat, berust hoge-harmonische generatie op ionisatie van atomen en het versnellen van het vrijgekomen elektron in het elektrisch veld van de laser. Tijdens de recombinatie van zo een elektron en het ion komt een extreem-ultraviolet foton vrij. Deze laatste stap is echter niet heel waarschijnlijk en daarom wordt er tijdens hoge-harmonische generatie een dynamisch plasma gecreëerd, wat invloed heeft op de fase van de gegenereerde extreem-ultraviolet excitatiepulsen. De resulterende onbekende en tijdsafhankelijke faseverschuiving leidt tot een systematische verschuiving van de verkregen overgangsfrequentie. Daarom is het noodzakelijk om deze effecten zeer zorgvuldig te karakteriseren, voordat Ramsey-kam spectroscopie succesvol verenigd kan worden met hoge-harmonische generatie.

Een meer uitgebreide beschrijving van de bovengenoemde technieken en andere fysische concepten zijn gegeven in Hoofdstuk 2. Het is opgebouwd vanuit een introductie van lichtpulsen en pulstreinen, gevolgd door een uitleg van de belangrijkste eigenschappen van de frequentiekamlaser en niet-lineaire optische processen in zowel het perturbatieve als in het sterke-veld-regime. Hierna wordt de methode van Ramsey-kam spectroscopie uitgelegd en de verwachte consequenties van de combinatie van deze techniek met hoge-harmonische generatie beschreven.

De experimentele realisatie van de Ramsey-kam techniek is beschreven in het eerste gedeelte van Hoofdstuk 3. De opstelling is gebaseerd op een Ti:saffier frequentiekamlaser met een centrale emissiegolflengte rond 800 nm en die gekalibreerd is aan een commerciële Cesium-klok. Twee frequentiekampulsen worden selectief versterkt in een optische parametrische versterker (ook gebaseerd op niet-lineaire frequentieconversie) om piekintensiteiten van $\sim 10^{14}$ W/cm² te behalen, wat voldoende is voor hoge-harmonische generatie. De versterker wordt van energie voorzien ('gepompt') door twee pulsen die worden gegenereerd door een huisgemaakte pomplaser, waarvan het specifieke pomp-pulspaar, en dus ook het versterkte frequentiekampulspaar, kan worden aangepast. De versterkte frequentiekampulsen worden op-geconverteerd en gebruikt voor Ramsey-kam spectroscopie.

Voor de experimenten die beschreven zijn in Hoofdstuk 4, is de vierde-harmonische gegenereerd in niet-lineaire kristallen voor excitatie van de twee-foton $X - EF$ overgang in H₂. Een moleculaire bundel werd gecreëerd vanuit een met vloeibaar stikstof gekoelde klep en de moleculen werden geëxciteerd met tegenovergesteld propagerende laserbundels om de Doppler effecten te verkleinen. De verkregen overgangsfrequentie van 2971 234 992 965(73) kHz is honderd keer nauwkeuriger ten opzichte van de vorige meting en heeft mede geleid tot de meest nauwkeurige bepaling van de dissociatie-energie in H₂.

De experimenten die staan beschreven in de Hoofdstukken 5 en 6 zijn uitgevoerd ter voorbereiding van $1S - 2S$ spectroscopie in He⁺. Voor dit doeleinde is een nieuwe 3 m-lange vacuüm opstelling ontworpen en opgebouwd. De voornaamste overwegingen voor het ontwerp staan beschreven in het tweede gedeelte van Hoofdstuk 3. De opstelling bestaat uit zeven vacuümkamers voor het genereren en herfocuseren van een hoge-harmonische bundel in een spectroscopiekamer met behulp van twee toroidale spiegels. In de toekomstige experimenten zal hier een enkel He⁺ ion gevangen worden naast een enkel Be⁺ ion voor sympathetische koelingsdoeleinden. Deze opstelling is getest door Ramsey-kam spectroscopie aan de $5p^6 \rightarrow 5p^5 8s^2 [3/2]_1$ overgang in xenon bij 110 nm (de zevende harmonische van 770 nm) te verrichten. Hierbij zijn de xenon atomen geëxciteerd in een atoombundel onder een hoek van 90° om de eerste-orde Dopplerverschuiving te verkleinen. De voornaamste resultaten van dit experiment zijn beschreven in Hoofdstuk 5. Ze laten zien dat

de faseverschuivingen, geïnduceerd door het hoge-harmonische proces, significant zijn op korte tijdschaal (tot 1 rad bij 8 ns), maar dat deze vrijwel helemaal verdwijnen op grotere tijdschalen. Hierdoor kon de overgangsfrequentie bepaald worden met sub-MHz nauwkeurigheid, wat nog nooit eerder bereikt was met licht afkomstig van hoge-harmonische generatie. De verkregen overgangsfrequentie van 2 726 086 012 471(630) kHz heeft een relatieve nauwkeurigheid van 2.3×10^{-10} , wat de vorige meting verbetert met een factor 10^4 . Een uitgebreide beschrijving van het experiment in xenon wordt gegeven in Hoofdstuk 6.

De resultaten uit de Hoofdstukken 5 en 6 zijn zeer veelbelovend voor toekomstige metingen van de $1S - 2S$ overgang in He^+ , omdat de interactietijd dan veel langer zal zijn (door de lange 1.9 ms levensduur van de aangeslagen toestand en het feit dat het ion gevangen kan worden voor lange tijd) wat leidt tot een veel hogere nauwkeurigheid. Hoofdstuk 7 geeft een kort overzicht van de status van dit experiment, en een vooruitzicht van toekomstige verbeteringen aan het systeem voor een hogere spectroscopische nauwkeurigheid in H_2 . Deze experimenten zullen de mogelijkheid geven tot ppm-niveau toetsingen van QED in het geval van He^+ en nieuwe zoektochten naar mogelijke uitbreidingen van het standaardmodel.