Phasenkohärente optische Frequenzmessungen am Wasserstoffatom. Bestimmung der Rydberg–Konstanten und der 1S Lamb–Verschiebung

Dissertation an der Fakultät für Physik der Ludwig–Maximilians–Universität München



vorgelegt von Thomas Udem aus Bayreuth

München, den 14. August 1997

1. Gutachter: Prof. Dr. T. W. Hänsch

2. Gutachter: Prof. Dr. J. Feldmann

Tag der mündlichen Prüfung: 1. Dezember 1997

Zusammenfassung

Das Wasserstoffatom ist ein wichtiger Prüfstein der Quantenmechanik, weil es das einfachste stabile atomare System darstellt. Die hochauflösende Spektroskopie am Wasserstoff erlaubt außer einem der genauesten Tests der Quantenelektrodynamik (QED) auch die Bestimmung wichtiger Naturkonstanten, wie zum Beispiel der Rydberg–Konstanten. In der vorliegenden Arbeit ist eine phasenkohärente optische Frequenzmessung des 1S–2S Übergangs bei 121 nm (2466 THz) beschrieben, die mit Hilfe der Garchinger Frequenzkette und einem vierstufigen optischen Frequenzteiler durchgeführt wurde.

Diese bisher höchste gemessene Frequenz wurde mit Hilfe einer Kette von Kristallen, die Harmonische und Summenfrequenzen von optischen Frequenzen erzeugen können, mit dem 28-ten Oberton eines Methan-Frequenzstandards bei 3,39 μ m (88 THz) verglichen. Der Vergleich von optischen Frequenzen, deren Differenz klein genug ist (Radiofrequenzen), um sie auf elektronischem Wege zu zählen oder zu stabilisieren, erfolgt dabei durch die Erzeugung von Schwebungssignalen. Weil die 28-te Harmonische des Methanstandards die zu bestimmende 1S–2S Frequenz jedoch um etwa 8 THz verfehlt, bleibt eine Lücke in der Frequenzkette, die bei der vierten Harmonischen des Methanstandards etwa 1 THz beträgt. Diese Frequenzlücke ist zu groß, um mit den Methoden der Radiofrequenztechnik gemessen zu werden. Daher wurde das Konzept der optischen Intervallteiler verwendet. Bei diesem Verfahren wird eine Frequenzlücke $\Delta f = f_2 - f_1$ zwischen zwei Lasern mit den Frequenzen f_1 und f_2 durch zwei dividiert, indem die zweite Harmonische, $2f_3$, eines dritten Lasers auf die Summenfrequenz, $f_1 + f_2$, der beiden ersten Laser phasenstabilisiert wird: $2f_3 = f_1 + f_2 \Longrightarrow f_3 = (f_1 + f_2)/2$. Dieser halbiert dann das Frequenzintervall zwischen den ersten beiden Lasern. Durch das Hinzufügen eines weiteren Lasers in die Lücke zwischen f_2 und f_3 (oder f_1 und f_3) wird die Lücke erneut um einen Faktor zwei reduziert. Mit einer vierstufigen Teilerstufenkette, die mit kompakten Laserdioden aufgebaut ist, wurde die oben erwähnte Frequenzlücke von 1 THz in eine zählbare Radiofrequenz von 66 GHz geteilt. Auf diese Weise wurde die 1S–2S Übergangsfrequenz zum ersten Mal phasenstarr mit der Frequenz des Methanstandards verbunden. Die Meßgenauigkeit ließ sich somit um einen Faktor 54 steigern. Zur Kalibrierung wurde der Methanstandard an eine Frequenzkette der Physikalisch Technischen Bundesanstalt (PTB) angeschlossen, die einen phasenkohärenten Vergleich mit den dortigen Cäsium-Atomuhren erlaubt.

Die mit der Garchinger Frequenzkette gemessene 1S–2S Resonanzfrequenz im Wasserstoff beträgt $f_{1S2S}^{H} = 2$ 466 061 413 187, 34(84) kHz [1, 2, 3]. Diese Frequenz wurde inzwischen in die vom Comité international des poids et mesures (CIPM) empfohlene Liste zur Realisierung des Meters aufgenommen [4]. Außerdem wurde die Wasserstoff–Deuterium– Isotopieverschiebung dieses Übergangs gemessen. Dies wurde durch die Verwendung eines

optischen Frequenzkamm-Generators, eines sehr effizienten elektrooptischen Modulators möglich, der von Motonobu Kourogi vom Tokyo Institute of Technology in unserem Labor aufgebaut worden war. Mit diesem Gerät gelang es, in sehr kurzer Zeit zwischen den Isotopen zu wechseln und somit die hohe Stabilität des Methanstandards auszunutzen. Das Ergebnis der Messung der Isopieverschiebung lautet: $f_{1S2S}^D - f_{1S2S}^H = 670\ 994\ 334, 64(15)\ \text{kHz}$ [5]. Daraus ergibt sich ein Wert für die 1S–2S Übergangsfrequenz im Deuterium. Zusammen mit der kürzlich von F. Biraben und Mitarbeitern an der Ecole Normale Supérieure in Paris bestimmten 2S–8D Übergangsfrequenz in Wasserstoff und Deuterium sowie anderen experimentellen und theoretischen Ergebnissen kann aus unseren Messungen ein Wert für die 1S Lamb-Verschiebung in Wasserstoff, $L_{1S}^{H} = 8172, 876(29)$ MHz, und Deuterium, $L_{1S}^D = 8184,016(30)$ MHz, angegeben werden. Außerdem ergibt sich ein verbesserter Wert für die Rydberg-Konstante von $R_{\infty} = 10~973~731,568~646(89)$ m⁻¹. Wegen der hohen Präzision können die Kerngrößeneffekte, die nur einen relativen Beitrag von 10^{-5} zur gemessenen Isotopieverschiebung liefern, eindeutig separiert werden. Man erhält die Differenz der Ladungsradien von Proton und Deuteron von $r_{d,ch}^2 - r_{p,ch}^2 = 3,821 \ 2(15) \ \text{fm}^2$ sowie den Deuteron-Strukturradius von $r_{d,str} = 1,975 35(85)$ fm.

Durch die Verfügbarkeit des optischen Frequenzkamm–Generators konnte die Frequenzkette an einer Zwischenstufe zur D2–Linie des Cäsiums bei 852,3 nm (352 THz) erweitert werden. Die optischen Frequenzmessungen an einer Zelle ergaben für die Cäsium–D2– Linie $f_{CS} = 351\ 725\ 718\ 460(36)\ \text{kHz}$. Alle hier genannten Ergebnisse stellen die zur Zeit genauesten Werte der entsprechenden Größe dar.

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung					
2 Theorie des Wasserstoffatoms					
3	3 Das Wasserstoff–Spektrometer				
4	Die	Frequ	enzkette von 3,39 μ m bis 121 nm	15	
	4.1	Das P	rinzip der Frequenzkette	15	
		4.1.1	Die Frequenzkette in der Übersicht	15	
		4.1.2	Die nichtlinearen optischen Prozesse	17	
		4.1.3	Der optische Phasenregelkreis	20	
		4.1.4	Rauscharme Schwebungssignale	25	
	4.2	4.2 Die Komponenten der Frequenzkette		31	
		4.2.1	Der HeNe/CH ₄ –Standard bei 3,39 μm (88THz) $~\ldots~\ldots~\ldots$.	31	
		4.2.2	Der NaCl:OH ⁻ Farbzentrenlaser bei 1,7 μm (177 THz) $~\ldots~\ldots~$	37	
		4.2.3	Die gitterstabilisierten Laserdioden	38	
		4.2.4	Die optischen Teilerstufen	40	
		4.2.5	Der optische Frequenzkamm–Generator	45	
	4.3	4.3 Kalibrierung des HeNe–Standards			

5	Ergebnisse der Wasserstoff–Messungen					
	5.1 Die 1S–2S Absolutfrequenz		55			
	5.2 Die Wasserstoff–Deuterium–Isotopieverschiebung		58			
	5.3	Die 1S Lamb–Verschiebung und die Rydberg–Konstante	62			
	5.4	Der Deuteron Struktur– und Ladungsradius	66			
6	Abs	Absolutfrequenzmessung der Cäsium–D2–Linie 7				
7	Ver	Vergleich von OFC–Generator und Teilerstufen				
8	Aus	Ausblick				
	8.1	Der optische Frequenzzähler	87			
	8.2	Optische Frequenzmessung mit Solitonen	89			
9	Anl	Anhang				
	9.1	Die Frequenzketten Gleichungen	97			
		9.1.1 1S–2S Absolutfrequenz	97			
		9.1.2 Isotopieverschiebung	98			
	9.2	Fehlerbetrachtung für R_{∞} und L_{1S}	99			
	9.3	9.3 AC– und DC–Stark–Verschiebung der S–Zustände				
	9.4	0.4 Justage der Teilerstufenkette				
	9.5	Bei "Physical Review Letters" abgedruckte Artikel	109			

1. Einleitung

Die Spektroskopie am Wasserstoff, dem einfachsten atomaren System, hat die Entwicklung einer Reihe wichtiger physikalischer Theorien inspiriert. Fortschritte in der Experimentiertechnik, die zur Steigerung des Auflösungsvermögens beitrugen, haben immer wieder zu grundlegend neuen Einsichten geführt. Man denke dabei insbesondere an die Dirac-Theorie und die Quantenelektrodynamik. Die theoretischen Erkenntnisse über viele andere Atome sind durch Näherungsverfahren gewonnen worden, die zum Teil von den Ergebnissen des Wasserstoffatoms abgeleitet wurden.

Seit den Anfängen der Quantenmechanik hat das Wasserstoffatom eine entscheidende Rolle für die Weiterentwicklung dieser Theorie gespielt [6]. Die schon 1885 von Balmer empirisch gefundene Beziehung zwischen den Spektrallinien der Balmer Serie $\lambda_n \propto n^2/(n^2-2^2)$ wurde von Rydberg auf andere chemische Elemente übertragen und 1908 von Ritz zur Rydberg–Formel, in der der heute üblichen Schreibweise $1/\lambda_{nn'} = R_{\infty}(1/n^2 - 1/n'^2)$, auf die anderen Serien des Wasserstoffatoms erweitert. Die von Niels Bohr 1913 zunächst ad hoc eingeführte Quantisierungsbedingung konnte diese Formel deuten und die in ihr auftretende Rydberg-Konstante auf andere Naturkonstanten zurückführen: $R_{\infty} = m_e c \alpha^2 / 2h$. Die Verwendung von elliptischen Elektronenbahnen in der Theorie führte dann 1921 zum Bohr-Sommerfeldschen Atommodell mit Nebenquantenzahlen, das zusammen mit dem Pauli–Prinzip 1924 die Systematik des Periodensystems der chemischen Elemente erklären konnte. Die zunächst unverstandene Quantenbedingung von Niels Bohr konnte dann durch die 1926 aufgestellte Schrödinger-Gleichung gedeutet werden. Angewendet auf das Wasserstoffatom ergeben sich aus dieser Gleichung die Orbitale, die auch zur anschaulichen Darstellung chemischer Bindungen herangezogen werden. Spektroskopische Befunde am Wasserstoffatom haben immer wieder zur Verfeinerung der Quantentheorie beigetragen. Durch die 1928 aufgestellte Dirac-Gleichung gelang die relativistisch korrekte Erweiterung der Schrödinger–Theorie. Aus ihr ergab sich auch die seit 1887 bekannte und 1916 von Sommerfeld als relativistische Korrektur zum Bohr'schen Modell gedeutete Feinstruktur der Spektrallinien im Wasserstoff. Der in dieser Gleichung implizit enthaltene Spin macht auch die Hyperfeinstruktur verständlich. Die sich aus der Dirac-Gleichung ergebenden und zunächst unverstandenen negativen Energiezustände wurden später mit der 1932 entdeckten Antimaterie in Verbindung gebracht. Den jüngsten, durch die Wasserstoff-Spektroskopie ausgelösten Entwicklungschub der Quantenmechanik erbrachte die von Lamb und Retherford 1947 entdeckte Lamb-Verschiebung des 2S Niveaus [7]. Diese Verschiebung der Energieniveaus stellt eine Abweichung von der Dirac–Theorie dar. Sie läßt sich nur zum Teil durch die nicht enthaltenen Rückstoß–Korrekturen durch die endliche Kernmasse erklären. Die verbleibenden Korrekturen kann die seit 1950 von Feynman, Schwinger und Tomonaga entwickelte Quantenelektrodynamik (QED) erklären. Seitdem gab es dramatische Steigerungen sowohl in der Präzision der theoretischen Berechnungen als auch auf der experimentellen Seite, ohne daß sich neue Diskrepanzen aufgetan haben. Die vollständig quantenmechanische Beschreibung der elektromagnetischen Wechselwirkung ist die derzeit am genauesten verifizierte physikalische Theorie überhaupt.

Zu den immer genauer werdenden Vergleichen zwischen Theorie und Experiment gehören die Radiofrequenzmessungen der $2S-2P_{1/2}$ Lamb-Verschiebung im Wasserstoff und die Bestimmung des gyromagnetischen Verhältnisses des Elektrons und des Myons [8]. Die mit Abstand größte Lamb-Verschiebung des 1S Niveaus konnte wegen des Fehlens eines nahegelegenen P-Zustands lange Zeit nicht beobachtet werden. Seit der ersten Bestimmung der 1S Lamb-Verschiebung von Herzberg im Jahre 1956 und der vorliegenden Arbeit konnte die Meßgenauigkeit um fast 5 Größenordnungen gesteigert werden, ohne daß sich eine gravierende Abweichung zur Theorie der Quantenelektrodynamik ergeben hat. Ein Meilenstein für die dazu notwendige Anregung des 1S–2S Übergangs war die Entwicklung eines Dauerstrich-Farbstofflasers bei 486 nm [9]. Sein frequenzverdoppelter Ausgangsstrahl kann den 1S-2S Übergang mit einem Zweiphotonen-Prozeß anregen. Auf diese Weise entfällt in 1. Ordnung der bis dahin limitierende Doppler–Effekt. Die Frequenz des Lasers wurde dabei relativ zu molekularen Resonanzen in Tellur gemessen. Eine weitere wichtige Verbesserung ergab sich durch die Verwendung eines Atomstrahls, weil sich dadurch der systematische Effekt der Druckverschiebung drastisch verringern ließ und eine längere Wechselwirkungszeit der Atome mit dem Lichtfeld die Auflösung erhöhte [10].

Mittlerweile ist die nur auf optischem Wege mögliche Messung der 1S Lamb-Verschiebung genauso präzise wie die traditionellerweise genauesten Messungen mit Hilfe von Radiofrequenzen. Dies wurde möglich durch das Konvertieren von optischen Frequenzen in den Radiofrequenzbereich. Seit der Definition des Meters über die Festlegung der Lichtgeschwindigkeit und der Sekunde im Jahre 1983 spielt es keine Rolle, ob die Wellenlänge eines Übergangs oder dessen Frequenz bestimmt wird. Wegen der unvermeidlichen Abbildungsfehler, Brechungsindexvariationen und Beugungseffekte ist es trotz großer Fortschritte problematisch, eine perfekte ebene Welle zu erzeugen, die einen präzisen Wellenlängenvergleich erlaubt. Darauf beruht die Überlegenheit der optischen Frequenzmessung.

Zur genaueren Bestimmung der Absolutfrequenz des 1S–2S Übergangs wurde daher eine Frequenzkette im Rahmen der Doktorarbeiten von Thomas Andreae [11], Wolfgang König [12] und Robert Wynands [13] aufgebaut, die den Farbstofflaser mit einem sehr präzisen methanstabilisierten Helium–Neon Laser bei 3,39 μ m vergleichen kann. Der Frequenzvergleich beruht dabei auf der nahen Koinzidenz des 1S–2S Übergangs mit der 28–ten

Harmonischen des Methanstandards. Die Aufgabe der Frequenzkette ist es, diese Harmonische zu erzeugen. Weil die Koinzidenz nicht perfekt ist, entsteht eine Frequenzlücke, die zu groß ist, um mit den Methoden der Radiofrequenztechnik gemessen zu werden. Diese Lücke wurde bei der ersten Messung mit der Frequenzkette 1992 durch Abzählen der Moden eines Fabry-Perot-Interferometers überbrückt [14]. Weil sich durch das Summieren vieler Moden winzige Fehler in der Bestimmung des freien Spektralbereichs (der Frequenzabstand der Moden) stark vervielfachen, wurde in der vorliegenden Arbeit die phasenkohärente Überbrückung der Frequenzlücke mit optischen Intervallteilerstufen realisiert.

Die Messungen bei der PTB haben ergeben, daß der von uns verwendete Methanstandard eine Reproduzierbarkeit von $2, 6 \times 10^{-13}$ besitzt. Die Bestimmung der 1S–2S Frequenz ist nur bis zum (sekundären) Methanstandard phasenstarr und von dort phasenstarr bis zum (primären) Cäsium–Standard. Eine Möglichkeit für einen zukünftigen vollständig phasenstarren Vergleich des Wasserstoffübergangs mit der Cäsium–Frequenz bei 9,2 GHz, für dessen Realisierung nur Laserdioden verwendet werden, ist in Abschnitt 8.1 beschrieben. Durch die jüngsten Fortschritte bei der Darstellung der Wasserstoffresonanz und der Modellierung der Linienform gelingt es nun, die Linienmitte auf etwa $1, 5 \times 10^{-14}$ zu reproduzieren [15]. Eine kompakte und zuverlässige Möglichkeit der Konvertierung von optischen Frequenzen in Radiofrequenzen ist daher im Hinblick auf eine mögliche Verwendung der Wasserstoffresonanz als Frequenzstandard interessant. Auch die praktische Verwendbarkeit hochpräziser optischer Frequenzen mit Hilfe gefangener Ionen hängt von der Möglicheit einer Konvertierung in den Radiofrequenzbereich ab.

2. Theorie des Wasserstoffatoms

Der Hauptbeitrag zu den Wasserstoff-Energieniveaus mit der Hauptquantenzahl n und dem Elektronendrehimpuls j ergibt sich aus der Dirac-Gleichung für den Grenzfall eines unendlich schweren Kerns in Frequenzeinheiten (Hz) zu:

$$E_{\text{Dirac}} = -\frac{2cR_{\infty}}{N(N+n+\gamma-k)}$$
(2.1)

 mit

$$N = \sqrt{n^2 - 2(n-k)(k-\gamma)}$$
 (2.2)

$$k = j + 1/2$$
 (2.3)

$$\gamma = \sqrt{k^2 - \alpha^2}. \tag{2.4}$$

Hierbei ist $R_{\infty} = m_e c \alpha^2/2h$ die Rydberg–Konstante und $\alpha = e^2/4\pi\varepsilon_o\hbar c$ die Feinstruktur– Konstante. Die Dirac–Energien hängen nicht vom elektronischen Bahndrehimpuls l sondern nur vom elektronischen Gesamtdrehimpuls j ab. Die größte Korrektur zu dieser Gleichung wird durch die endliche Kernmasse m_N verursacht (sog. Rückstoß–Korrektur). In der Schrödinger–Theorie läßt sich dieses Problem exakt durch das Ersetzen der Elektronenmasse m_e durch die reduzierte Masse $m_e m_N/(m_e+m_N)$ beheben. Für die relativistische Dirac–Theorie kennt man wegen der durch die Kernbewegung bedingten unterschiedlichen Eigenzeiten in den Bezugsystemen des Elektrons und des Kerns noch nicht einmal einen exakten Zweikörper–Hamiltonoperator. Man kann den Einfluß der endlichen Kernmasse jedoch durch eine Reihenentwicklung in der Feinstrukturkonstanten α beschreiben. Der vollständige Ausdruck für die Energie in Hz der Niveaus im Wasserstoffatom lautet [16, 17]¹:

$$E = R_{\infty}e(n, j, \alpha, r) + E_{HFS}(n, j, l, F) + L(n, j, l, \alpha, r)$$

$$(2.5)$$

mit

$$e(n,j,\alpha,r) := -\frac{2c}{N(N+n+\gamma-k)} \left(\frac{1}{1+1/r} + \frac{1}{2r(1+1/r)^3}\frac{\alpha^2}{N(N+n+\gamma-k)}\right), \quad (2.6)$$

¹Der in Ref.[16] und Ref.[17] gegebene Ausdruck mit $c = \hbar = 1$ muß mit c^2/h multipliziert werden, um die Energie in Hz zu bekommen. Er enthält zusätzlich die Ruheenergien von Elektron und Proton, die bei der Berechnung von elektronischen Übergängen heraus fallen. Außerdem wurde das dort definierte f(n, j) - 1 durch $f(n, j) - 1 = -\alpha^2/N(N + n + \gamma - k)$ ersetzt, um möglichen Rundungsfehlern wegen $f(n, j) \approx 1$ vorzubeugen.

wobei $r := m_N/m_e$ das Verhältnis aus Kern- und Elektronenmasse ist. Dieses Verhältnis läßt sich mit Hilfe der Massenspektroskopie in Paul-Fallen sehr genau aus den Zyklotronfrequenzen bestimmen (siehe [18] für das Proton-Elektron Massenverhältnis und [19] für das Deuteron-Proton Massenverhältnis). Deswegen wird es hier statt der reduzierten Masse verwendet. Der erste Term in Gl.(2.5) ist die Dirac-Energie des Zustands, an dem die größten Rückstoß-Korrekturen bereits angebracht sind. Er geht für $r \to \infty$ in Gl.(2.1) über. Abbildung 2.1 veranschaulicht die Beiträge zur Gesamtenergie.



Abbildung 2.1: Energieniveaus im Wasserstoffatom.

Der zweite Term in Gl.(2.5) gibt die vom Gesamtdrehimpuls des Atoms F abhängige Hyperfeinstruktur-Aufspaltung an [20]:

$$E_{HFS}(n,j,l,F) = \frac{\alpha^2 g_N R_\infty c(1+\delta_n)}{n^3 r} \frac{F(F+1) - I(I+1) - j(j+1)}{j(j+1)(2l+1)}.$$
 (2.7)

Hierbei bezeichnet g_N den Kern–g–Faktor, das Verhältnis aus dem magnetischen Moment μ in Kernmagnetons μ_N zum Kernspin I ($\mu = \mu_N g_N I$) und $|\delta_n| \approx 10^{-3}$ eine kleine relativistische Korrektur, deren größter zustandsabhängiger Beitrag

$$\delta_n^o = \alpha^2 \left(\frac{11}{6} \left(1 - \frac{1}{n^2} \right) + \frac{3}{2n} \right)$$
(2.8)

ist. Wegen der n^{-3} Abhängigkeit nimmt die absolute Größe der HFS rasch mit der Hauptquantenzahl ab. Die Hyperfeinstruktur ist nur für tiefgelegene Zustände (n=1 oder n=2) sehr genau bekannt. Aus Gl.(2.7) und Gl. (2.8) kann sie für die höheren Zustände mit einer Genauigkeit von etwa 10^{-6} aus den tiefergelegenen berechnet werden [21]. Die Hyperfeinstruktur wird meist sofort von den experimentellen Werten abgezogen und soll daher hier nicht weiter beachtet werden².



Abbildung 2.2: Einschleifen–Selbstenergie (linke Seite): das Elektron (gerade Linie) wechselwirkt mit sich selbst (gewellte Photonenlinie). Einschleifen–Vakuumpolarisation (rechte Seite): ein Elektron–Positron–Paar schirmt das äußere Potential (Kreuz) ab.

Die eigentliche theoretische Schwierigkeit liegt in der Berechnung aller verbleibenden Rückstoß–Korrekturen und der QED Beiträge, die in dem Term $L(n, j, l, \alpha, r)$, der Lamb– Verschiebung, zusammengefaßt sind. Dieser skaliert in guter Näherung mit n^{-3} . Die QED– Beiträge zu $L(n, j, l, \alpha, r)$ setzen sich aus der zustandsabhängigen Selbstenergie des Elektrons und der ebenfalls zustandsabhängigen Vakuumpolarisation zusammen. Man spricht von strahlenden Korrekturen, weil die dazugehörigen Feynman–Diagramme Schleifen von Photonen (Selbstenergie) bzw. Elektron–Positron–Paaren (Vakuumpolarisation) enthalten (Abb. 2.2). Beide Effekte treten auch beim freien Elektron auf und liefern unendliche Energiebeiträge³. Erst die beobachtbare Differenz der Selbstenergie und der Vakuumpolarisation zwischen einem gebundenen und einem freien Elektron ist eine endliche Größe und tritt in Form einer Verschiebung der Energieniveaus in Erscheinung. Die Beiträge durch die zustandsabhängige Selbstenergie zu $L(n, j, l, \alpha, r)$ sind etwa um einen Faktor 50 (1S und 2S Zustand) größer als die Beiträge durch die zustandsabhängige Vakuumpolarisation. Außerdem ist die Lamb–Verschiebung für Zustände mit $l \neq 0$ bei gleicher Hauptquantenzahl um etwa zwei Größenordnungen kleiner als für S–Zustände.

Die durch Gl.(2.5) gegebene Definition der Lamb-Verschiebung als das, was nach Abzug des ersten Terms und der Hyperfeinstruktur übrig bleibt, ist nicht ganz einheitlich in der Literatur. Hier soll jedoch diese weit verbreitete Definition nach Ref.[16, 17] gelten. Zur Berechnung der Lamb-Verschiebung läßt sich diese in eine Potenzreihe in α entwickeln.

²Bei den S-Zuständen gibt es von der theoretischen Seite keine Probleme bei der Separation der Hyperfeinstruktur (die gemessene Aufspaltung) und der Lamb–Verschiebung. Bei den P-Zuständen ist die Landésche Intervallregel der Hyperfeinstruktur, wegen der $P_{1/2}$ – $P_{3/2}$ Mischung mit gleichem F, nicht ganz exakt erfüllt [22].

 $^{^3 \}rm Was$ zumindest bei der Selbstenergie, die ja für eine klassische Punktladung auch unendlich groß ist, verständlich ist.

Für S-Zustände ergibt sich der folgende Ausdruck, der die größten, sog. Einschleifen-Korrekturen, $[16, 17]^4$ enthält:

$$L^{ES}(n,\alpha,r) = \frac{m_e \alpha^5 c^2}{\pi n^3 h} \left(F^{SE}(n,\alpha,r) + F^{VP}(n,\alpha,r) \right)$$
(2.9)

mit

$$F(n, \alpha, r) = A_{40} + A_{41} \ln(\alpha^{-2}) + A_{50}\alpha + \alpha^2 \left(A_{60} + A_{61} \ln(\alpha^{-2}) + A_{62} \ln^2(\alpha^{-2}) \right) + \alpha^3 G.$$
(2.10)

Diese Definition der Entwicklungskoeffizienten gilt gleichermaßen für die Selbstenergie und die Vakuumpolaristion, jedoch mit anderen Koeffizienten. $\alpha^3 G$ ist eine Abschätzung der nicht berechneten Terme höherer Ordnung. Numerische und analytische Resultate für die Koeffizienten findet man in Ref.[16, 23]. Weitere Beiträge zur Lamb-Verschiebung sind Rückstoßkorrekturen, die nicht mehr in Gl.(2.6) enthalten sind: Ein Term $O(\alpha^4)$ für $l \neq 0$ (fünfter Term in Gl.(19) aus Ref.[16]) und Korrekturen höherer Ordnung für alle l (Gl.(32,34) aus Ref.[16]). Ab der Ordnung $O(\alpha^6)$, wird die Unterscheidung zwischen strahlenden- und Rückstoßkorrekturen für einige Terme sinnlos, so daß man von strahlenden Rückstoßkorrekturen spricht (Gl.(36) aus Ref.[16]). QED Korrekturen, die zu Feynman-Diagrammen mit zwei Schleifen gehören, werden durch einen zu Gl.(2.9) analogen Ausdruck angegeben [16]. Für S-Zustände gilt:

$$L^{ZS}(n,\alpha,r) = \frac{\alpha^6 c^2 m_e}{\pi^2 n^3 h} F(n,\alpha,r)$$
(2.11)

mit

$$F(n,\alpha,r) = B_{40} + \alpha B_{50} + \alpha^2 \left(B_{63} \ln^3(\alpha^{-2}) + B_{62} \ln^2(\alpha^{-2}) + \dots \right).$$
(2.12)

Numerische und analytische Resultate für die Koeffizienten findet man ebenfalls in Ref.[16]. Für Deuterium gibt es zwei zusätzliche Korrekturen. Einer ist durch den Bosonen–Charakter des Deuterons begründet (Gl.(40) aus Ref.[16]) und der andere tritt durch die Polarisierbarkeit des Deuterons auf (Gl.(39) aus Ref.[16]). Daneben gibt es noch eine Korrektur wegen der vom Elektronenzustand abhängigen Selbstenergie des Kerns und seiner endlichen Größe (Gl.(38) aus Ref.[16]). Die Kerngrößenkorrektur (1. Term von Gl.(38) aus Ref.[16])

$$L^{KG}(n,j,\alpha,r) = \frac{8\pi^2 \alpha^4 c^4 m_e^3}{3n^3 h^3 (1+1/r)^3} r_{p,ch}^2, \qquad (2.13)$$

ist der einzige Term in $L(n, j, l, \alpha, r)$, dessen Unsicherheit durch eine experimentelle Größe, nämlich den quadratischen Proton–Ladungsradius $r_{p,ch}$ dominiert ist⁵. Für diesen existieren widersprüchliche Werte in der Literatur [24, 25, 26, 27]. Bevor der unerwartet große

⁴Der 5te Term in Gl.(19) aus Ref.[16] verschwindet für S-Zustände. Der Koeffizient A_{50} wurde in Ref.[16] mit falschem Vorzeichen abgedruckt.

 $^{^5 \}mathrm{Die}$ Unsicherheiten in α und m_p/m_e limitieren momentan nicht den Vergleich zwischen Theorie und Experiment.

Zustand	$r_{p,ch} = 0.805(11) \text{ fm}$	$r_{p,ch} = 0.817(8) \text{ fm}$	$r_{p,ch} = 0.862(12) \text{ fm}$	$r_{p,ch} = 0.847(8) \text{ fm}$
1S	8172,648(37) MHz	8172,678(31) MHz	8172,797(40) MHz	8172,756(33) MHz
2S	1044,984(5) MHz	1044,987(4) MHz	1045,002(5) MHz	1044,997(4) MHz

Tabelle 2.1: Theoretische Werte für die Wasserstoff-Lamb-Verschiebung $L(n, j, l, \alpha, r)$ nach Ref.[16] mit $r^H = m_p/m_e = 1$ 836, 152 666 5(40) [18] (m_p =Masse des Protons) und $1/\alpha = 137,035$ 999 44(57) [29] für verschiedene Werte des Proton-Ladungsradius [24, 25, 26, 27].

Beitrag B_{50} zu Gl.(2.11) von Krzysztof Pachucki berechnet wurde [28, 16], schien es, als ob der älteste Wert für den Proton Ladungsradius $r_{p,ch} = 0.805(11)$ fm [24] besser mit den experimentellen Ergebnissen übereinstimme. Mit dem Beitrag von B_{50} paßt aber nun der neuere Wert $r_{p,ch} = 0.862(12)$ fm [26] besser zu den experimentellen Ergebnissen am Wasserstoff. Tabelle 2.1 enthält die theoretischen Werte für die 1S und 2S Lamb-Verschiebungen, die sich aus den verschiedenen Werten für $r_{p,ch}$ ergeben⁶.

⁶Dabei wurde $B_{60} = 0$ gesetzt, weil noch nicht alle Beiträge für diesen Koeffizient bekannt sind.

3. Das Wasserstoff–Spektrometer

Der Hauptgegenstand dieser Arbeit ist die Absolutfrequenzmessung der 1S–2S Resonanz im Wasserstoff bei 121 nm (2466 THz). Das Wasserstoff–Spektrometer wurde im Rahmen der Doktorarbeiten von Reinald Kallenbach [30] und Claus Zimmermann [31] aufgebaut und von Ferdinand Schmidt–Kaler [32], Dietrich Leibfried [33] und Andreas Huber [15] weiter verbessert. Die Details des Spektrometers finden sich in deren Doktorarbeiten und in Ref.[10, 34]. Es besteht aus einem Farbstofflaser, dessen frequenzverdoppeltes Licht den 1S–2S Übergang in einem Doppler–freien Zweiphotonen–Prozeß anregt [35, 36] (siehe Abbildung 3.1). Der Farbstofflaser wird bei einem Viertel der 1S–2S Resonanzfrequenz, das heißt bei 486 nm, betrieben. Um eine möglichst geringe Linienbreite zu erreichen, wird er mit dem Verfahren von Pound, Drever und Hall [37] auf einen temperaturgeregelten Zerodur–Resonator (Finesse 57000) stabilisiert. Mit Hilfe eines akustooptischen Modulators (AOM) läßt sich der Farbstofflaser relativ zum Resonator verstimmen.



Abbildung 3.1: Schema des Wasserstoff-Spektrometers zur Zweiphotonen-Anregung der 1S-2S Resonanz bei 243 nm. Zur Detektion der metastabilen 2S Atome wurden diese mit einem elektrischen Quench-Feld mit dem schnell zerfallenden $2P_{1/2}$ Zustand gemischt, wodurch sie ein Lyman- α -Photon (1S-2P Übergang) emittieren.

Die Resonanzfrequenz ω_0 der Wasserstoffatome, die aus der gekühlten Düse in der Vakuumapparatur (Druck etwa 10⁻⁵ mbar) austreten (Abb. 3.1), ist aufgrund der Bewegung mit einem Winkel φ relativ zum Wellenzahlvektor Doppler-verschoben [38]:

$$\omega_0' = \omega_0 \frac{\sqrt{1 - v^2/c^2}}{1 + \cos(\varphi)v/c} = \omega_0 \left(1 - \cos(\varphi)\frac{v}{c} + \cos(\varphi)\frac{v^2}{c^2} - \frac{1}{2}\frac{v^2}{c^2} + O(\frac{v^3}{c^3}) \right).$$
(3.1)

Die Bewegungskomponente $\cos(\varphi)v$ entlang des Wellenzahlvektors (=Resonatorachse), bewirkt eine geometrische Verkürzung oder Verlängerung in der Abfolge der Wellenfronten um den Faktor $1/(1 + \cos(\varphi)v/c)$. Die Zeitdilatation $\sqrt{1 - v^2/c^2}$ bewirkt, unabhängig von der Bewegungsrichtung, eine Rotverschiebung der beobachteten Frequenz ω'_0 .

Um eine (in 1. Ordnung in v/c) Doppler-freie Linie zu erhalten, werden zwei gegenläufige Laserstrahlen $(\cos(\varphi) = -1 \text{ und } \cos(\varphi) = +1)$, mit der jeweils halben Frequenz verwendet, so daß aus Gl.(3.1) nur noch der vierte Term, $-v^2/2c^2$, übrig bleibt [35]¹. Das Ergebnis ist die unsymmetrische Linie, die im oberen Teil der Abbildung 3.2 dargestellt ist. In einem Stehwellenresonator (Finesse= $80, w_o = 150 \mu m$), der das anregende Licht wegen der relativ kleinen Zweiphotonen–Übergangswahrscheinlichkeit resonant überhöht, ist die Gegenläufigkeit der Strahlen bei guter Justage automatisch garantiert. Durch die Polarisation der anregenden Strahlen und die Frequenz des Lasers, wird die gewünschte Komponente des Übergangs ausgewählt [36]. Für den 1S–2S Übergang trägt, wegen $\Delta i = 0$ nur die Rang-0-Komponente des Übergangsoperators bei, daher gilt auch $\Delta F = \Delta M_F = 0^2$. Um auch den Doppler-Effekt 2. Ordnung, der bei einer mittleren Geschwindigkeit der Wasserstoffatome von $v = \sqrt{2KT/M} = 290$ m/s (bei 5 K) immerhin noch 1,1 kHz bei der 1S–2S Frequenz beträgt, weiter zu reduzieren, haben Dietrich Leibfried und Andreas Huber die Methode des verzögerten Nachweises verwendet [33, 15, 40]. Dabei wird die Fluoreszenz aus dem n = 2 Niveau erst nach dem Ablauf einer Zeitspanne τ nach dem Ausschalten des anregenden Lichts detektiert. Deshalb können nur Atome, die langsamer als $v = L/\tau$ sind, wobei L die Flugstrecke von der Düse zum Detektor³ ist, zum Signal beitragen. Die wirkliche Doppler-Verschiebung ist sogar noch etwa viermal kleiner (bei $L/\tau \approx 130$ m/s) als die so abgeschätzte maximale Doppler-Verschiebung [1, 15], da die (zwar wenigen) langsamen Atome mehr zum Signal beitragen, weil sie sich länger im anregenden Licht befinden und sich dadurch die Anregungswahrscheinlichkeit erhöht. Durch diese Selektion der kalten Atome wird außerdem die Durchflugsverbreiterung reduziert. Abbildung

¹Für die hier gleiche (lineare) Polarisation im vor- und rücklaufenden Strahl, ist die nicht Dopplerfreie Absorption von zwei Photonen aus derselben Richtung genauso wahrscheinlich, wie die Dopplerfreie Absorption. Da dieser Doppleruntergrund aber sehr viel breiter ist, trägt er pro Frequenzintervall praktisch nichts zur Linie bei.

²Beides macht man sich z.B. mit dem Wigner-Eckart-Theorem [39] klar: einmal auf $|jm_j\rangle \Rightarrow$ Rang=0 und einmal auf $|FM_F\rangle$ angewendet.

³Bei allen Messungen war L zwischen 79 mm und 144mm.

3.2 zeigt die Auswirkung der Verzögerung und den Einfluß der Temperatur der Düse auf die Rotverschiebung durch den Doppler-Effekt 2. Ordnung. Bei den in Abschnitt 5.1 zur Auswertung herangezogenen Linien wurde die Temperatur der Düse noch weiter reduziert und die Verzögerung weiter erhöht, als in der unteren Reihe von Abbildung 3.2 illustriert ist.



Abbildung 3.2: Linienformen der 1S–2S Resonanz. Linke Seite: Düsentemperatur 100 K. Rechte Seite: Düsentemperatur 40 K. Obere Reihe: Nachweis ohne Verzögerung. Untere Reihe: Nachweis mit 260 μ s Verzögerung. Die Länge der Flugstrecke betrug L=133 mm. Die Frequenzachse gibt die Absolutfrequenz des Übergangs einschließlich der Hyperfeinstruktur an (Gl.(9.3) bzw. Gl.(9.17)).

Die Magnetfeldabhängigkeit eines Zustands $F = I \pm j$ mit j = 1/2 und beliebigem Kernspin I, beschreibt die Breit-Rabi-Formel [20, 41]:

$$E(B) = -\frac{A}{4} + M_F g_N \mu_N B \pm \frac{A}{2} \left(I + \frac{1}{2} \right) \sqrt{1 + \frac{4M_F}{2I+1}x + x^2},$$
(3.2)

mit $x = \frac{(g_j \mu_B - g_N \mu_N)B}{A(I+1/2)}$, dem A-Faktor der elektrischen Quadrupol-Hyperfeinwechselwirkung, dem Bohr- und Kernmagneton μ_B , μ_N und den dazugehörigen g-Faktoren g_j und g_N .

Um eine von Streumagnetfeldern unabhängige Linienmitte zu erhalten, werden im Wasserstoff die $F = 1, M_F = \pm 1 \rightarrow F = 1, M_F = \pm 1$, und im Deuterium die $F = 3/2, M_F = \pm 3/2 \rightarrow F = 3/2, M_F = \pm 3/2$ Komponenten, die mit den oben erwähnten Zweiphotonen-Auswahlregeln verträglich sind, angeregt. In diesem Fall geht Gleichung (3.2) sowohl für den Grundzustand, als auch für den angeregten Zustand mit $M_F = \pm F = \pm (I + \frac{1}{2})$, über in:

$$E(B) = -\frac{A}{4} \pm \left(I + \frac{1}{2}\right) g_N \mu_N B \pm A \left(I + \frac{1}{2}\right) \sqrt{(1 \pm x)^2} = -\frac{A}{4} \pm I g_N \mu_B B + g_j \mu_B B + \left(I + \frac{1}{2}\right) \frac{A}{2} = I \frac{A}{2} + (g_j \pm I g_N) \mu_B B,$$
(3.3)

welche die gleiche Magnetfeldabhängigkeit für den angeregten und den Grundzustand zeigt, weil der Magnetfeldterm nicht von A abhängt⁴. Die anderen, magnetfeldsensitiven Komponenten werden mit einem kleinen Magnetfeld von etwa 10 Gauß parallel zur Polarisation des Lasers spektral so weit verschoben, daß sie die interessierende Resonanz nicht mehr beeinflussen.

Das Wasserstoff-Spektrometer kann die Übergangsfrequenz nur mit gewissen Unsicherheiten, die in den letzten Jahren ständig reduziert wurden, darstellen. Zum Zeitpunkt der Messung wurden die größten Beiträge wie folgt abgeschätzt [34]: Der AC-Stark-Effekt verschiebt die 1S–2S Resonanz um 1,67 I Hz cm²/W (I=Laserintensität). Bei 100 mW, die in den Überhöhungsresonator eingekoppelt werden, ergibt dies eine Verschiebung von 271 Hz. Der zweitgrößte Beitrag ist der DC–Stark–Effekt mit 3,6 E^2 kHz cm²/V². Durch den Fluß der metastabilen 2S-Atome, die nicht durch ein eventuell vorhandenes Feld gequencht werden, läßt sich als Obergrenze E=100 mV annehmen. Die daraus folgende Verschiebung beträgt 180 Hz. Werden diese konservativ abgeschätzten Verschiebungen als Unsicherheit betrachtet, so ergibt sich ein Beitrag des Wasserstoff–Spektrometers zur Unsicherheit der 1S–2S Frequenz von 325 Hz, wobei der Doppler–Effekt 2. Ordnung getrennt berücksichtigt wird. Mittlerweile ist es gelungen die 1S–2S Resonanz mit einer Linienbreite von 2 kHz (bei 121 nm) aufzulösen. Mit einem von Andreas Huber entwickelten Linienform-Modell, das für die Messungen dieser Arbeit allerdings noch nicht zur Verfügung stand, ist es nun möglich die ungestörte 1S–2S Übergangsfrequenz mit einer Unsicherheit von etwa 40 Hz darzustellen [15, 40].

⁴Die g_j sind nicht vollständig zustandsunabhängig. Deswegen separieren die beobachteten M_F Komponenten im Wasserstoff mit 36 Hz und im Deuterium mit 54 Hz pro Gauß. Dies führt jedoch in 1. Ordnung nur zu einer Verbreiterung der beobachteten Linie.

4. Die Frequenzkette von 3,39 μ m bis 121 nm

4.1 Das Prinzip der Frequenzkette

4.1.1 Die Frequenzkette in der Übersicht



Abbildung 4.1: Schema der Frequenzkette. Die optischen Teilerstufen und der OFC-Generator sind in den Abbildungen 4.14 und 5.4 skizziert.

Einen Überblick über die Frequenzkette in ihrer jetzigen Form gibt Abbildung 4.1. Mit diesem Aufbau kann die Frequenz des weiter unten beschriebenen HeNe-Sekundär-Standards bei 3,39 μ m (f = 88, 4 THz) mit dem 1S–2S Übergang im Wasserstoff bei 121 nm (2466 THz) verglichen werden. Dies geschieht unter Ausnutzung des nahen Zusammenfallens der 1S-2S Resonanzfrequenz mit der 28-fachen Frequenz des HeNe-Standards. Weil die Koinzidenz nicht perfekt ist, gibt es eine für optische Frequenzen kleine, aber im Vergleich zu Radiofrequenzen recht große Lücke von $\Delta f = 1,059$ THz. Die Größe der Lücke hängt dabei offensichtlich von ihrem Platz in der Frequenzkette ab. Sie ist umso kleiner je näher sie am Standard liegt. Eine Methode der Überbrückung der Frequenzlücke, die im Verlauf dieser Arbeit diskutiert wird, stellen die optischen Teilerstufen dar [42, 43, 44, 45]. Diese lassen sich für die vorliegende Frequenzkette am besten im Wellenlängenbereich um die 850 nm realisieren, da in diesem Fall kompakte Laserdioden verwendet werden können. Weil die zweite Harmonische des Farbstofflasers einen Zweiphotonen-Übergang im Wasserstoff anregt, emittiert er bei einem Viertel der 1S–2S Frequenz. Um die Kette zu schließen, muß daher die siebte Harmonische des HeNe-Standards erzeugt werden. Mit optischer Frequenzverdopplung und der Summen- oder Differenzfrequenz-Bildung läßt sich im Prinzip jedes ganzzahlige Vielfache einer gegeben Frequenz erzeugen. Weil sieben keine ganzzahlige Potenz von zwei ist, muß es irgendwo in der Frequenzkette eine Summen- oder Differenzfrequenzbildung geben. In unserem Fall wird die Frequenz des Standards mit Hilfe eines über die Temperatur phasenangepaßten LiNbO₃ Kristalls [11] zur Frequenz des Farbstofflasers $7f - 2\Delta f$ addiert. Man hätte im Prinzip auch von der nahe bei 8f gelegenen zweiten Harmonischen der Laserdiode bei 850,6 nm $(8f - 2\Delta f = 709)$ THz) einmal die Frequenz des Standards abziehen können, um sich die Frequenz $7f - 2\Delta f$ zu beschaffen, doch dann müßte man mit einem schwachen nichtlinearen Produkt einen weiteren nichtlinearen Prozeß betreiben. Außerdem würde sich die Gesamtzahl der nichtlinearen Prozesse dadurch nicht verringern. Um die langwellige Seite der Frequenzlücke zu erreichen, muß die vierte Harmonische des Standards 4f erzeugt werden. Weil der HeNe–Standard zu schwach ist, um mit genügender Effizienz zwei nichtlineare Prozesse zu betreiben, wird ein 20 mW starker, zusätzlicher HeNe-Laser benötigt. Mit der Hälfte dieser Leistung lassen sich etwa 60 nW bei seiner zweiten Harmonischen 2f mit Hilfe eines winkelangepaßten AgGaSe₂ Kristalls erzeugen [11]. Dieser Strahl wird in seiner Leistung auf etwa 400 mW erhöht, um seine Frequenz noch einmal zu verdoppeln. Dies geschieht mit Hilfe eines Farbzentrenlasers [46, 12], der als Transferoszillator genug Leistung zur Verfügung stellt. Die Frequenz dieses NaCl:OH⁻ Farbzentrenlasers wird mit einem winkelangepaßten LiIO₃ Kristall, der sich in einem optischen Überhöhungsresonator befindet, verdoppelt [12]. Um genügend Leistung für die Uberbrückung der 1,059 THz–Lücke bereitzustellen, wird eine Laserdiode bei 848,1 nm (354 THz=4f) verwendet. Die andere Hälfte der Leistung des 20 mW HeNe–Lasers wird verwendet, um mit etwa 20 mW des Farbstofflasers in dem oben genannten LiNbO₃ Kristall die Summenfrequenz zu erzeugen. Man erhält auf diese Weise etwa 200 nW bei 423 nm (709 THz= $8f - 2\Delta f$).

4.1.2 Die nichtlinearen optischen Prozesse

Bei der Verdopplung der Frequenz von Laserstrahlung werden Kristalle verwendet, die eine große nichtlineare Suszeptibilität besitzen. Bei diesen Kristallen ist die Polarisation \vec{P} und damit die abgestrahlte Welle eine nichtlineare Funktion der elektrischen Feldstärke $\vec{P} = \hat{\chi}(\vec{E})\vec{E}$. Im allgemeinen ist die Suszeptibilität ein Tensor, denn durch Anisotropien des Kristallgitters können im Prinzip alle Komponenten der elektrischen Feldstärke \vec{E} Polarisationen in allen Raumrichtungen erzeugen. Der nichtlineare Anteil in $\hat{\chi}(\vec{E})$ ist meist um viele Größenordnungen kleiner als der lineare Anteil, so daß sich der Zusammenhang zwischen \vec{E} und \vec{P} gut in eine Potenzreihe entwickeln läßt [47, 48]:

$$P_i = \varepsilon_o \left(\chi_{ij} E_j + \chi_{ijk} E_j E_k + \chi_{ijkl} E_j E_k E_l + \dots \right).$$

$$(4.1)$$

In dieser Gleichung wird über doppelt auftretende Indizes, die für die räumlichen Komponenten stehen, summiert. Nimmt man eine Zeitabhängigkeit der elektrischen Feldstärke von $E \propto \exp(i\omega t)$ an, so erkennt man aus Gl (4.1), daß im Prinzip alle Harmonischen und, falls mehrere Felder mit unterschiedlichen Frequenzen ω vorhanden sind, alle Mischprodukte (Summen- und Differenzfrequenzen) entstehen. Um eine nennenswerte Leistung bei einer bestimmten Frequenz zu erhalten, müssen sich die von den atomaren Oszillatoren abgestrahlten Wellen in einer bestimmten Richtung kohärent aufaddieren. Im Falle der linearen Suszeptibilität ist dies in Vorwärtsrichtung immer erfüllt. Die Überlagerung mit der eingestrahlten Welle bewirkt in diesem Fall eine Phasenverschiebung (Retardierung). Aufgrund der Materialdispersion besitzen aber die nichtlinearen Produkte im allgemeinen eine andere Ausbreitungsgeschwindigkeit als die fundamentalen Wellen. Deswegen interferieren die Anteile, die an verschiedenen Stellen des Kristalls erzeugt werden, meist destruktiv. Die Effizienz läßt sich deswegen ganz erheblich steigern, falls die Ausbreitungsgeschwindigkeiten einander angeglichen werden. Um diese sogenannte Phasenanpassung zu ermöglichen, werden nichtlineare Kristalle verwendet, die zusätzlich doppelbrechend sind. Bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen besitzt diese dann eine andere Polarisation als die fundamentale Welle. Die Aufgabe besteht dann darin, einen Kristall zu finden, dessen quadratische Suszeptibilität χ_{ijk} ausreichend große Matrixelemente hat und sich phasenanpassen läßt. Über den Winkel der Polarisation der fundamentalen Welle relativ zu den kristallographischen Achsen werden die Brechungsindizes angeglichen. Allgemein läßt sich zeigen, daß die Phasenanpassungsbedingung für einen beliebigen nichtlinearen Prozeß mit dem resultierenden Wellenzahlvektor \vec{k}_f lautet: $\vec{k}_f = \sum_i \vec{k}_i$, wobei \vec{k}_i die Wellenzahlvektoren der fundamentalen Wellen sind. Für die Bildung der zweiten Harmonischen bedeutet dies $n_{\omega} = n_{2\omega}$, das heißt, die Brechungsindizes der fundamentalen Welle und der zweiten Harmonischen müssen gleich sein. Die Fundamentale ist dabei ein ordentlicher und die zweite Harmonische ein außerordentlicher Strahl, falls es sich um einen negativen uniaxialen Kristall handelt. Der richtige Phasenanpassungswinkel zwischen der optischen Achse des Kristalls und der Ausbreitungsrichtung der Fundamentalen ergibt sich dann aus dem Indexellipsoid [48]. Weil in diesem Fall einer der beiden Strahlen nicht entlang der optischen Achse oder senkrecht dazu polarisiert ist, laufen die Fundamentale und die Harmonische im Kristall auseinander. Die Folge ist ein mehr oder weniger starker Astigmatismus des Strahls, was die weitere Verwendung zur Bildung von Schwebungssignalen erschwert. Neben der Winkelanpassung ist es manchmal möglich, durch eine unterschiedliche Temperaturabhängigkeit der Brechungsindizes des ordentlichen und des außerordentlichen Strahls diesen als "walk-off" bezeichneten Effekt zu verhindern. Bei der Phasenanpassungstemperatur müssen dann beide Strahlen entweder senkrecht oder entlang der optischen Achse polarisiert sein.



Abbildung 4.2: Resonante Überhöhung eines Lasers zur effizienten Frequenzverdopplung. PBS: Polarisierender Strahlteiler; SHG: zweite Harmonische.

Ein wichtiger Punkt bei der effizienten Erzeugung harmonischer Felder ist die quadratische Abhängigkeit, $P_{2\omega} \propto P_{\omega}^2$, der Leistung $P_{2\omega}$ der zweiten Harmonischen von der Leistung der Fundamentalen P_{ω} . Wegen dieser für $P_{2\omega} \ll P_{\omega}$ gültigen Proportionalität ist es wichtig, den oder die fundamentalen Strahlen im Kristall möglichst stark zu fokusieren. Mit der Fokussierung zunehmenden Wellenfrontkrümmung tritt allerdings eine teilweise Fehlanpassung der Brechungsindizes auf. Außerdem verkürzt sich die Länge des fokusierten Bereichs entlang der Strahlachse, so daß die hohe Effizienz auf einen kleineren Bereich beschränkt bleibt. Es gibt also eine optimale Fokussierung, die von Boyd und Kleinman in Abhängigkeit der Doppelbrechung und der Kristallänge bestimmt wurde [49]. Demnach sollte der Fokusradius w_o so gewählt werden, daß im Kristall b = L/2, 84 gilt, wobei $b = kw_o^2$ der Strahlparameter¹ [50], L die Länge des Kristalls und k die Wellenzahl der Fundamentalen ist. Der numerische Wert für die Effizienz läßt sich aus den in Ref. [49] angegebenen numerisch berechneten Funktionen bestimmen. Um die Intensität weiter zu erhöhen, ohne stärker fokusieren zu müssen, kann das fundamentale Licht, welches den Kristall möglicherweise fast ungedämpft durchdringt, weiter verwendet werden, indem der Kristall in einen Überhöhungsresonator eingebaut wird. Dieser Resonator wird auf eine Resonanz des fundamentalen Lichts stabilisiert und ist an mindestens einer Stelle transparent für das nichtlineare Produkt. Das Fehlersignal zur Stabilisierung wird gewonnen. indem die Polarisation des fundamentalen Lichts leicht verkippt wird und der zirkulare

¹Der Strahlparameter innerhalb und ausserhalb des Kristalls sind über $b_{innen} = n \times b_{aussen}$ verknüpft.

Polarisationsgrad des vom Resonator reflektierten Lichts mit einer $\lambda/2$ -Platte und einem polarisierenden Strahlteiler analysiert wird [51]. Als polarisationsänderndes Element dient dabei der Kristall.

Beginnend von der infraroten Seite ist der erste nichtlineare Prozess in der Frequenzkette die Frequenzverdopplung des leistungsstarken HeNe–Lasers (Abb. 4.1). Dies geschieht in einem negativ uniaxialen Silber–Gallium–Selenid (AgGaSe₂) Kristall. Wegen der relativ großen nichtlinearen Suszeptibilität genügt es, den Kristall im einfachen Durchlauf, ohne Überhöhungsresonator, zu betreiben. Zur Phasenanpassung muß die Strahlrichtung der Fundamentalen mit der optischen Achse einen Winkel von $\theta_m = 67, 3^{\circ}$ einschließen. Der zweite zur Richtungsangabe notwendige Winkel $\phi = 45^{\circ}$ ist der zwischen der Projektion der Strahlrichtung auf die Ebene senkrecht zur optischen Achse und der in ihr gelegenen kristallographischen x–Achse. Diese Achsen sind zum Beispiel in Ref. [48] definiert. Mit der optimalen Fokussierung in den 5 mm langen Kristall ergibt sich mit 13,5 mW Fundamentalleistung etwa 65 nW bei 1,7 μ m und damit eine Effizienz von $P_{2\omega} = 3, 3 \times 10^{-4} [W^{-1}] P_{\omega}^2$ [11]. Dies ist etwa die Hälfte des Wertes, der sich aus dem numerischen Wert des nichtlinearen Koeffizienten [48] ergibt. Ein wesentlich effizienterer Kristall für die Verdopplung von 3,39 μ m wäre Zink–Germanium–Phosphid (ZnGeP₂), über den an der Frequenzkette allerdings noch keine Erfahrung gesammelt werden konnte.

Der nächste nichtlineare Schritt in der Frequenzkette ist die Frequenzverdopplung des Farbzentrenlasers bei 1,7 μ m. Dieser wird mit Hilfe eines negativ uniaxialen Lithium– Jodat (LiIO₃) Kristalls durchgeführt. Die Phasenanpassung in dem 15 mm langen Kristall, erfolgt auch hier durch die Wahl der richtigen Winkel: $\theta_m = 19, 9^{\circ}$ und $\phi = 90^{\circ}$. Wegen der deutlich kleineren Effizienz befindet sich dieser Kristall in einem Überhöhungsresonator, der die Leistung des Farbzentrenlasers um etwa einen Faktor 50 überhöht. Experimentell ergibt sich mit diesem Resonator eine Effizienz von $P_{2\omega} = 3,8 \times 10^{-6} [W^{-1}] P_{\omega}^2$ [12]. Dies ist wiederum die Hälfte des theoretisch zu erwartenden Werts.

In einem weiteren Schritt wird das so erzeugte Licht bei 850 nm in einem optisch biaxialen Kalium-Niobat (KNbO₃) Kristall frequenzverdoppelt. Dieser Kristall besitzt einen sehr großen nichtlinearen Koeffizienten und kann daher ohne Überhöhungsresonator eingesetzt werden. Dies ist ein wichtiger Umstand, weil jeweils einer dieser Kristalle in den vier optischen Teilerstufen verwendet wird, die in Kapitel 4.2.4 beschrieben sind. Die Phasenanpassung bei 850 nm läßt sich mit Hilfe der Temperatur vornehmen, wobei die Fundamentale und die Harmonische jeweils entlang einer der optischen Achsen polarisiert sind. Daher gibt es keinen "walk-off" und eine gute Modenanpassung zur Erzeugung von Schwebungsfrequenzen (siehe Kapitel 4.1.4). Die Phasenanpassungstemperatur beträgt etwa -5°C. Die Kristalle sind auf kleinen Peltier-Elementen, deren Temperatur auf etwa 1 mK genau geregelt werden kann, montiert. Der ganze Aufbau befindet sich in einem optisch vergüteten Gehäuse, das mit einer Drehschieberpumpe evakuiert wird, um ein Vereisen der Kristalle zu verhindern. Mit dem 5 mm langen Kristall ergibt sich bei optimaler Fokussierung eine Effizienz von $P_{2\omega} = 8,6 \times 10^{-3} [W^{-1}] P_{\omega}^2$ [13]. Dies ist etwa ein Fünftel der theoretisch für eine Gauß'sche TEM₀₀ Mode erwarteten Leistung. Ein großer Teil dieser Diskrepanz ist wohl auf den Astigmatismus der verwendeten Laserdioden zurückzuführen. Bei der für die Teilerstufen notwendigen Summenfrequenzbildung zweier Laser bei 850 nm ist die Effizienz um einen weiteren Faktor 2 kleiner.

Die Summenfrequenz (siehe Abb. 4.1) des Farbstofflasers mit dem leistungsstarken HeNe-Laser (3.39 μm + 486 nm \rightarrow 424 nm) wird in einem 15 mm langen Lithium-Niobat (LiNbO₃) Kristall erzeugt. Dieser negativ uniaxiale Kristall erlaubt die Anpassung der Phase für den gewünschten Prozeß über die Variation der Temperatur. Werden die fundamentalen Wellen als ordentliche Strahlen, mit ihrer Polarisation senkrecht zur optischen Achse eingestrahlt, so ergibt sich die Summenfrequenz als außerordentlicher Strahl mit der Polarisation entlang der optischen Achse. Die Phasenanpassungstemperatur für diesen Prozeß beträgt dabei 268°C. Diese Temperatur wird mit Hilfe zweier kleiner Ofen erreicht, von denen der innere temperaturstabilisiert ist. Die Effizienz der Summenfrequenzbildung von $P_{\omega_1+\omega_2} = 3.6 \times 10^{-4} [W^{-1}] P_{\omega_1} P_{\omega_2}$ [11] beträgt nur etwa 2% von der theoretisch erwarteten. Bei optimaler Fokussierung sollte nach [49] für beide Fundamentalen b = 5,28mm sein. Bei diesen Strahlparametern ist die Summenfrequenz jedoch um einen weiteren Faktor 100 schwächer. Experimentell ergab sich die beste Effizienz mit $b_{486nm} = 3,9$ mm und $b_{3.39\mu m} = 108$ mm innerhalb des Kristalls. Eine Ursache für die Diskrepanz zur theoretischen Effizienz ist vermutlich die hohe Phasenanpassungstemperatur, die sich nur schwer gleichmäßig im gesamten Kristall realisieren läßt. Versuche, den Kontakt mit dem Ofengehäuse durch Wärmeleitpaste zu verbessern, sind fehlgeschlagen, weil diese durch die Hitze porös wird und sich dadurch eine sehr inhomogene Temperaturverteilung ergibt. Am besten hat sich bisher das Einwickeln des Kristalls in Aluminiumfolie bewährt.

Der letzte notwendige, nichtlineare Schritt ist die Frequenzverdopplung des Farbstofflasers bei 486 nm in einem 11,5 mm langen β -Barium-Borat (β -BaB₂O₄) Kristall. Der negativ uniaxiale Kristall wird über die Winkel $\theta_m = 54, 8^{\circ}$ und $\phi = 30^{\circ}$ phasenangepaßt. Mit einem Überhöhungsresonator wird die effektive Leistung etwa um einen Faktor 45 erhöht. Die experimentell erreichte Effizienz von $P_{2\omega} = 6, 6 \times 10^{-5} [W^{-1}] P_{\omega}^2$ [33] entspricht im wesentlichen dem theoretisch zu erwartenden Wert. Damit stehen etwa 20 mW bei 243 nm für die Zweiphotonen-Anregung des 1S-2S Übergangs zur Verfügung.

4.1.3 Der optische Phasenregelkreis

Um die eben beschriebenen optischen Frequenzen miteinander zu verbinden, werden an den Stellen, die in Abbildung 4.1 mit (*) gekennzeichnet sind, Phasenregelkreise eingesetzt

[52, 13, 12, 11]. Diese für die Frequenzkette essentielle Technik beruht auf der Stabilisierung des Schwebungssignals zweier optischer Felder. Bei sorgfältiger Überlagerung zweier Laserstrahlen mit den optischen Frequenzen ω_1 und ω_2 liefert ein Photodetektor das folgende zur Intensität proportionale Signal:

$$\propto \left| \vec{E}_1(\vec{r}) e^{-i\omega_1 t} + \vec{E}_2(\vec{r}) e^{-i\omega_2 t + i\varphi} \right|^2 = E_1^2(\vec{r}) + E_2^2(\vec{r}) + 2\vec{E}_1(\vec{r}) \cdot \vec{E}_2(\vec{r}) \cos((\omega_2 - \omega_1)t - \varphi).$$
(4.2)

Der zeitlich konstante Phasenunterschied φ ist durch die Wahl des Zeitnullpunktes und die unterschiedlichen Weglängen zum Detektor festgelegt. Wird ein Detektor verwendet, dessen Bandbreite (die höchste Frequenz, die dieser Detektor registrieren kann) mindestens so groß wie die Differenzfrequenz $\omega_2 - \omega_1$ ist, so kann man diese als Schwebungssignal mit einem elektronischen Phasenregelkreis auf eine von außen vorgegebene Radiofrequenz, den sogenanten Lokaloszillator, stabilisieren. Das Prinzip ist in Abbildung 4.3 dargestellt. Der Photodetektor liefert eine Spannung, die der rechten Seite von Gleichung (4.2) proportional ist. Für den Phasenregelkreis wird nur die vom Detektor gelieferte Wechselstromkomponente benötigt. Deswegen wird der Detektor AC-gekoppelt und/oder die Schwebungsfrequenz mit einem Bandpaß-Filter separiert. Der rf-Phasendetektor liefert eine Spannung, die proportional zur Phase zweier an ihm anliegenden Signale ist. Dieser Phasendetektor erfüllt dieselbe Funktion für die Radiofrequenzen wie der Photodetektor für die optischen Frequenzen, nämlich die Erzeugung der Schwebungsfrequenz. Um die Phase des Schwebungssignals $(\omega_2 - \omega_1)t - \varphi$ auf die Phase des Lokaloszillators $\omega_{LO}t$ zu stabilisieren, wird die Frequenz des einen Lasers mit dem richtigen Vorzeichen und einer geeigneten Verstärkung mit dem Signal am Ausgang des rf-Phasendetektors nachgeregelt (vergl. Abb.4.3). Bei eingeschalteter Regelschleife gilt $(\omega_{LO} - \omega_2 + \omega_1)t + \varphi = 0$ für alle Zeiten t, also $\omega_{LO} = \omega_2 - \omega_1$ und $\varphi = 0$. Die beiden Laser sind also in ihrer optischen Frequenz genau um die von außen vorgegebene Radiofrequenz ω_{LO} versetzt. Die Beziehung zwischen den Laserfrequenzen ist kohärent, weil zu jedem Zeitpunkt die Phase $\omega_{LO}t$ angegeben werden kann, um die der eine Laser dem anderen vorauseilt. Weil hier die Phase, also das zeitliche Integral über die momentane Frequenz, geregelt wird. indem die Frequenz nachgestellt wird, können Frequenzfehler durch Störungen nicht akkumuliert werden. Sie werden selbst dann noch korrigiert, wenn die Frequenzabweichung schon wieder verschwunden ist. Das kommt durch die Wirkung des zeitlichen Integrals zustande, das auch auf vergangene Ereignisse sensitiv ist: Falls nach einer bereits abgeklungenen Störung die Frequenz der Schwebung und die des Lokaloszillators wieder identisch sind, arbeitet der Phasenregelkreis trotzdem noch weiter, bis auch die Phasen der beiden Schwingungen wieder übereinstimmen. Dadurch ist gewährleistet, daß die über einen längeren Zeitraum (z.B. eine Sekunde) gemittelte Schwebungsfrequenz, nämlich die Anzahl der Nulldurchgänge pro Zeiteinheit, exakt mit der des Lokaloszillators übereinstimmt. Bei der Verwendung eines Frequenzdetektors für den Regelkreis wäre das anders. Dieses sogenante heterodyne Phasen-Lock sorgt so dafür, daß die gesamte Frequenzkette phasenkohärent arbeitet.



Abbildung 4.3: Prinzip des optischen Phasenregelkreises. Im geregelten Zustand gilt für die Laserfrequenzen $\omega_2 - \omega_1 = \omega_{LO}$.

Wegen der unvermeidlichen Zeitverzögerungen in einem Regelkreis darf nicht zu schnell geregelt werden. Die höchste zulässige Frequenz muß dabei kleiner als die Hälfte der reziproken Zeitverzögerung sein. Denn für Störungen mit dieser Frequenz würde die Korrektur durch den Regelkreis mit einer Phasenverschiebung 180° erfolgen. Das System würde diese Störungen verstärken und anfangen zu schwingen. Daher dämpft der Schleifenfilter, ein Tiefpaß, höhere Frequenzen soweit ab, daß die Regelung für diese mit einer Verstärkung kleiner als eins reagiert. Die höchste Frequenz, auf die die Regelschleife mit einer Nettoverstärkung (= Empfindlichkeit des Pasendetektors [Volt/rad] × Transmission des Schleifenfilters × Empfindlichkeit des Lasers [rad/Volt]) größer als eins reagiert, wird als Regelbandbreite bezeichnet. Die maximal zulässige Regelbandbreite ist also durch die Phasenverschiebungen im Regelkreis bestimmt [53]. Eine Aufgabe bei der Entwicklung ist es daher erstens, die Zeitverzögerung durch den Regelkreis kleiner zu halten als die Hälfte der maximalen inversen Frequenzkomponente der möglichen Störungen, und zweitens die Regelbandbreite bis zu einem minimal notwendigen Wert zu steigern. Dieser Minimalwert ist in etwa die spektrale Breite der ungeregelten Schwebung, wie sie ein Spektrumanalysator mit hoher Auflösungsbandbreite anzeigt. Gelingt dies nicht, so ist eine Phasenregelung nur mit zusätzlichen Maßnahmen möglich.

Weil im elektronischen Teil (Lokaloszillator, rf-Phasendetektor und der Schleifenfilter) wichtige Verfahren aus der Rundfunktechnik Verwendung finden, existieren weit entwickelte theoretische Konzepte zum Design [53, 54] und fertig integrierte Schaltkreise für diese Anwendung. Die Erfahrungen auf dem Radiofrequenzgebiet können direkt auf den optischen Phasenregelkreis angewendet werden, wenn das Signal des VCO (Voltage Controlled Oscillator), der in elektronischen Anwendungen normalerweise geregelt wird, durch das Schwebungssignal ersetzt wird. Im Prinzip ist es auch möglich, das Schwebungssignal selbst auf eine konstante Phase (Null Hz) zu regeln, statt es erst mit einem Lokaloszillator in eine Gleichspannung zu konvertieren. Dieses sogenannte homodyne Phasen-Lock erscheint zwar auf den ersten Blick einfacher, doch ist es technisch viel schwieriger, die verrauschte Phase der Schwebung konstant zu halten, als ihre Frequenz [13]. Dies liegt an der spektralen Verteilung der Rauschleistung, die bei Lasern meist für hohe Frequenzen stark abfällt. So fällt bei Laserdioden die Phasenrauschleistung typischerweise bis etwa 10 MHz ab, um sich dann einem durch die Fluktuation der Ladungsträgerdichte bedingtem Plateau zu nähern [55]. In diesem Fall ist es also ratsam, einen Lokaloszillator von mindestens 10 MHz zu verwenden. Bei einer Frequenzkette mit vielen hintereinandergeschalteten Phasenregelkreisen wird bei jeder Frequenzvervielfachung auch das Phasenrauschen mit vervielfacht. Im allgemeinen steigt die Rauschleistungsdichte quadratisch mit dem Faktor, um den die Frequenz vervielfacht wird [56, 57, 58]. Dies ist besonders für Frequenzketten im Radiofrequenzbereich [59, 60, 61] wichtig, weil dort sehr hohe Frequenzvervielfachungen vorgenommen werden [57]. Bei der Verwendung von phasenstabilen Transferoszillatoren ist es allerdings möglich, das akkumulierte Rauschen an einem bestimmten Schritt in der Kette zu entfernen, indem ein Phasenregelkreis verwendet wird, der eine sehr große Phasenexkursion zuläßt. Durch die dann mögliche langsame Regelung wird verhindert, daß der Transferoszillator allen Phasenschwankungen seines Vorläufers in der Kette folgt.

Zur Realisierung des optischen Phasenregelkreises werden verschiedene Schaltungen verwendet, die sich hauptsächlich durch den Phasendetektor unterscheiden. Der einfachste Phasendetektor ist dabei ein Radiofrequenz-Mischer, dessen Wirkungsweise in der Multiplikation zweier sinusförmiger Signale besteht. Zwei Signale $\sin(\omega_{LO}t)$ und $\cos((\omega_2 - \omega_1)t - \omega_2)$ φ) ergeben bei der Multiplikation einen Term der mit der Summenfrequenz und einen der mit der Differenzfrequenz schwingt. Sind die beiden gemischten Frequenzen fast gleich, so kann der Differenzfrequenzterm mit einem Tiefpaß-Filter separiert werden. Man erhält ein Fehlersignal $\propto \sin((\omega_{LO} - \omega_2 + \omega_1)t + \varphi)$ für die Phase φ mit einer unendlichen Folge von Nullstellen mit abwechselnd postiver und negativer Steigung. Das Regelverfahren funktioniert also mit beiden Vorzeichen der Rückkoppelschleife. Im geregelten Zustand sind die beiden Frequenzen gleich und man erhält $\sin((\omega_{LO} - \omega_2 + \omega_1)t + \varphi) \approx \varphi$. Eine Phasenstörung von mehr als 90°, führt zu einem Durchlaufen der Phase um 360°, der Phasenregelkreis rastet auf die nächste Nullstelle des Fehlersignals wieder ein. Durch diesen "cycle slip" geht ein Zyklus im Schwebungssignal und damit in der optischen Frequenz verloren. Um die Toleranz für Phasenexkursionen zu erhöhen, kann man statt des Schwebungssignals das in der Frequenz geteilte Schwebungssignal zum Phasenregeln verwenden. Dies funktioniert besonders gut bei digitalen Phasendetektoren [54, 52, 62], weil es besonders einfach ist, ein digitales Signal in der Frequenz zu teilen². Um digitale Bauelemente zu verwenden, müssen zunächst die Schwebung und der Lokaloszillator in TTL-Signale konvertiert werden. Dies geschieht zum Beispiel mit der Hilfe eines Komparators. Eine Möglichkeit, die Phase zwischen zwei TTL-Signalen zu detektieren, beruht auf der Verwendung von XOR–Gattern. Sind die beiden Eingänge des Gatters um 180° phasenverschoben, so ist der Ausgang konstant auf Low. Bei einer Verschiebung der Phase gibt es am Ausgang Pulse, deren Länge proportional zur Phasenverschiebung ist. Die zeitliche Integration der Pulse ergibt ein Fehlersignal, das aber nur ein Vorzeichen hat und deswegen nicht zum Regeln verwendet werden kann. Um ein bipolares Fehlersignal zu erhalten, kann man vom Ausgangssignal eine konstante Spannung abziehen. Die Phase wird dann zum Beispiel auf 90° geregelt. Um den dadurch verkleinerten Fangbereich der Regelung wieder auszugleichen, kann man die Frequenz der Eingangssignale digital mit Hilfe von flankengesteuerten bistabilen Kippstufen durch eine Zweierpotenz teilen. Der Schaltplan eines auf diesem Prinzip beruhenden Phasendetektors wurde uns freundlicherweise von G. Kramer und B. Lipphardt (PTB Braunschweig) zur Verfügung gestellt und ist in Ref. [12] abgedruckt. Er wird für die Phasenregelung des leistungsstarken HeNe–Lasers und des Farbzentrenlasers verwendet.

Ein anderes digitales Verfahren zur Detektion einer Phasendifferenz wurde von Marco Prevedelli in unserem Labor entwickelt [52]. Es beruht auf einem Zähler, dessen Inhalt durch TTL–Pulse an einem Eingang hochgesetzt und durch TTL–Pulse an einem zweiten Eingang heruntergesetzt werden kann. Somit akkumuliert dieser Zählerbaustein, der bis 16 zählen kann, die Differenz der Zyklen an beiden Eingängen. Beim Einschalten des Phasenregelkreises wird sein Inhalt auf 8 initialisiert. Die Abweichung seines Inhalts von 8, multipliziert mit 2π , ergibt die Phasendifferenz zwischen den beiden Eingängen. Eine dazu proportionale Regelspannung wird durch einen Analog-zu-digital-Konverter und der anschließenden Differenzbildung mit einer Offset-Spannung gewonnen. Der große Vorteil dieses Phasendetektors liegt darin, daß er sehr große Phasenexkursionen und damit eine kleine Regelbandbreite erlaubt. Bei dem von Marco Prevedelli entwickelten Phasendetektor wird die maximal mögliche Phasenexkursion noch durch zwei D-Flipflops, die die Frequenz der Eingangssignale halbieren, auf 32 Zyklen (\pm 16 Zyklen) verdoppelt. Mit ihm lassen sich auch gitterstabilisierte Laserdioden (siehe Abschnitt 4.2.3) mit einer Regelbandbreite von weniger als 1 MHz sicher phasenregeln. Der Nachteil ist allerdings, daß die geregelte Laserdiode ihr breites Frequenzspektrum behält und damit nur bedingt für die Spektroskopie tauglich ist. In der Frequenzkette dienen die Laserdioden bei den Wasserstoffmessungen jedoch nur als Transferoszillatoren, daher ist lediglich die Anzahl der Zyklen innerhalb eines typischen Meßzyklus entscheidend. Die digitalen Phasendetektoren erfüllen diese Anforderungen mühelos, wie sich durch Zählen des phasengeregelten Schwebungssignals jederzeit überprüfen läßt. Das Ergebnis einer solchen Zählung mit ei-

²Bei analogen Signalen ist es dagegen einfach, eine Frequenz zu vervielfachen.

nem HP 53131A Zähler der Firma Hewlett–Packard mit einer Auflösung von 1 mHz und einer Torzeit von einer Sekunde ist in der rechten Hälfte der Abbildung 4.4 dargestellt. Die Phasenabweichungen im geregelten Zustand lassen sich am Zustand des Zählerbausteins ablesen. Dieser ist als Funktion der Zeit in der linken Hälfte der Abbildung 4.4 dargestellt³.



Abbildung 4.4: Phasenfehler (links) und mittlere Frequenzabweichung (rechts) bei Verwendung des digitalen Vorwärts- Rückwärtszählers als Phasendetektor.

In der Frequenzkette gibt es insgesamt 10 Phasenregelkreise. Viele davon sind in der Weise miteinander gekoppelt, daß ein Versagen eines der Regelkreise normalerweise das Versagen einiger anderer Stufen zur Folge hat. Deshalb war die Zeitspanne, während der die Regelkreise zuverlässig arbeiteten, entscheidend für das Gelingen des Experiments⁴. Mit den digitalen Phasendetektoren von Marco Prevedelli ist es möglich, eine Kette von vier optischen Teilerstufen, bestehend aus sechs phasengeregelten Laserdioden, stundenlang kontinuierlich zu betreiben.

4.1.4 Rauscharme Schwebungssignale

Ein wichtiger Aspekt für den optischen Phasenregelkreis ist das Signal-zu-Rausch-Verhältnis (S/N), das Verhältnis der Leistung des Nutzsignals (Schwebung) zur Rauschleistung.

³Die Phasenabweichungen $\varphi(t)$ und die Frequenzabweichungen δf (gemessen mit der Torzeit T) sollten folgende Beziehung erfüllen: $\delta f = 1/T \int_0^T \dot{\varphi}(t) dt = [\varphi(0) - \varphi(T)]/T$. Die gemessenen Frequenzabweichung sind offensichtlich viel zu klein. Vermutlich verwendet der Zähler einen internen Tracking-Oszillator, der die Frequenz am Eingang zeitlich mittelt.

⁴Die Wahrscheinlichkeit des Versagens sollte deswegen etwa um die zehnte Potenz kleiner sein, als bei einem Aufbau mit nur einem Phasenregelkreis.

Die Wirkung der Felder in Gl.(4.2) auf den Detektor ergibt sich aus der über die Strahlquerschnittsfläche integrierten optischen Leistung der drei Anteile:

$$P_1 = c\varepsilon_o \int \int \vec{E}_1^2(\vec{r}) dF \qquad P_2 = c\varepsilon_o \int \int \vec{E}_1^2(\vec{r}) dF \qquad (4.3)$$

$$P_{12} = 2c\varepsilon_o \cos((\omega_2 - \omega_1)t - \varphi) \int \int \vec{E_1}(\vec{r}) \cdot \vec{E_2}(\vec{r}) dF.$$
(4.4)

An dieser Gl. (4.4) läßt sich erkennen, daß eine gute Modenanpassung der Felder $\vec{E}_1(\vec{r})$ und $\vec{E}_2(\vec{r})$ wichtig ist, damit das Überlappintegral über die Strahlquerschnittsfläche F einen möglichst großen Beitrag zum Signal ergibt [63]. Selbst wenn die Felder gut überlagert sind, kann eine räumliche Phase, die vom Strahlparameter oder der transversalen Modenzahl abhängt, dazu führen, daß $\vec{E}_1(\vec{r}) \cdot \vec{E}_2(\vec{r})$ sein Vorzeichen innerhalb der Querschnittsfläche ändert. Zum Beispiel sind zwei zentrierte $\text{TEM}_{m,n}$ Moden, die ihre Strahltaillen an derselben Stelle im Raum besitzen, in dem Sinne orthogonal, indem ihr Uberlappintegral verschwindet wenn sich beide in nur einer der Modenzahlen m und nunterscheiden. Eine Methode zur perfekten Modenanpassung ist die Überlagerung beider Strahlen in einer Einmoden-Faser, die allerdings nie 100 % der Leistung (in der richtigen Mode) transmittiert. An der Frequenzkette werden die meisten Schwebungssignale mit Licht aus nichtlinearen Prozessen erzeugt. Sind diese Prozesse mit Hilfe des Winkels angepaßt, so kann es zu stark deformierten Wellenfronten kommen. Deswegen ist ein Kristall mit kleinerer Effizienz, der aber durch Regelung der Temperatur angepaßt werden kann, unter Umständen vorzuziehen. Wie gut die Modenanpassung in der Praxis ist, läßt sich durch einen Vergleich zwischen den Wechselstrom- und Gleichstromkomponenten vom Photodetektor feststellen. Bei perfekter Modenanpassung $(\vec{E}_1(\vec{r}) \propto \vec{E}_2(\vec{r}))$ sollte $I_{AC}^2 = 4I_{DC1}I_{DC2}$ gelten, wobei I_{AC} die volle Stromamplitude angibt.

Der Strom, den ein Detektor liefert, ergibt sich aus der Anzahl der Photonen pro Sekunde bei der optischen Leistung P, multipliziert mit der Elementarladung und der Quantenausbeute η :

$$I = \frac{e\eta P}{h\nu},\tag{4.5}$$

wobei $\omega_1 \approx \omega_2 = 2\pi\nu$ gelten soll. Bei guter Modenanpassung ist das Quadrat des Überlappintegrals in Gl.(4.4) das Produkt der Leistungen der beiden Einzelfelder. Dann ergibt sich die quadratisch gemittelte elektrische Leistung an einem Lastwiderstand R von

$$R\langle I_1^2 \rangle = R\left(\frac{e\eta}{h\nu}\right)^2 P_1^2, \qquad R\langle I_2^2 \rangle = R\left(\frac{e\eta}{h\nu}\right)^2 P_2^2, \qquad R\langle I_{12}^2 \rangle = R\left(\frac{e\eta}{h\nu}\right)^2 2P_1P_2.$$
(4.6)

Diese Signale müssen mit dem vorhandenen Rauschen verglichen werden, um eine Aussage über die Qualität zu ermöglichen. Da Rauschen meist sehr breitbandig ist, ist die gemessene Rauschleistung proportional zur Filterbandbreite B_w , mit der sie detektiert wird (siehe Gl.(4.7)). Wegen der stochastischen Natur des Rauschens läßt sich nicht der zeitliche Verlauf etwa der Rauschspannung angeben, sondern nur der Mittelwert des Quadrats der Spannung oder der des Stroms. Bei richtig entworfenem Phasenregelkreis hat man es normalerweise nicht mit technischem Rauschen zu tun, obwohl eingestreute Störungen die Langzeitstabilität eines elektronischen Phasenregelkreises begrenzen kann.

Der wichtigste Rauschbeitrag ist das (weiße) Schrotrauschen, das durch die Quantennatur des Lichts verursacht wird. Die Leistung P eines Laserstrahls, der der Poisson–Statistik in der Verteilung der Photonenzahl genügt, rauscht mit der Amplitude $\sqrt{\langle P_{sn}^2 \rangle} = h\nu \sqrt{\langle n \rangle}/\tau$, wobei $\langle n \rangle = P\tau/(h\nu)$ der Erwartungswert der in der kürzest möglichen Meßzeit $\tau = 1/2B_w$ absorbierten Photonen ist⁵. Das Schrotrauschen des Lichts manifestiert sich im Schrotrauschen des Photostroms:

$$\langle I_{sn}^2 \rangle = \left(\frac{e}{\tau}\sqrt{\eta\langle n \rangle}\right)^2 = 2eB_w I,$$
(4.7)

wobei sich der gesamte vom Detektor erzeugte Strom I aus dem Produkt der absorbierten Photonen pro Sekunde $\eta \langle n \rangle / \tau$ und der Elementarladung ergibt. Das Schrotrauschen durch die Quantisierung der Lichtintensität und das Schrotrauschen durch die Quantisierung der dadurch verursachten elektrischen Stromstärke sind nur zwei Betrachtungsweisen desselben Phänomens. Gewöhnlich gibt man das Schrotrauschen des Detektorstroms an, weil sich darin noch andere Beiträge gut verpacken lassen. Einer dieser zusätzlichen Komponenten ist das durch den Dunkelstrom I_d , der im Detektor auch ohne Lichteinfall fließt, verursachte Schrotrauschen. Er wird entweder in pA/\sqrt{Hz} angegeben, oder als "noise equivalent power" (NEP) bezeichnet. Dies ist die Lichtleistung, die aufgrund des Dunkelstroms ein Signal-zu-Rausch-Verhältnis von eins erzeugt.

Bei der hetrodynen Detektion muß beachtet werden, daß die Gleichstromkomponenten im Signal I_1 und I_2 und der Dunkelstrom I_d zwar nicht zum gewünschten Schwebungssignal beitragen, wohl aber zum Rauschen. Die Schrotrauschleistung ergibt sich aus dem Gesamtstrom, wobei sich der Anteil des Schwebungssignals herausmittelt:

$$\langle I_{sn+d}^2 \rangle = 2e \langle I \rangle B_w = 2e \left(\langle I_1 \rangle + \langle I_2 \rangle + \langle I_{12} \rangle + I_d \right) B_w$$

$$= 2e \left(\langle I_1 \rangle + \langle I_2 \rangle + I_d \right) B_w$$

$$= \frac{2e^2 \eta B_w}{h\nu} \left(P_1 + P_2 \right) + 2e I_d B_w.$$

$$(4.8)$$

 $^{{}^{5}\}langle n \rangle$ hat nicht etwa die Einheit s⁻¹ sondern ist einheitenlos.

Die Unsicherheit in der Photonenzahl pro Sekunde $\sqrt{\langle n \rangle}/\tau$, also die Energieauflösung wird kleiner, wenn man die Meßzeit τ erhöht, also Zeitauflösung aufgibt (Unschärfe-Relation zwischen Energie und Zeit). Die Fluktuationen in $\langle n \rangle$ werden auch als "photon bunching" bezeichnet.

Eine andere wichtige Rauschquelle ist das Nyquist–Rauschen an dem Lastwiderstand R bei der absoluten Temperatur T, das durch die Brownsche Bewegung der Elektronen im Widerstand verursacht wird: $\langle I_{ny}^2 \rangle = 4kTB_w/R$.

Ein weiterer Beitrag zum Rauschen geht auf den verwendeten Verstärker zurück. Dieser wird meist in Form eines "noise figure" F > 1 angegeben. Das Verstärkerrauschen läßt sich als gedachte Erhöhung des Nyquist–Rauschens am Eingangswiderstand auffassen⁶ [64]: $\langle I_{ny+F}^2 \rangle = 4FkTB_w/R$. Bei der Verwendung von Avalanche–Photodioden, die wie ein Photoelektronen–Vervielfacher auf Halbleiterbasis eine hohe innere Verstärkung aufweisen, gibt es einen ähnlichen, als "excess noise factor" bezeichneten Effekt, der vom Wert der angelegten Hochspannung abhängt [55].

Um das Signal-zu-Rausch-Verhältnis der Leistungen zu erhalten, müssen die quadratisch gemittelten Beiträge zum Rauschen addiert und zum quadratisch gemittelten Nutzsignal ins Verhältnis gesetzt werden [64, 55]:

$$\frac{S}{N} = \frac{\langle I_{12}^2 \rangle}{\langle I_{sn+d}^2 \rangle + \langle I_{ny+F}^2 \rangle}
= \frac{1}{B_w} \left(\frac{e\eta}{h\nu}\right)^2 \frac{2P_1 P_2}{\frac{2e^2\eta}{h\nu} (P_1 + P_2) + 2e\langle I_d \rangle + 4FkT/R}.$$
(4.9)

Meist gibt man dieses Verhältnis in dB, also durch seinen zehnfachen dekadischen Logarithmus an. Falls für den Gesamtstrom aus dem Detektor

$$I > I_d + \frac{2kTF}{eR} \tag{4.10}$$

gilt, so ist die Detektion schrotrauschbegrenzt (Gl.(4.5) und (4.9)). Dies läßt sich in der Praxis leicht überprüfen. Der Schrotrauschanteil am Rauschuntergrund, den man auf einem rf-Spektrumanalysator beobachtet, verschwindet bei blockiertem Lichteinfall auf den Detektor. Im Falle der Schrotrauschbegrenzung vereinfacht sich Gleichung (4.9) zu:

$$\frac{S}{N} = \frac{\eta}{h\nu B_w} \quad \frac{P_1 P_2}{P_1 + P_2}.$$
(4.11)

Gilt z.B. $P_1 \gg P_2$, so spielt das Schrotrauschen von P_1 keine Rolle. Man kann also durch die Verwendung eines sehr starken optischen Lokaloszillator P_1 das sehr viel schwächere Signal P_2 schrotrauschbegrenzt detektieren. Dies wird zum Beispiel für den Nachweis von gequetschten Zuständen verwendet [65]. Die Schwebungssignale, die an der Frequenzkette erzeugt werden, haben zum Teil deutlich verschiedene Verhältnisse der Leistungen in den

 $^{^{6}}F-1=P_{exc}/GkTB_{w}$ mit der vom Verstärker mit dem Verstärkungsfaktor G hinzugefügten Rauschleistung P_{exc} .

Einzelstrahlen. Aus diesem Grund ist es nicht immer günstig, einen 50:50 Strahlteiler, wie in Abbildung 4.3 gezeigt, zur Überlagerung zu verwenden. Die optimale Transmission tund Reflexion, 1 - t des Strahlteilers läßt sich finden indem man die Anteile tP_1 und $(1 - t)P_2$ als Leistungen einsetzt und das Signal-zu-Rausch-Verhältnis in Gl.(4.11) maximiert:

$$t_{opt} = \frac{\sqrt{P_2}}{\sqrt{P_1} + \sqrt{P_2}}.$$
 (4.12)

Bei sehr unterschiedlichen Leistungen, wie zum Beispiel bei der Phasenstablisierung des 400 mW-Farbzentrenlaser auf die 60 nW aus der Harmonischen des leistungsstarken HeNe-Lasers, bietet ein 50:50 Strahlteiler nicht das maximal mögliche Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Die berechnete optimale Transmission aus Gl.(4.12) ist in der Praxis meist nur ein guter Anhaltspunkt. Falls das Signal-zu-Rausch-Verhältnis kritisch für das Funktionieren ist, sollte deswegen ein Strahlteiler mit verstellbarer Transmission, wie er in der linken Seite der Abbildung 4.5 skizziert ist, verwendet werden und die optimale Transmission experimentell bestimmt werden. Dieser überlagert die beiden Strahlen zunächst ohne Verlust, aber mit orthogonaler Polarisation. Da auf diese Weise keine Schwebung entsteht (siehe Gl. (4.4)), werden mit einem drehbaren Polarisator beide Polarisationen auf eine gemeinsame Richtung projiziert. Der Winkel des Polarisators bestimmt das Verhältnis der Intensitäten, die auf den Detektor fallen. Auf diese Weise ist es zum Beispiel gelungen, die benötigte Leistung des Farbstofflasers für den Phasenregelkreis der Harmonischen der 850,6 nm-Laserdiode ($\approx 5\mu W$) an die in Abbildung 4.1 gezeigte Summenfrequenz (\approx 200 nW) von 80 mW auf 20 mW zu senken. Wegen der Abhängigkeit der Wasserstoff-Anregungsrate von der vierten Potenz der Leistung des Farbstofflasers (die Harmonische und der Zweiphotonen-Übergang sind jeweils prortional zum Quadrat der verwendeten Leistung) ist dies ein ganz deutlicher Gewinn. Weil außerdem eine Glasfaser zwischen dem Wasserstoff–Spektrometer und der Frequenzkette nur etwa 50% transmittiert, spart man am Farbstofflaser dadurch etwa 120 mW, was bei einer Gesamtleistung von bis zu 500 mW mindestens zu einer Verdreifachung des Signals am Wasserstoffspektrometer führt.

Eine weitere Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnises ergibt sich durch die Verwendung des auf der rechten Seite der Abbildung 4.5 gezeigten Aufbaus [66]. Er hat im wesentlichen zwei Vorteile: Erstens wird die gesamte Intensität für das Signal verwendet, und nicht wie auf der linken Seite der Abbildung gezeigt, die Hälfte des Schwebungssignals vergeudet. Zweitens heben sich alle Anteile des Rauschens in der Intensität der Laser außer dem Schrotrauschen heraus. Das Signal am Detektor D_1 und D_2 ist

$$\frac{1}{2}|E_1 + E_2|^2 = \frac{|E_1|^2}{2} + \frac{|E_2|^2}{2} + \operatorname{Re}(E_1 E_2^*)$$
(4.13)

$$\frac{1}{2}|E_1 - E_2|^2 = \frac{|E_1|^2}{2} + \frac{|E_2|^2}{2} - \operatorname{Re}(E_1 E_2^*).$$
(4.14)



Abbildung 4.5: Rauscharme Detektion von Schwebungssignalen. Links: Strahlteiler mit einstellbarer Transmission. PBS=Polarisierender Strahlteiler; P=Drehbarer Polarisator; D=Detektor. Rechts: "optical balanced detector" zur Unterdrückung von technischem Rauschen.

Das negative Vorzeichen von E_2 am Detektor D₂ wird durch den Phasensprung von 180° bei der Reflexion am optisch dichteren Medium hervorgerufen. Bei perfekter Modenanpassung wechselt die gesamte Lichtintensität also mit der Schwebungsfrequenz zwischen den beiden Ausgängen des Strahlteilers. Beim Bilden der Differenz der beiden Signale verschwindet der Gleichstromanteil und die beiden Wechselstromanteile addieren sich. Damit ist der Strom doppelt so groß wie bei der einfachen Detektion. Die elektrische Leistung am Lastwiderstand RI^2 hat sich also vervierfacht. Das Verschwinden der Gleichstromanteile bedeutet aber nicht, daß auch ihr Anteil am Rauschen verschwunden ist. Nur der klassische Anteil des Rauschens ist an beiden Detektoren korreliert. Das Schrotrauschen dagegen ist unkorreliert, weil die Photonen, durch die es verursacht wird, nur in einem der Detektoren absorbiert werden. Deswegen steigt das Schrotrauschen bei dieser Anordnung um das Doppelte. Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis erhöht sich um 3 dB. Viel entscheidender als diese 3 dB ist aber oft die dadurch erreichte Reduktion anderer Rauschquellen.

Ein Problem des "optical balanced detector" ist, daß die Gleichstrombeiträge der Detektoren, zum Beispiel wegen der unterschiedlichen Empfindlichkeit der Detektoren, in der Praxis nicht völlig gleich sind. Dies kann umgangen werden, indem die beiden in Abbildung 4.5 gezeigten Detektions-Anordnungen kombiniert werden. Man erhält den in Abbildung 4.6 skizzierten "optical double balanced detector" [67]. Hinter dem ersten polarisierenden Strahlteiler wechselt die Polarisation des Lichts mit der Schwebungsfrequenz zwischen linearer Polarisation in zwei verschiedenen Richtungen⁷. Mit der drehbaren $\lambda/2$ -

⁷Bei gleichstarken Strahlen sind die beiden Richtungen senkrecht aufeinander. Zwischen den Zuständen mit linearer Polarisation gibt es jeweils eine Phase mit zirkularer Polarisation.
Platte lassen sich diese Richtungen so orientieren, daß die von den Detektoren erzeugten DC-Anteile gleich sind.



Abbildung 4.6: Ein "optical double balanced detector" mit drehbarer $\lambda/2$ -Platte, polarisierenden Strahlteilern (PBS) und zwei Detektoren, D1 und D2.

4.2 Die Komponenten der Frequenzkette

4.2.1 Der HeNe/CH₄-Standard bei 3,39 μ m (88THz)

Das Herzstück der Frequenzkette auf der langwelligen Seite bildet der optische Frequenzstandard, der in der Gruppe von Prof. S. N. Bagayev am Institute of Laser Physics in Novosibirsk/Rußland [68] gebaut wurde [69, 70]. Die hohe Stabilität und auch die absolute Reproduzierbarkeit des HeNe–Lasers von etwa 23 Hz bei 88 THz wird durch die Stabilisierung auf den Rotations–Vibrations–Übergang P(7), $F_2^{(2)}$ des ν_3 –Bands im Methanmolekül erreicht, der innerhalb des Verstärkungsprofils des Neons liegt. Die Frequenz– Stabilisierung erfolgt dabei durch resonatorinterne Sättigungsspektroskopie [71]. Die Abbildung 4.7 erläutert das Prinzip.

Beim Einmoden-Betrieb eines linearen Laser-Resonators (linke Seite in Abbildung 4.7) werden bei ausreichend großer Rabifrequenz durch die Sättigung des Übergangs zwei symmetrisch zur Mitte gelegene Löcher in das Doppler-verbreiterte Methan-Absorptionsprofil gebrannt. Diese Löcher werden durch die vor- und rücklaufenden Wellen erzeugt, die jeweils mit einer Geschwindigkeitsklasse von Molekülen wechselwirken. Wird der Laser auf die Resonanzfrequenz der entlang der Laserachse ruhenden Moleküle gestellt, so überlagern sich die beiden Löcher genau in der Mitte des Absorptionsprofils. In dieser Situation sind nur noch halb so viele Moleküle an der Absorption beteiligt. Deswegen steigt die Ausgangsleistung des Lasers etwas an (Abb. 4.8). Auf diesen invertierten Lamb-Dip läßt sich der Laser stabilisieren, wenn ein Spiegel des Resonators nachstellt wird, der zu diesem Zweck auf einer Piezokeramik montiert ist. Das Funktionsprinzip des Standards mit seinen insgesamt drei Laser-Röhren veranschaulicht schematisch Abbildung 4.9.



Abbildung 4.7: Links: Beim Einmoden-Laser werden zwei Löcher in das Absorptionsprofil des Methan gebrannt. Rechts: Bei einem Multimodelaser (hier drei Moden) werden auf jeder Seite drei Löcher in das Absorptionsprofil gebrannt. Überlagern sich mindestens zwei der Löcher, so steigt die Ausgangsleistung des Lasers.



Abbildung 4.8: Invertierter Lamb-Dip des Referenzlasers mit einer Breite von etwa 150 kHz (links) und die erste Ableitung, auf die stabilisiert wird (rechts).

Die Frequenz des Referenzlasers wird mit einem Lock-in Verstärker stabilisiert, der die erste Ableitung des invertierten Lamb-Dip als Funktion der Laserfrequenz detektiert. Der Referenzlaser liefert mit seiner relativ hohen resonatorinternen Leistung von 1,4 mW, einem relativ hohen Methandruck von 5×10^{-3} mbar und einem Modenradius von $w_o \approx$ 3,3 mm ein starkes Fehlersignal für die schnelle Nachregelung der Laserfrequenz. Bedingt durch das gute Signal-zu-Rausch-Verhältnis kann dieser Laser innerhalb von einer ms (Regelbandbreite 1 kHz) äußere Störungen ausgleichen. Die Methanresonanz in diesem Laser ist aber gerade durch die Maßnahmen, die eine gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis garantieren, etwa 150 kHz (FWHM) breit, sodaß die Langzeitstabilität und die Reproduzierbarkeit dieses Lasers auf bestenfalls ±150 Hz (10^{-3} der Linienbreite) beschränkt ist.



Abbildung 4.9: Schema des 3,39 µm (88 THz) optischen Sekundärstandards.

Um die Reproduzierbarkeit zu verbessern, wird eine weitere Laser-Röhre⁸ verwendet, die mit einer Methanzelle ausgestattet ist. Dieser Laser hat eine resonatorinterne Leistung von nur 500 μ W, die sich außerdem auf eine etwas größere Mode verteilt (Radius $w_o \approx 4$ mm). Bei einem geringeren Methandruck von etwa 3×10^{-4} mbar gelingt es, mit diesem Laser (Hyperfeinlaser in Abb.4.9) drei benachbarte Komponenten $(F = 8 \rightarrow F = 7, F = 7 \rightarrow F = 6 \text{ und } F = 6 \rightarrow F = 5)$ der magnetischen Hyperfeinstruktur des verwendeten Methan-Übergangs aufzulösen. Möglich ist dies durch die Selektion der langsamen Methan-Moleküle, ähnlich wie im Wasserstoff-Spektrometer, die sich für eine kleine resonatorinterne Intensität und niedrigen Methandruck ergibt. Es können nur Moleküle zum Sättigungssignal beitragen, deren inverse Rabifrequenz vergleichbar mit der Durchflugszeit durch die Lasermode ist [72, 73, 74]. Da Stöße denselben kohärenzzerstörenden Effekt wie das Verlassen der Lasermode haben, muß der Methandruck klein genug sein, damit auch die langsamen Molküle während der Durchflugzeit nicht stoßen. Durch diese Selektion der langsamen Moleküle wird die Flugzeitverbreiterung, die Druckverbreiterung und Druckverschiebung reduziert. Außerdem verringert sich die Linienver-

⁸Diese zusätzliche Röhre wurde erst nach der 1991 durchgeführten Messung des 1S–2S Resonanz [14] eingebaut.

breiterung durch die Wellenfrontkrümmung (weil man eine große Mode erzeugen muß), die Sättigungsverbreiterung und der 2. Ordnung Doppler–Effekt⁹. Begrenzt ist die Methode durch das benötigte Signal–zu–Rausch–Verhältnis, denn das wird durch die Senkung von Methandruck und Laserleistung kleiner. Dieses Verhältnis darf umso kleiner sein, je mehr Zeit man zum Detektieren der Resonanz hat, das heißt, je länger der Referenzlaser den Hyperfeinlaser auf seiner Frequenz hält. Dieser liefert wie ein Schwungrad eine ausreichende Kurzzeitstabilität, damit die Zeitkonstante des Lock–in Verstärkers, der zur Detektion verwendet wird, lang genug gewählt werden kann (typischerweise 10 Sekunden).

Um die Frequenzen der beiden Laser phasenstarr miteinander zu verbinden, ohne auf einen Phasenregelkreis bei sehr niedriger Frequenz zurückgreifen zu müssen, wird ein Heterodynlaser verwendet, der als Transferoszillator ohne Methanzelle auskommt. Dieser Laser wird mit Hilfe eines Phasenregelkreises auf einen durchstimmbaren Lokaloszillator von etwa 1 MHz oberhalb der Frequenz des Referenzlasers stabilisiert. Mit einem zweiten Phasenregelkreis wird dann der Hyperfeinlaser auf einen Lokaloszillator von genau¹⁰ 1 MHz unterhalb der Frequenz des Heterodynlasers stabilisiert. Bei geregeltem Referenzlaser schwingt der Hyperfeinlaser bei einer Frequenz, die durch die Differenz der beiden Lokaloszillatoren vom Referenzlaser abweicht. Durch Verstimmen des ersten Lokaloszillators kann dann der Hyperfeinlaser langsam (innerhalb von Minuten) über die Methanresonanz verstimmt werden. Die linke Seite von Abbildung 4.10 zeigt die Variation der Ausgangsleistung als Funktion der Frequenz des ersten Lokaloszillators bei der dritten Harmonischen einer Modulation der Laserfrequenz von 1 kHz.



Abbildung 4.10: Links: Dritte Ableitung des Sättigungssignals des Hyperfeinlasers bei abgeschalteter 22,4 kHz-Modulation. Rechts: Dasselbe Signal bei eingeschalteter 22,4 kHz-Modulation.

⁹Eine Abschätzung aller dieser Effekte für das verwendete System findet sich in Ref.[11].

¹⁰Diese Frequenz sollte aus einer Atomuhr oder einem guten Quarzoszillator abgeleitet werden.

35

Diese entspricht der dritten Ableitung der drei lorentzförmigen Hyperfein-Komponenten. Die Verwendung der dritten Ableitung zur Erzeugung des Fehlersignals reduziert den systematischen Fehler. Weil sich die Piezokeramik, die den Auskoppelspiegel moduliert, nicht exakt entlang der Laserachse bewegt, gibt es auch ohne Methan eine Variation der Ausgangsleistung, und damit einen konstanten Untergrund in der ersten Ableitung.¹¹. Die drei sich überlappenden Lorentz-Kurven der linken Seite von Abbildung 4.10 eignen sich schlecht zur Verwendung als Fehlersignal für die Stabilisierung, weil es keine geeignete Nullstelle gibt. Daher wird mit Hilfe des anderen Resonatorspiegels dem Laser eine zweite Modulation bei 22.4 kHz aufgeprägt, die stark genug ist, um auf jeder Seite 4 Seitenbänder, also insgesamt 9 Frequenzkomponenten, zu erzeugen. Diese Situation ist für nur 3 Frequenzkomponenten in der rechten Seite der Abbildung 4.7 dargestellt. Beim Verstimmen des Lasers um $\Delta \nu$ bewegen sich die Löcher im Absorptionsprofil um $2\Delta\nu$ aufeinander zu oder voneinander weg. Jedesmal wenn sich mindestens zwei Löcher treffen, entweder in der Mitte oder so, daß sie symmetrisch zur Mitte liegen (Kreuzresonanzen), steigt die Ausgangsleistung etwas an. Dafür gibt es in der Abbildung $4.72 \times 3-1$ und im Hyperfeinlaser $2 \times 9 - 1$ Möglichkeiten, die jeweils um $1/2 \times 22, 4$ kHz separiert sind. Das Resultat ist ein mit 11,2 kHz periodisches Signal (Abb. 4.10 rechts). Zur Modulation wurde eine Frequenz von 22,4 kHz gewählt, weil die Hyperfein-Komponenten mit einem Abstand von 11,2 kHz in etwa äquidistant sind. Somit ergibt sich für jede Komponente ungefähr das gleiche Signal, jedoch um jeweils eine Periode von 11,2 kHz verschoben. Weil sich keine zwei der drei verwendeten Hyperfein-Komponenten ein gemeinsames Grundzustandsniveau oder ein gemeinsames angeregtes Niveau teilen, gibt es keine zusätzlichen Kreuzresonanzen¹². Ihre Wirkungen summieren sich einfach auf. Mit den Seitenbändern werden also alle Hyperfein-Komponenten der Methanresonanz gleichzeitig detektiert. Außerdem tragen nun über die Kreuzresonanzen nicht nur Moleküle mit einer verschwindenden Geschwindigkeitskomponente entlang der Laserachse zum Signal bei. Dadurch läßt sich die benötigte Laserintensität weiter verringern [75, 69]. Es ergibt sich das Fehlersignal, wie es auf der rechten Seite in Abbildung 4.10 dargestellt ist. Dieses eignet hervorragend zur Stabilisierung. Der Regelpunkt ist allerdings nicht mehr einer bestimmten Hyperfein-Komponente zuzuordnen.

Ursprünglich wurde das gesamte System mit Hilfe eines analogen Regelkreises auf die Hyperfeinstruktur geregelt, indem über mehrere elektronische Integratorstufen der Frequenzoffset zwischen dem Referenz– und dem Heterodynlaser nachgestellt wurde. Dieses hat sich jedoch wegen der langen Zeitkonstanten als störanfällig erwiesen. Da die Regelzeit–Konstanten einige hundert Sekunden betragen sollten, bot sich die Verwen-

¹¹Beim Referenzlaser, der die erste Ableitung verwendet, beobachtet man tatsächlich eine Justage abhängige Absolutfrequenz.

¹²Diese Kreuzresonanzen zweier Hyperfein–Komponenten, die in verschiedenen Geschwindigkeitsklassen angeregt werden, ergeben sich auch im Einmoden–Betrieb, falls die Doppler–Verschiebung den Frequenzunterschied ausgleicht (siehe auch Abschnitt 6).

dung einer digitalen Regelung an. Dazu wurde die folgende kurze Programmschleife mit einer einfachen Integration verwendet:

```
10 I:=0 (* Integrator auf Null setzen *)
20 LI:=Read_Lock_In; (* 3f Lock-in Lesen *)
30 I:=I+LI; (* zu I addieren *)
40 Output:=-Gain*I; (* Phasenregelkreis nachstellen *)
50 goto 20 (* Schleife wiederholen *)
```

Beim Programm-Start wird der Inhalt des Integrators "I" auf Null gesetzt und in der Folge wird bei jedem Aufruf (genau einmal pro Sekunde) der aktuelle Wert des Fehlersignals vom Lock-in Verstärker gelesen und zu "I" addiert. Dann wird der Inhalt des Integrators mit der Schleifenverstärkung "Gain" multipliziert und als Steuergröße an den Lokaloszillator des Phasenregelkreises zwischen Referenz- und Heterodynlaser gegeben. Die Variable "Gain" wird dabei so eingestellt, daß sich die Regelschleife nach dem absichtlichen Verstellen des Referenz-Heterodyn-Lokaloszillators mit einer Zeitkonstante von etwa 200 Sekunden (Halbwertzeit) dem Regelpunkt nähert. Der Wert für die Variable "Gain" wurde vor jeder Messung und bei der Kalibrierung des Lasers, neben anderen hier nicht genannten Parametern, neu bestimmt [76].

Für den Ausgangsstrahl des Systems wird der Heterodynlaser verwendet, da dieser die höchste Ausgangsleistung besitzt. Dieser Laser könnte mit einer beliebigen Leistung betrieben werden, weil er keine Methanzelle enthält und somit auch die Absolutfrequenz des Systems nicht beeinflußt. Wegen der Verwendung einer kalten Kathode, wie in den anderen beiden Röhren, ist die Leistung aber auf etwa 1 mW beschränkt. Um trotzdem zwei nichtlineare Prozesse bei 3,39 μ m treiben zu können, wurde von Thomas Andreae ein zusätzlicher leistungsstarker Laser (≈ 20 mW) mit einer Glühkathode aufgebaut, dessen Schwebungssignal von einem InAs-Detektor mit dem HeNe-Standard phasenstabilisiert wird (Abb. 4.1). Bei einer künftigen Version des Standards könnte dieser Laser als Heterodynlaser integriert werden. Weil die Regelbandbreite der beiden Phasenregelkreise auf etwa 4 kHz beschränkt ist und somit kleiner ist als die Modulationsfrequenz des Referenzlasers, wird der Heterodynlaser als einziger nicht moduliert. Dies ist ein weiterer Grund, weshalb der Heterodynlaser den Ausgangsstrahl des Systems liefert.

Eine etwas detailliertere Beschreibung des Systems sowie eine Diskussion der Mechanismen, die die Reproduzierbarkeit begrenzen, findet sich in der Doktorarbeit von Thomas Andreae [11]. Im Rahmen eines Besuchs von Alexander Dmitriyev aus der Gruppe von Prof. Bagayev wurde außerdem eine umfassende Bedienungsanleitung für den HeNe– Standard angefertigt [76].

4.2.2 Der NaCl:OH⁻ Farbzentrenlaser bei 1,7 μ m (177 THz)

Der Farbzentrenlaser, der in der Frequenzkette (Abb. 4.1) als Transferoszillator die zweite Harmonische des leistungsstarken HeNe-Lasers verstärkt, wurde im Rahmen der Diplomarbeit von Wolfgang König [77] aufgebaut. Die Lasertätigkeit dieses Systems beruht auf den $(F_2^+)_A$ Farbzentren, die aus zwei benachbarten Anion–Fehlstellen im NaCl bestehen, die mit einem gemeinsamen Elektron besetzt sind und durch ein O^{2-} Ion (weil positiv geladen) räumlich fixiert werden. Diese Farbzentren haben zwei Möglichkeiten der Anregung: Durch Anderung der Wellenfunktion des gefangenen Elektrons und durch die schnelle Umorientierung der beiden Fehlstellen relativ zueinander. Für den Laserbetrieb werden zwei verschiedene elektronische Zustände verwendet. Zusammen mit zwei verschiedenen Orientierungen des Farbzentrums ergeben sich vier Laserniveaus. Weil sich die beiden Fehlstellen räumlich so orientieren können, daß sie mit einer vorgegebenen Polarisation des Nd:YLF Pumplasers (4 Watt bei 1053 nm) nicht mehr wechselwirken, wird zusätzlich ein Ar⁺ Rückpumplaser (200 mW bei 514 nm) verwendet. Die Wechselwirkung der Farbzentren mit den Gitterphononen im Kristall führt zu einer homogenen Linienverbreiterung, die prinzipiell eine Abstimmung des Lasers von 1,45 μ m bis 1,75 μ m erlaubt. Details zur Physik der Farbzentren und zur Herstellung der $(F_2^+)_A$ -Zentren in NaCl:OH⁻ und zur Konstruktion des Resonators finden sich zum Beispiel in Ref. [78, 79].



Abbildung 4.11: Aufbau des Farbzentrenlasers bei der zweiten Harmonischen des HeNe-Standards.

Der Aufbau des Lasers ist in Abbildung 4.11 wiedergegeben. Der Ringresonator besteht aus zwei gekrümmten (R=75mm) und zwei planen Spiegeln. Der Auskoppler hat wegen der hohen Verstärkung des Kristalls eine Transmission von 25%. Die restlichen Spiegel sind hochreflektierend für 1,7 μ m. Während der Pumpspiegel zusätzlich hochreflektierend für 1053 nm und 514 nm ist, ist der Einkoppelspiegel für diese Wellenlängen antireflexbeschichtet. Der etwa 2 mm dicke Kristall wird im fokusierten Arm des Lasers von einem Kühlfinger ständig auf 77 Kelvin gehalten, da sonst die optisch angeregten Farbzentren (auch durch die Laborbeleuchtung) thermisch ionisieren können¹³. Der kollimierte Arm des Resonators bietet Raum für eine Reihe optischer Elemente. Die aus einer $\lambda/2$ -Platte und einem Yttrium–Indium–Granat (YIG) Faraday–Rotator bestehende optische Diode selektiert die gewünschte Umlaufrichtung. Mit dem Lyot-Filter und den Etalons wird die longitudinale Mode selektiert, die am nächsten an der zweiten Harmonischen des HeNe-Standards liegt. Wegen der homogenen Linienverbreiterung ist der Einmoden-Betrieb des Lasers problemlos herzustellen. Die grobe Abstimmung auf etwa 500 MHz gelingt mit einem Wavemeter der Firma Burleigh. Die Feinabstimmung, bis das Schwebungssignal mit dem frequenzverdoppelten leistungsstarken HeNe-Lasers innerhalb der Bandbreite des InGaAs Detektors liegt und somit auf einem Spektrum–Analysator beobachtet werden kann, erfolgt dann durch Ausprobieren verschiedener logitudinaler (durch Unterbrechen des Laserresonators). Mit Hilfe der Piezokeramik, auf die der Einkoppelspiegel montiert ist, und einem resonatorinternen elektrooptischen Modulator (EOM) läßt sich der Laser mit dem in Abschnitt 4.1.3 beschriebenen digitalen Phasendetektor auf die zweite Harmonische des HeNe-Standards stabilisieren. Die hohen Frequenzen der Regelung werden vom EOM, die niederfrequenten Störungen von der Piezokeramik ausgeregelt.

4.2.3 Die gitterstabilisierten Laserdioden

Nachdem die Frequenz des Farbzentrenlasers verdoppelt ist, werden an der Frequenzkette Laserdioden als Transferoszillatoren eingesetzt. Diese sind mit Abstand die wirtschaftlichsten und kompaktesten Laser. Weil für die kohärente Überbrückung der 1 THz-Frequenzlücke mehrere Laser benötigt werden (siehe Kapitel 4.2.4), wurde die Frequenzkette an dieser Stelle aufgeschnitten (vergl. Abb. 4.1), obwohl die Verlegung der Lücke zum langwelligen Ende diese weiter schrumpfen lassen würde. Die verwendeten Dioden vom Typ STC-LT50A-03U der Firma STC (England) und SDL-5411-G1 von Spectra Diode Labs (USA) haben eine freilaufende Linienbreite von 15 bis 20 MHz. Zur Phasenregelung wäre eine vergleichbare Regelbandbreite notwendig, die nur schwer zu realisieren ist. Deswegen wird die Linienbreite der Laserdioden durch eine frequenzselektive optische Rückkopplung verringert. Weil Laserdioden eine sehr hohe innere Verstärkung besitzen, werden rückgekoppelte Photonen sehr stark vervielfacht. Der Laser schwingt dann, unter geeigneten Bedingungen, auf der Frequenz mit der stärksten Rückkopplung. Dieses "optical self injection locking" funktioniert sogar, meist unerwünscht, mit schwachen Reflexen aus dem optischen Aufbau, die zusammen mit dem Laser ein externes Etalon bilden. Für die Stabilisierung mittels optischer Rückkopplung wurden brechungsindexgeführte Einmoden–Dioden vom Fabry–Perot–Typ ohne zusätzliche Beschichtung verwendet. Zur

¹³Man könnte den Kristall auch im Dunkeln aufbewahren und nur bei Gebrauch, statt permanent, kühlen. Der hier verwendete Laserkopf läßt jedoch keine ausreichende Verdunkelung des Kristalls zu.

spektroskopischen Verwendung von Laserdioden werden diese meist auf die Transmissionsmoden eines Fox–Smith–Resonators (z.B. mit dem Aufbau von L. Hollberg [80]) oder auf ein externes optisches Gitter [81] stabilisiert. Zunächst konnte Robert Wynands mit den resonatorstabilisierten Hollberg–Lasern die Arbeitsweise der für die Frequenzüberbrückung eingesetzten optischen Teilerstufen (siehe Kapitel 4.2.4) demonstrieren [13]. Diese Laser sind zwar schmalbandiger als die gitterstabilisierten Laser, benötigen jedoch die Stabilisierung der Rückkehrphase des Reflexes vom Etalon und damit pro Laser einen weiteren Regelkreis. Dies war einer der Gründe, weshalb die Hollberg–Laser später von Wolfgang König durch gitterstabilisierte Laserdioden in Littrow–Anordnung ersetzt wurden [12].



Abbildung 4.12: Mechanischer Aufbau einer gitterstabilisierten Laserdiode.

Abbildung 4.12 gibt einen Einblick in den Aufbau der gitterstabilisierten Laserdioden, die in der Gruppe von Prof. T. W. Hänsch entwickelt wurden und dort vielfältig eingesetzt werden. Die Halterungen für das Gitter, den Laser und die Kollimator-Linse (f=3,7 mm NA=0,45) sind aus Aluminium oder Neusilber gefertigt. Das holographische Reflexionsgitter (Carl-Zeiss, Jena) hat 1800 vertikale Linien pro mm und ist so angeordnet, daß die Reflexion in erster Beugungsordnung zurück in den Laser zeigt und die nullte Ordnung ausgekoppelt wird. Es werden Gitter verwendet, die für eine Polarisation senkrecht zu den Gitterlinien optimiert sind. Die Laserdiode wird dagegen mit vertikaler Polarisation in ihre Halterung eingebaut. Dies reduziert die optische Rückkopplung auf etwa 15 %. Das Gitter spiegelt etwa 75 % des Lichts und absorbiert oder streut die restliche Leistung. Es zeigt sich, daß eine zu hohe Rückkopplung den Laser inkohärent werden läßt. Über die Drehung des Gitters wird gleichzeitig die reflektierte Wellenlänge und die Länge des externen Resonators geändert. Der geometrisch korrekte Punkt, um den das Gitter gedreht werden muß, damit diese beiden Abstimmechanismen synchronisiert sind, ist in diesem Aufbau nicht eingehalten¹⁴. Daher lassen sich die Laserdioden nur um einige GHz ohne Modensprung verstimmen. Dies ist für die Frequenzkette jedoch völlig ausreichend. Zur Temperaturstabilisierung wird die Grundplatte des Lasers auf ein Peltier–Element montiert. Mit dem Temperatursensor, der sich in der Nähe der Laserdiode befindet, und einem elektronischen Regelkreis kann eine Stabilität von etwa 1 mK erreicht werden, falls der gesamte Aufbau zusätzlich von Luftzirkulationen, zum Beispiel durch ein Plexiglasgehäuse, abgeschirmt wird.

Zur Justage wird zunächst der Kollimator ohne den Gitterhalter so auf die Grundplatte geklebt, daß der Strahl in mindestens 10 m Entfernung fokusiert ist. Beim darauffolgenden Installieren des Gitters erkennt man zunächst zwei ausgekoppelte Strahlen, von denen der eine direkt vom Laser und der andere vom Rückreflex an der Austrittsfacette stammt. Durch Drehen des Gitters um die vertikale Achse springen diese plötzlich zusammen. Dann ist die Laserdiode "feedback gelockt". Dies läßt sich am bequemsten durch eine Änderung der Spannung an der Piezokeramik überprüfen. Beobachtet man auf einem optischen Spektrumanalysator, daß sich dadurch die Frequenz des Lasers ändert, so ist dieser auf den Reflex vom Gitter stabilisiert. Nachdem mit Hilfe der Feingewindeschraube und der Betriebstemperatur in etwa die gewünschte Wellenlänge eingestellt wurde, wird der Schwellstrom des Lasers durch die Feinjustage der Höhenverstellschrauben minimiert.

4.2.4 Die optischen Teilerstufen

Nachdem die Frequenz des Farbzentrenlasers in einem LiIO₃–Kristall, wie in Abschnitt 4.1.2 erläutert, verdoppelt wurde, muß diese Frequenz mit der in einem LiNbO₃–Kristall erzeugten Summenfrequenz aus dem leistungsstarken HeNe–Laser und dem Farbstofflaser verglichen werden. Die entstehende Frequenzlücke von 1,059 THz (Abb. 4.1) muß dabei gemessen werden. Die Schwebungsfrequenz ist zu hoch, um Radiofrequenzmethoden (direktes Zählen) zugänglich zu sein. Bei optischen Frequenzketten, die mit einer sehr hohen optischen Frequenz beginnen, ist dies fast immer der Fall, weil es durch nichtlineare Prozesse lediglich möglich ist, ganzzahlige Vielfache der Frequenz des Oszillators am niederfrequenten Ende der Kette zu erzeugen. Die möglichst präzise Überbrückung von Frequenzlücken im 1– bis 100–THz Bereich ist also von allgemeinem Interesse für optische Absolutfrequenzmessungen. Zur Lösung des Problems gibt es verschiedene Verfahren, von denen die phasenkohärenten Methoden aus den in Abschnitt 4.1.3 genannten Gründen die genauesten sind.

¹⁴Wenn der Gitterdrehpunkt auf der Höhe der Laserdiode (gemessen parallel zu deren Ausgangsstrahl) sitzt, sind beiden Abstimmechanismen synchronisiert.

Die erste Absolutfrequenzmessung der 1S–2S Frequenz im Wasserstoff mit der Garchinger Frequenzkette wurde 1992 durchgeführt [14]. Damals wurde der Referenzresonator, der auch zur Stabilisierung des Farbstofflasers dient (siehe Abschnitt 3) dazu verwendet die Frequenzlücke durch Abzählen von 6372 Transmissionsmoden bei 486 nm zu überbrücken. Weil der freie Spektralbereich des Resonators mit Hilfe einer Radiofrequenz auf 0,4 Hz (bei 243 nm) genau vermessen wurde, ist dies, trotz der Verwendung des Interferometers, eine Frequenzmessung, da nur Radiofrequenzen und nicht etwa die Länge des Resonators in das Ergebnis eingehen. Allerdings handelte es sich nicht um eine phasenkohärente Messung, weil hier viele Frequenzen (und nicht ihre Phasen) addiert wurden. Das Ergebnis für den Hyperfeinzentroid lautete damals $f_{1S2S}^{H} = 2 466 061 413, 182(45)$ MHz. Die Unsicherheit von 45 kHz ist fast ausschließlich auf die Verwendung des Resonators zurückzuführen (43 kHz wegen der Frequenzdrift der Resonators und 10 kHz wegen der Unsicherheit des freien Spektralbereichs).



Abbildung 4.13: Prinzip der optischen Teilerstufe: Der Phasenregelkreis stabilisiert die zweite Harmonische des dritten Lasers auf die Summenfrequenz der ersten beiden.

Deswegen wurde von Prof. T. W. Hänsch eine Methode der kohärenten Vermessung von Frequenzlücken im THz-Bereich vorgeschlagen [42, 43, 44] und von H. R. Telle und Robert Wynands demonstriert [43, 45]. Die neue Methode beruht auf der sukzessiven Teilung der Frequenzlücke mit Hilfe von optischen Teilerstufen, bis sie einem Radiofrequenz-Zähler zugänglich ist. Das Prinzip der optischen Teilerstufen erläutert Abbildung 4.13. Um die Frequenz des dritten Lasers f_3 in der Mitte der Frequenzlücke zwischen den ersten beiden Lasern mit den Frequenzen f_1 und f_2 zu plazieren, wird die zweite Harmonische des dritten Lasers $2f_3$ auf die Summenfrequenz der ersten beiden Laser $f_1 + f_2$ phasenstabilisiert. Somit gilt $2f_3 = f_1 + f_3 - f_{LO}$ oder $f_3 = (f_1 + f_3 - f_{LO})/2$, wobei f_{LO} der Lokaloszillator der Phasenstabilisierung ist. Die ursprüngliche Frequenzlücke zwischen den ersten beiden Lasern ist jetzt durch eine halb so große Lücke (wenn man vom Lokaloszillator absieht) zwischen dem dritten Laser und einem der beiden anderen ersetzt worden. Dazu werden zwei nichtlineare Prozesse benötigt, die sich bei nicht allzu großer Frequenzlücke im selben Kristall phasenanpassen lassen. Bei den hier verwendeten KNbO₃-Kristallen sinkt die Effizienz der Summenfrequenzbildung bei angepaßter Frequenzverdopplung auf etwa die Hälfte, falls die Frequenzlücke auf 5 THz erweitert wird [13]. Das Prinzip ist beliebig kaskadierbar, indem für jede Teilerstufe ein weiterer Laser hinzugefügt wird.



Abbildung 4.14: Kaskadierte optische Teilerstufenkette, mit der die Frequenzlücke $\Delta f = 1,059$ THz zwischen den ersten beiden Lasern durch 16 geteilt wird (vergl. Abb. 4.1).

Mit n Teilerstufen läßt sich die ursprüngliche Frequenzlücke demnach um einen Faktor 2^n verkleinern. Vier dieser Teilerstufen wurden an der Garchinger Frequenzkette mit Hilfe von Laserdioden von Wolfgang König und Robert Wynands aufgebaut. Als nichtlineares Medium wird KNbO₃ verwendet. Dieser Kristall läßt sich für die verwendeten Wellenlängen um 850 nm mit Hilfe der Temperatur phasenanpassen (siehe Abschnitt 4.1.2). Diese Art

der Phasenanpassung ist für ein gutes Signal–zu–Rausch–Verhältnis vorteilhaft (siehe Abschnitt 4.1.4). Durch die Fokussierung in den Kristallen werden die Wellenfronten der Strahlen nicht unerheblich gestört. Deswegen hat sich der in Abb. 4.14 gezeigte Aufbau bewährt, bei dem die fundamentalen Wellen hinter den Kristallen nicht mehr verwendet werden. Mit der vierstufigen Teilerstufenkette aus Abbildung 4.14 wird die 1,059 THz-Frequenzlücke durch $2^4 = 16$ geteilt. Die Schwebungsfrequenz zwischen den letzten beiden Lasern $f_6 - f_5$ beträgt im Falle einer Messung der Absolutfrequenz in Wasserstoff 66,0 GHz und in Deuterium 60,8 GHz. Um diese verbleibende Schwebung zählen zu können, mußte sie zunächst mit einem Radiofrequenz–Mischer in eine niedrigere Frequenz konvertiert werden, weil der schnellste verfügbare Zähler maximal 22 GHz zählen konnte. Weil außerdem kein Synthesizer bei dieser Frequenz zur Verfügung stand, wurde ein harmonischer Mischer verwendet, der die Frequenz des einen Eingangs mit einer Harmonischen des anderen Eingangs mischt, also die Differenzfrequenz erzeugt. Der verwendete Synthesizer (Modell HP 8360 von der Firma Hewlett–Packard) läßt sich von 1 MHz bis 20 GHz durchstimmen. Mit der vierten Harmonischen und einer Radiofrequenz f_{rf} von 16,5 GHz bzw. 15,2 GHz verschiebt sich das Schwebungssignal in den MHz Bereich. Die gezählte Frequenz f_z kann demnach frei gewählt werden. Bei allen Messungen wurde sie in die Nähe von 35 MHz gestellt, um sie mit einem Zähler hoher Auflösung¹⁵ (HP 53131A von der Firma Hewlett–Packard mit etwa 1 mHz Auflösung in einer Sekunde) zu registrieren und weil für diese Frequenz ein geeigneter Filter zur Verfügung stand. Man hätte statt des harmonischen Mischers auch eine oder zwei weitere Teilerstufen der Kette hinzufügen können, aber dies ist im allgemeinen sehr viel aufwendiger als die radiofrequenztechnische Frequenzteilung. Abbildung 4.15 zeigt die Lage der Frequenzen der Laserdioden in der Teilerstufenkette, wie sie zur Messung der 1S–2S Frequenz im Wasserstoff eingestellt werden müssen.



Abbildung 4.15: Die Frequenzen der sechs Laserdioden, wie sie zur Messung der 1S–2S Resonanz im Wasserstoff eingestellt werden müssen.

¹⁵Sehr schnelle Zähler registrieren nur die Nulldurchgänge des Signals. Deswegen haben sie in einer Sekunde auch nur eine Auflösung von 1 Hz. Zähler, die zusätzlich die Phase nach dem Ablauf der Torzeit registrieren, haben eine höhere Auflösung, sind aber langsamer. Ein solcher Zähler wurde hier eingesetzt.

Für die hier beschriebene Teilerstufenkette wurden die von Marco Prevedelli entwickelten digitalen Phasendetektoren verwendet [52], welche im Abschnitt 4.1.3 bereits beschrieben wurden. Im geregelten Zustand gelten folgende Beziehungen zwischen den Frequenzen in der Teilerstufenkette:

$$\begin{aligned}
f_1 + f_2 &= 2f_3 + f_{LOLD3} \\
f_2 + f_3 &= 2f_4 + f_{LOLD4} \\
f_3 + f_4 &= 2f_5 + f_{LOLD5} \\
f_4 + f_5 &= 2f_6 + f_{LOLD6},
\end{aligned} \tag{4.15}$$

wobei f_{LOLDN} die Frequenz des Lokaloszillators der *N*-ten Laserdiode ist, die alle bei sämtlichen Messungen auf 50 MHz eingestellt waren. Das Vorzeichen der Lokaloszillatoren ergibt sich aus der Anschlußbelegung des Phasendetektors. Weil ein Spektrum-Analysator, auf dem die Schwebung am besten beobachtet wird, nicht das Vorzeichen der Schwebung anzeigt, also welcher Laser der höherfrequente ist, muß man sich darüber auf andere Weise Gewißheit verschaffen¹⁶. Für das gezählte Schwebungssignal f_z gilt dasselbe, weil der Zähler nicht zwischen negativen und positiven Zyklen unterscheidet. Mit dem für diesen Fall ($f_2 > f_1$) richtigen Vorzeichen gilt: $f_z = f_6 - f_5 - 4f_{rf}$. Bei der Wahl der Radiofrequenz f_{rf} am harmonischen Mischer ist darauf zu achten, daß nicht etwa die Schwebung zwischen der vierten und sechsten statt der Schwebung zwischen der fünften und der sechsten Laserdiode gezählt wird. Diese sind im Frequenzraum genau um f_{LOLD6} versetzt. Außerdem muß man sich Klarheit über die richtige Wahl der Vorzeichen in $f_z = f_6 - f_5 - 4f_{rf}$, zum Beispiel durch Verdrehen der Radiofrequenz f_{rf} , verschaffen¹⁷. Löst man dies zusammen mit den Gleichungen (4.15) nach der Frequenzlücke $\Delta f = f_2 - f_1$ auf, so ergibt sich:

$$\Delta f = f_2 - f_1 = 16f_z + 64f_{rf} - f_{LOLD3} + 2f_{LOLD4} - 4f_{LOLD5} + 8f_{LOLD6}.$$
(4.16)

Die Frequenzlücke Δf kann damit aus den verwendeten Lokaloszillatoren und der gemessenen Radiofrequenz berechnet werden. Um ein genaues Endergebnis zu erhalten, muß darauf geachtet werden, daß die Synthesizer zur Erzeugung der Frequenzen f_{rf} und f_{LOLDN} und die Zähler an genaue Referenzfrequenzen angeschlossen sind. Dies ist insbesondere bei der Mischerfrequenz f_{rf} wichtig weil diese den Hauptbeitrag (64 × 16 GHz) zu Δf liefert. Wie Abbildung 4.1 zu entnehmen ist, wird die Frequenzlücke bei der Bestimmung der 1S–2S Frequenz noch mit 8 multipliziert, das heißt, die Mischerfrequenz geht mit 8 × 64 × 66 GHz = 8,2 THz in das Ergebnis ein. Um die Unsicherheit durch diese

¹⁶Zum Beispiel stellt man mit dem Wavemeter fest, in welche Richtung sich die Absolutfrequenz des Lasers beim Verdrehen z.B. der Gitterstabilisierung ändert und beobachtet gleichzeitig, in welche Richtung sich die Schwebungsfrequenz verändert.

¹⁷Insgesamt sieht man auf einem rf-Spektrum Analysator mit einem Scanbereich von \pm 100 MHz vier Schwebungen bei $f_6 - f_5 - 4f_{rf}$, $-f_6 + f_5 + 4f_{rf}$, $-f_6 + f_4 - 4f_{rf}$ und $f_6 - f_4 + 4f_{rf}$. Eine davon wird mit einem Filter selektiert und gezählt. Bei allen Messungen war dies $f_6 - f_5 - 4f_{rf}$.

Radiofrequenz vernachlässigen zu können, sollte sie kleiner als 100 Hz bei der 1S–2S Frequenz sein. Dazu darf ihre relative Unsicherheit höchstens 10^{-11} sein. Deswegen wurden alle Referenzfrequenzen für sämtliche Synthesizer und Zähler aus einer Cäsium–Atomuhr (relative Unsicherheit etwa 10^{-12}) abgeleitet. Durch Einsatz der Teilerstufenkette wurde die gesamte Frequenzkette phasenkohärent und trägt daher nur noch mit einem zu vernachlässigenden Fehler durch die Phasenfluktuationen der Regelschleifen und der Unsicherheit der Cäsium–Atomuhr zum Fehlerbudget der gemessenen 1S–2S Frequenz bei. Eine Anleitung zur Justage der Teilerstufenkette findet sich in Abschnitt 9.4.

4.2.5 Der optische Frequenzkamm–Generator

Eine weitere, wesentlich kompaktere Anordnung zur kohärenten Messung von THz-Frequenzlücken beruht auf der Verwendung von besonderen elektrooptischen Modulatoren. Um Seitenbänder im THz-Bereich zu erzeugen, müssen diese Modulatoren einen sehr hohen Modulationsindex (\approx die Anzahl der Seitenbänder auf jeder Seite vom Träger) und/oder eine sehr hohe Modulationsfrequenz besitzen. Ein Modulator dieser Art [82] für die Wellenlängen um 850 nm ist freundlicherweise von Motonobu Kourogi aus der Gruppe von Prof. M. Ohtsu vom Tokyo Institute of Technology in Japan in unserem Labor aufgebaut worden. Er besteht aus einem $1,25 \times 1 \times 21 \text{ mm}^3$ großen LiNbO₃-Kristall, der als elektrooptischer Modulator dient. Dazu sind an der Ober- und Unterseite des Kristalls Metallelektroden aufgedampft. Die hochreflektierende Verspiegelung der Kristallenden (R=50 mm und R= ∞) macht ihn gleichzeitig zu einem optischen Resonator mit einem freien Spektralbereich (FSR) von etwa 3,2 GHz (siehe Abbildung 4.16). Durch den monolithischen Aufbau ohne Grenzflächen hat er eine relativ hohe Finesse von etwa 300. Um eine effiziente Modulation zu ermöglichen, sind zwei Voraussetzung zu erfüllen: Die Modulationsfrequenz f_m muß ein ganzzahliges Vielfaches des optischen freien Spektralbereichs $v_g/2L$ sein¹⁸ [83], wobei L = 21 mm die Länge des Kristalls ist. Der hier beschriebenen Modulator wird mit einer Modulationsfrequenz betrieben, die dem zweifachen freien Spektralbereich entspricht. Die zweite Bedingung ist, daß die Modulation bei jedem Durchlauf mit der richtigen Phase vorgenommen wird, damit sich ihre Wirkung aufsummiert. Weil sich die einer Lichtwelle aufgeprägte Modulation mit der Gruppengeschwindigkeit v_a durch den Kristall bewegt, ist diese Bedingung erfüllt, wenn sich die Phase des elektrischen Feldes der Mikrowelle mit derselben Geschwindigkeit bewegt. Die Komponente der Phasengeschwindigkeit entlang der Kristallachse c_{rf} für die Modulationfrequenz muß also gleich der Gruppengeschwindigkeit des Laserlichts sein.

¹⁸Der optische freie Spektralbereich folgt aus der Bedingung $k \times 2L = \omega n(\omega)/c \times 2L = q2\pi$ (q=ganze Zahl), wobei die Differenz der Gleichung für q + 1 und q zu bilden ist: $\omega_{q+1}n(\omega_{q+1}) - \omega_q n(\omega_q) = \omega_{q+1}[n(\omega_q) + (\omega_{q+1} - \omega_q)\frac{\partial n}{\partial \omega} + \ldots] - \omega_q n(\omega_q) = (\omega_{q+1} - \omega_q) \times [n(\omega) + \omega \frac{\partial n}{\partial \omega}] = (\omega_{q+1} - \omega_q) \times c/v_g = 2\pi c/2L$. Es gilt also in besserer Näherung $\nu_{FSR} = v_g/2L$ und nicht, wie oft zu lesen ist, $\nu_{FSR} = c/2L$.



Abbildung 4.16: Der von Motonobu Kourogi entwickelte optische Frequenzkamm-Generator.

Der Kristall wirkt wegen seines hohen Brechungsindex für Mikrowellen als Wellenleiter, in dem sich eine stehende Welle ausbildet. Die Enden des Kristalls sind dabei für die Mikrowelle ein offenes Ende der elektrischen Feldstärke. Um zu verstehen, warum die Phasengeschwindigkeit bei einer stehenden Welle (bei der die Phase gar nicht läuft) entscheidend sein kann, muß man wissen, daß jeweils nur der mit dem Licht kopropagierende Anteil modulierend wirkt [83]. Der Brechungsindex für Mikrowellen ist mit $n_{rf} = 5,29$ viel größer als der Brechungsindex von $n_q := c/v_q = 2, 17$ der Gruppengeschwindigkeit des Lichts für die hier verwendete vertikale Polarisation entlang der optischen Achse. Die beiden Geschwindigkeiten unterscheiden sich also in einem unendlich ausgedehnten Medium um mehr als einen Faktor 2. Eine Anpassung ist dennoch möglich, weil die Phasengeschwindigkeit in einem Wellenleiter stark von seiner Geometrie abhängt [83, 84]. Durch die richtige Wahl des Verhältnisses aus der Breite des Kristalls und der Breite des Hohlraumresonators gelingt die Anpassung. Dadurch wird der optische freie Spektralbereich nicht beeinflußt. Da bei Resonanz die Modulationsfrequenz f_m ein ganzzahliges Vielfaches von $c_{rf}/2L$ sein muß und bei der Anpassung $c_{rf} = v_q$ gilt, entspricht die Länge des Kristalls genau einer Wellenlänge der Modulationfrequenz. Die Feinabstimmung des Messing-Hohlraumresonators geschieht durch Schleifen von Teilen des Resonators oder Einlegen von Papierstreifen sowie über die Anpassung der Temperatur des Kristalls. Bei allen Messungen wurde eine Modulationsfrequenz von 6,3418 GHz für diesen "optical frequency comb"-(OFC)-Generator verwendet.

Um den OFC–Generator betreiben zu können, muß dafür gesorgt werden, daß eines der Transmissionsmaxima des optischen Resonators auf den treibenden Laser geregelt wird, damit sein Licht resonant überhöht wird. Dazu wird eine dem Pound–Drever–Hall– Verfahren ähnliche Methode verwendet. Abbildung 4.17 veranschaulicht die Erzeugung



Abbildung 4.17: Erzeugung des Fehlersignals zum Stabilisieren des optischen Frequenzkamm-Generators.

des Fehlersignals durch ein Zeitraum-Argument. Durch die Modulation werden die Transmissionsmaxima des optischen Resonators periodisch verschoben¹⁹. Dies führt zu einer Amplitudenmodulation des Lichts hinter dem Resonator. Wird dieses phasensensitiv mit Hilfe eines Radiofrequenzmischers detektiert, so ergibt sich das rechts oben in Abbildung 4.17 dargestellte bipolare Fehlersignal. Steht die Frequenz des Lasers auf der markierten Position 1 oder 3, so ergibt sich eine Amplitudenmodulation mit der Frequenz des OFC-Generators, wobei diese eine Phasenverschiebung von 180° zwischen den beiden Positionen aufweisen. Mit einem Phasenschieber an einem der Eingänge des Mischers läßt sich das Vorzeichen am Mischerausgang einstellen. Bei der Laserposition 2 ergibt sich eine

¹⁹Man könnte einwenden, daß dieses Argument nicht anwendbar ist, weil die Transmissionsfunktion für den stationären Fall hergeleitet wird und die Photonenlebensdauer für den beschriebenen Resonator um das 100 fache länger ist als die Modulationsperiode. Aber solange die Modulation des Brechungsindexes sich mit der Gruppengeschwindigkeit des Lichts bewegt, ist dieser Zustand stationär. Man kann dies durch die Einführung von bewegten Koordinaten beschreiben [82] oder durch das Einsetzen der mitlaufenden Brechungsindexmodulation $n \longrightarrow n_o + \frac{m}{Lk} \sin(2\pi f_m t))$ (m=Modulationsindex) in der Umlaufphase $\omega nL/c$ des Lichts bei der Herleitung der Resonatormoden (siehe z.B. [85]). Dann ergibt sich die bekannte Transmissionsfunktion, deren Maxima mit der Modulationsfrequenz verschoben werden [84].

Amplitudenmodulation mit der doppelten Frequenz²⁰, wie man sich unschwer anhand der Abbildung überlegt, und deswegen, genau wie bei der Position zwischen zwei Transmissionsmaxima, kein Signal am Mischerausgang. Um nicht die Frequenz des Lasers verändern zu müssen, wird das so erzeugte Fehlersignal verwendet, um mit Hilfe einer zusätzlichen Hochspannung am Kristall ein Transmissionsmaximum auf die Laserfrequenz (Laserposition 2) zu stabilisieren. Im geregelten Zustand berechnet sich die Leistung P_n im *n*-ten Seitenband aus der einfallenden Intensität P_{in} , der Finesse F und der Einkoppeleffizienz η_{FP} zu [67]:

$$P_n = \eta_{FP} \left(\frac{\pi}{2mF}\right)^2 \exp\left(-\frac{|n|\pi}{mF}\right) P_{in},\tag{4.17}$$

wobei m der Modulationsindex für den einmaligen Durchlauf durch den Kristall ist, der sich aus dem zeitabhängigen Brechungsindex $n(t) = n_o + \frac{m}{Lk} \sin(2\pi f_m t)$ mit der Wellenzahl k ergibt. Er läßt sich aus der vollen Breite der Transmission bei eingeschalteter Modulation $\nu_- - \nu_+$ (siehe Abbildung 4.17) bestimmen:

$$\frac{\nu_{-} - \nu_{+}}{FSR} = \underbrace{\frac{2Ln_o}{\lambda}}_{=\frac{\nu_{Laser}}{FSR}} \times \underbrace{\left(\frac{1}{1 - m/n_oLk} - \frac{1}{1 + m/n_oLk}\right)}_{\approx\frac{2m}{n_oLk}} = \frac{2m}{\pi}.$$
(4.18)

Bei dem hier beschriebenen OFC–Generator beträgt der Modulationsindex bei einer Radiofrequenzleistung von 40 dBm etwa $m = 0, 23 \times \pi$. Nach Gl.(4.17) bedeutet dies eine Verringerung des Signals um 10 dB pro 160 Moden. Dieser Wert ergibt sich aus dem erreichbaren Modulationsindex und aus der Finesse des Resonators, welche durch die optischen Verluste des LiNbO₃ Kristalls begrenzt ist. Wegen der Dispersion des LiNbO₃– Kristalls sind die Resonatormoden jedoch nicht völlig äquidistant, so daß der OFC bei einer Entfernung von etwa 2,6 THz vom Träger plötzlich abbricht. Dieses Dispersionslimit ist proportional zur Wurzel des Modulationsindex [82].

4.3 Kalibrierung des HeNe–Standards

Weil der Helium-Neon-Standard, wie er in Abschnitt 4.2.1 beschrieben ist, nicht auf eine bestimmte Hyperfeinkomponente stabilisiert wird, läßt sich seine Absolutfrequenz nicht ohne weiteres aus den in der Literatur verfügbaren Angaben über die Methanresonanz [86, 87] ableiten. Außerdem würden auf diese Weise die systematischen Fehler bei der Darstellung dieser Resonanz, die sich bei einer direkten Kalibrierung herausheben, in das Fehlerbudget mit eingehen. Deswegen war ein Hauptgesichtspunkt bei der Konstruktion des HeNe-Standards dessen Transportierbarkeit. Dadurch ist es möglich den Laser mit

 $^{^{20}}$ Das heißt nicht, daß bei dieser Laserposition nur jedes zweite Seitenband erzeugt wird, weil es zusätzlich noch eine Phasenmodulation gibt.

Hilfe einer an der Physikalisch Technischen Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig von B. Lipphardt, G. Kramer und C.O. Weiss entwickelten Frequenzkette phasenkohärent mit deren Cäsium–Atomuhren zu vergleichen. Diese Cäsiumuhren zählen zu den genauesten der Welt. Sie weichen von der Frequenz des ungestörten Cäsiumatoms um weniger als $1, 5 \times 10^{-14}$ ab [88, 89]. Das Prinzip der Braunschweiger Frequenzkette ist ähnlich wie in Garching, allerdings wird neben einem HeNe–, zwei CO₂– und einem Methanol– Laser (4252 THz = $1/7 \times f(CO_2)$) am hochfrequenten Ende, ein Wasserstoff–Maser, ein Rückwärtswellen–Generator (387 GHz = $1/11 \times f(Methanol)$) und ein Gunn–Oszillator (22,7 GHz = $1/17 \times 387$ GHz) am niederfrequenten Ende verwendet. Dadurch sind andere Techniken für die Erzeugung der Schwebungssignale notwendig. Auch ist, insbesondere am niederfrequenten Ende, die Bildung von Harmonischen nicht auf ein Verdoppeln der Frequenz beschränkt. Die verwendeten Zähler in der Kette werden einmal pro Sekunde ohne Totzeit ausgelesen, so daß es möglich ist, die Meßzeiten (> 1 Sekunde) bei der Auswertung nachträglich festzulegen. Eine detaillierte Beschreibung dieser Frequenzkette findet sich in [59, 90].

Seit 1967 ist die Sekunde festgelegt als die Zeit, die zwischen 9 192 631 770 Perioden beim Übergang zwischen den zwei Grundzustands-Hyperfeinkomponenten des Cäsium 133 vergeht. Wegen dieser Definition muß jede Zeitmessung ein Vergleich mit einer Cäsiumuhr sein, der meist indirekt erfolgt. Durch die Verwendung eines periodischen Vorgangs reduziert sich die Zeitmessung auf eine Zählung von Perioden. Zeit- und Frequenzmessungen sind demnach äquivalent.

Die Messung der 1S–2S Frequenz im Wasserstoff erfolgte dadurch in zwei getrennten phasenkohärenten Schritten. Zuerst wurde der HeNe–Standard mit Hilfe der Garchinger Frequenzkette, wie in Abschnitt 4.1.1 beschrieben, phasenkohärent mit dem Wasserstoff–Übergang verglichen, um dann den Standard phasenkohärent mit den Braunschweiger Cäsiumuhren zu vergleichen. Auf die Reihenfolge kommt es dabei nicht an. Wie in Abschnitt 4.1.3 erläutert, ist der Frequenzvergleich über den Vergleich der Phase zweier Schwingungen günstiger, weil sich die Genauigkeit durch eine lange Meßzeit im Prinzip beliebig steigern läßt. In diesem Zusammenhang wäre natürlich ein vollständig phasenkohärenter Vergleich der 1S–2S Frequenz mit den Schwingungen des Cäsiumatoms erstrebenswert (vergl. Abschnitt 8.1). Eine Messung, bei der eine optische Frequenz phasenstarr mit einer Cäsiumuhr verglichen wurde, ist kürzlich bei der PTB gelungen, die ihre Frequenzkette bis zur ${}^{3}P_{1} - {}^{1}S_{0}$ Kalzium–Interkombinations–Linie bei 456 THz erweitert hat [59].

Die erste Bestimmung der Absolutfrequenz unseres Standards mit eingebautem Hyperfeinlaser erfolgte im Rahmen eines Besuchs von Dmitry Tyurikov aus der Gruppe von Prof. Gubin (Lebedev Institut, Moskau) im November 1995 in Garching. In dieser Gruppe wird, ähnlich wie im Institut von Prof. Bagayev, seit langem an HeNe–Standards gearbeitet. Weil einer dieser Laser zu dieser Zeit bei der PTB kalibriert wurde, bot sich die Gelegenheit, diesen in Garching mit unserem Standard zu vergleichen. Die Stabilisierung des Lasers von Dmitry Tyurikov erfolgt ähnlich wie bei unserem Standard [87, 91]. Die Detektion der Hyperfeinstruktur erfolgt allerdings über die Dispersion, die erst von einem Computer registriert und dann zum Anpassen der theoretischen Linienform verwendet wird. Nach jeder Anpassung (etwa alle 10 sec) wird der Laser auf den neu ermittelten Wert eingestellt. Das Abtasten der Hyperfeinstruktur wird auch bei diesem Laser durch die Verwendung von drei Laserröhren, wie in Abschnitt 4.9 beschrieben, durchgeführt. Weil der Heterodynlaser etwa 500 kHz unterhalb der Methanresonanz stabilisiert wird, liegt die Ausgangsfrequenz dieses Lasers um etwa 1,5 MHz tiefer als die Ausgangsfrequenz unseres Standards aus Novosibirsk. Das Ergebnis der Beobachtung der Schwebungsfrequenz über einen Zeitraum von drei Tagen zeigt Abbildung 4.18.



Abbildung 4.18: Drei Histogramme der Schwebungsfrequenzen zwischen dem Garchinger HeNe-Standard und dem HeNe-Standard von Dmitry Tyurikov aus Moskau, aufgenommen an drei verschiedenen Meßtagen. Der Mittelwert ergibt sich zu 1 499 743 Hz.

Es ist deutlich zu erkennen, daß jeder Meßtag eine annähernd gaußförmige Verteilung der Meßwerte liefert, die Mittelwerte jedoch im Rahmen ihrer Standardabweichungen nicht besonders gut zusammenpassen. Dieses Phänomen ist auch in Ref.[87] und in Ref.[92] beschrieben und trat auch bei der direkten Kalibrierung unseres Lasers bei der PTB auf. Die Standardabweichung einer zu kleinen Meßserie, insbesondere wenn der Standard während der Serie nicht neu justiert oder transportiert wurde, ist offensichtlich kein gutes Maß für die Langzeitreproduzierbarkeit. Bei der korrekten Angabe des Fehlers handelt es sich aber in diesem Zusammenhang um ein ungelöstes Problem [87, 92]. Um dennoch eine verläßliche Fehlerabschätzung zu erhalten, wurden bei der Kalibrierung und bei der Messung der 1S–2S Frequenz möglichst große Datenmengen zusammengefaßt. Der Vergleich unseres Lasers mit dem Laser von Dmitry Tyurikov wurde deswegen nur als ein Meßwert bei der Bestimmung der Absolutfrequenz, ohne statistischen Fehler, verwendet. Um die Frequenz unseres Lasers zu bestimmen, wurden uns freundlicherweise die Ergebnisse der Absolutfrequenz–Messungen zur Verfügung gestellt, die Dmitry Tyurikov kurz vor und nach seinem Besuch in Garching durchgeführt hatte. Abbildung 4.19 zeigt das Ergebnis in der Übersicht.



Abbildung 4.19: Die Bestimmung der Absolutfrequenz des HeNe-Standards von Dmitry Tyurikov, aufgenommen vor und nach dem Vergleich mit unserem HeNe-Standard in Garching. Der Mittelwert ergibt sich zu 88 376 181 100 207 Hz.

Das Ergebnis dieser ersten Kalibrierung unseres Lasers, bei der die Phasenregelkreise beider Standards 25 mal neu in Betrieb genommen wurden, ergibt sich aus der Summe der Absolutfrequenz des Lasers von Dmitry Tyurikov und der gemittelten Schwebungsfrequenz. Die Frequenz f1(HeNe) unseres Standards ergibt sich demnach zu:

 $f1(\text{HeNe}) = 1\ 499\ 743\ \text{Hz} + 88\ 376\ 181\ 100\ 207\ \text{Hz} = 88\ 376\ 182\ 599\ 950\ \text{Hz}.$ (4.19)

Während der Messungen am Wasserstoff wurde unser Standard außerdem zweimal für jeweils eine Woche bei der PTB direkt kalibriert. In Abbildung 4.20 ist eine dieser Messungen zusammen mit der Lokaloszillatorfrequenz des Phasenregelkreises zwischen Referenzund Heterodynlaser wiedergegeben. Man erkennt, daß nach einer Einregelphase von etwa 20 Minuten, die Regelung des Lokaloszillators für den Referenz-Heterodynlaser-Phasenregelkreis die Langzeitdrift der Absolutfrequenz verhindert. Um die Regelzeit der Computer-Regelung auf die Hyperfeinstruktur, wie sie in Abschnitt 4.9 beschrieben ist, zu kontrollieren, wurde bei jeder Messung die Einregelphase mit aufgezeichnet. Anhand



Abbildung 4.20: Vermessung des Garchinger HeNe-Standards an der PTB. Die fettgedruckte Linie gibt die Absolutfrequenz des Standards an, während er auf die Hyperfeinstruktur stabilisiert war (etwa 2 Stunden). Die dünne Linie zeigt das Regelsignal, die Frequenz das Lokaloszillator für den Referenz- und Heterodynlaser Phasenregelkreis.

des Verlaufs des Regelsignals (Lokaloszillatorfrequenz für den Referenz-Heterodynlaser-Phasenregelkreis), läßt sich auch im Nachhinein entscheiden, welche Meßwerte nicht verwendet werden dürfen. Der Lokaloszillator wurde während der gezeigten Messung um fast 100 Hz verstellt, das heißt, der Referenzlaser driftete um etwa diesen Betrag, während die Absolutfrequenz des Lasers auf etwa ± 25 Hz konstant blieb. Wegen der langen Regelzeit (hier 166 Sekunden Halbwertzeit bis zum Erreichen des Regelpunktes), erkennt man aber auch eine deutliche Korrelation der beiden Frequenzen innerhalb von kurzen Zeiten. Um diese Kurzzeitschwankungen aus dem Endergebnis auszuschließen, müssen die Wasserstoffmessungen und die Kalibrierung möglichst oft wiederholt werden. Die Auswertung von 11 Kalibrierungen im Juni 1996, wie in Abbildung 4.20, ergab:

$$f2(\text{HeNe}) = 88\ 376\ 182\ 599\ 963\ \text{Hz}.$$
 (4.20)

Die Auswertung von 12 Kalibrierungen im Juli 1996 ergab:

$$f_3(\text{HeNe}) = 88\ 376\ 182\ 599\ 893\ \text{Hz}.$$
 (4.21)

Einen Überblick über alle zur Kalibrierung zur Verfügung stehenden Daten gibt Abbildung 4.21. Diese Abbildung vermittelt ein Gefühl für die zu erwartende Unsicherheit in der Absolutfrequenz. Man erkennt, daß Einzelmessungen (einmaliges in Betrieb setzen der Phasenregelkreise) um bis \pm 100 Hz vom Mittelwert abweichen können.



Abbildung 4.21: Bestimmung der Absolutfrequenz des HeNe-Standards aus allen verfügbaren Daten. Links: Aus dem Vergleich mit dem Standard von Dmitry Tyurikov. Mitte und rechts: Aus den Messungen an der PTB.

Als Gesamtergebnis der Kalibrierung ergibt sich der Mittelwert und die Standardabweichung aus den drei als Einzelmessung betrachteten Werten aus den Gleichungen (4.19), (4.20) und (4.21):

$$f(\text{HeNe}) = 88\ 376\ 182\ 599\ 937(23)$$
 Hz. (4.22)

Der 1 σ Fehler von 23 Hz oder 2, 6 × 10⁻¹³ scheint eine vernünftige Fehlerabschätzung zu sein, falls, ähnlich wie bei der Kalibrierung, der Laser zum Messen etwa 50 mal in Betrieb gesetzt wird.

Ein anderes oft verwendetes Maß für die Qualität von Frequenzstandards ist die Allan-Varianz $\sigma(\tau)$ [93, 94]. Für eine Schwingung $\sin(2\pi\nu_o t + \varphi(t))$ ist diese formal identisch mit der über viele Messungen gemittelten Standardabweichung zweier aufeinanderfolgender, über die Zeit τ gemittelter Frequenzmessungen:

$$\sigma^2(\tau) = \frac{1}{\tau^2 \nu_o^2} \left\langle \frac{\left(\varphi(tk)\right) - \varphi(t(k+1))\right)^2}{2} \right\rangle_k, \qquad (4.23)$$

wobei $\varphi(t)/\tau$ die von der Zeit $t - \tau$ bis zur Zeit t gemittelte Frequenz ist. Diese Größe wird von einem Frequenzzähler mit der Torzeit τ angezeigt. Die Allan–Varianz ist ein Maß für die Stabilität eines Frequenzstandards, aber nicht für dessen Reproduzierbarkeit.



Abbildung 4.22: Auf die Absolutfrequenz normierte Allan-Varianz des Standards.

Sie ist deswegen für eine Absolutfrequenzmessung nicht wirklich von Bedeutung. Bei der Messung der Wasserstoff–Deuterium–Isotopieverschiebung bestimmt allerdings die Stabilität innerhalb der Zeit, die zum Umrüsten von einem Isotop zum anderen benötigt wird, den durch den Standard verursachten Meßfehler. Abbildung 4.22 zeigt die Allan–Varianz, wie sie sich aus der Messung in Abbildung 4.20 ergibt. Für kürzere als die angegebenen Mittelungszeiten ist die Allan–Varianz durch die Braunschweiger Frequenzkette (genauer, durch den verwendeten Wasserstoff–Maser [59]) begrenzt. Man erkennt, daß diese für alle angegebenen Mittelungszeiten τ deutlich besser ist als die Reproduzierbarkeit des Standards. Wird der Standard nicht auf die Hyperfeinstruktur stabilisiert, so wird die Allan–Varianz noch einmal etwas kleiner. Das heißt, die Stabilität nimmt zu, aber die Reproduzierbarkeit ab.

5. Ergebnisse der Wasserstoff-Messungen

5.1 Die 1S–2S Absolutfrequenz

Die 1S–2S Übergangsfrequenz, wurde mit der in Abbildung 4.1 dargestellten Frequenzkette zusammen mit den in Abbildung 4.14 dargestellten optischen Teilerstufen gemessen. Bei den Messungen wurde mit dem Farbstofflaser die 1S–2S Resonanz sehr oft abgetastet, indem die Frequenz des akustooptischen Modulators (AOM), der in Abbildung 3.1 eingezeichnet ist, verstellt wurde. Gleichzeitig zur detektierten Lyman– α –Fluoreszenz, wurde der Radiofrequenzzähler am Ende der Teilerstufenkette mit einem Computer ausgelesen, wobei die Torzeit des Zählers 1 Sekunde betrug. Nach dieser Zeit wurde jeweils die



Abbildung 5.1: Beispiel einer gemessenen Wasserstoff 1S-2S Resonanz mit angepaßter Lorentz-Funktion. Die Verzögerung war 1,51 ms bei einer Flugstrecke von 144 mm. Die Temperatur der Düse war 6,5 K.

Frequenz des Farbstofflasers weitergestellt und der Meßzyklus wiederholt. Die Drift des Farbstofflasers betrug während der Meßzeit von 1 Sekunde typischerweise 100 Hz (bei der 1S–2S Frequenz), wobei die Richtung bisweilen das Vorzeichen wechselte. Die Fluoreszenz wurde durch Zählen der Lyman– α –Photonen bestimmt, die den Detektor erreichen,

nachdem das anregende Licht für eine einstellbare Verzögerungszeit durch einen Chopper ausgeschaltet wurde (siehe Kapitel 3). Eine Chopperperiode dauerte dabei 2 bis 6 ms, sodaß während einer Sekunde über etwa 160 bis 500 verzögerte Fluoreszenz–Messungen gemittelt wurde. Um die Linienmitte zu finden, wurden Lorentz–Profile an insgesamt 41 Wasserstoff Spektren, deren maximale Verschiebung durch den Doppler–Effekt 2. Ordnung aufgrund des zeitverzögerten Nachweises kleiner als 350 Hz war. Die Linienformen der verzögerten Spektren sind zwar strenggenommen nicht Lorentzförmig, aber wie Andreas Huber [15] gezeigt hat und Abbildung 5.1 illustriert, können die Abweichungen beim gegenwärtigen Stand der Genauigkeit vernachlässigt werden. Das Ergebnis der vom 26.4.96



Abbildung 5.2: Ergebnisse der 1S-2S Absolutfrequenz-Messung am Wasserstoffatom. Jeder Punkt ist das Ergebnis der Anpassung einer Lorentz-Kurve an die Fluoreszenzrate als Funktion der gemessenen Frequenz f_z .

bis 4.7.96 durchgeführten Messungen ist in Abbildung 5.2 dargestellt. Jeder Punkt in dem Diagramm ist das Ergebnis der Anpassung einer Lorentz–Kurve an die Fluoreszenzrate als Funktion der mit dem Radiofrequenzzähler gemessenen Frequenz f_z . Der Mittelwert und die Standardabweichung der 41 Punkte lauten: $\langle f_z \rangle = 35543149, 4(2,0)$ Hz. Diese Frequenz kann mit der im Anhang 9.1.1 hergeleiteten Gleichung (9.8) in die 1S–2S Frequenz umgerechnet werden:

$$f_{1S2S}^{H} = 2\ 466\ 065\ 962\ 710, 46(64)\ \text{kHz} - 128f_z,$$

Daraus ergibt sich die Wasserstoff 1S–2S Hyperfeinzentroid Frequenz [1, 2, 3]:

$$f_{1S2S}^{H} = 2\ 466\ 061\ 413\ 187, 34(84)\ \text{kHz}$$
(5.1)

Dies ist zur Zeit sowohl die höchste als auch die am genauesten vermessene optische Übergangsfrequenz in einem Atom. Die Unsicherheit von 840 Hz setzt sich wie folgt zusammen: HeNe–Standard 28×23 Hz=644 Hz, 2. Ordnung Doppler–Effekt 350 Hz, AC– und DC– Stark Effekt 325 Hz und die Streuung der Meßwerte $128 \times 2, 0 = 256$ Hz. Die Beiträge durch den Doppler-Effekt 2. Ordnung und des Wasserstoff-Spektrometers (siehe Kapitel 3), lassen sich jetzt schon um etwa eine Größenordnung reduzieren [15], während der erste und letzte Beitrag durch den HeNe-Standard bestimmt sind. Ein besserer HeNe-Standard könnte also sofort zu einer weiteren Steigerung der Genauigkeit führen. Jede der 41 ausgewerteten Linien ist durch mehrfaches Abtasten der Wasserstoff-Resonanz entstanden. Insgesamt bestehen die 41 Linien aus 205 Einzellinien. Der Mittelwert dieser Einzellinien ergibt ein 26 Hz höheres, und die Mittelung der einzelnen Tageswerte ein 38 Hz niedrigeres Ergebnis für f_{1S2S}^H . Einen Vergleich mit früheren Messungen der 1S-2S Frequenz zeigt Abbildung 5.3. Zählt man die Dirac-Energien in Gl.(2.5) zu den Resultaten der Quantenelektrodynamik¹, so ist die Messung 1S–2S Frequenz, neben der Bestimmung des anomalen magnetischen Moments des Elektrons [95], einer der genauesten Tests dieser Theorie. Mit dem bislang genauesten Wert für die Rydberg-Konstante [96], ergibt die Theorie in Ubereinstimmung mit Gl.(5.1) 2 466 061 413 233(46) kHz, wobei der größte Fehler (32 kHz) auf den verwendeten Wert für den Proton-Ladungsradius $r_{p,ch} = 0.862(12)$ fm zurück geht. Die Theorie trägt 24 kHz, die Rydberg-Konstante 22 kHz und das Elektron–Proton Massenverhältnis 3 kHz zur Unsicherheit bei.

Mit den optischen Teilerstufen wurde auch an zwei Meßtagen die 1S–2S Absolutfrequenz in Deuterium gemessen. Zu diesem Zweck sind alle Laserdioden der Teilerstufenkette, bis auf den Zweiten (siehe Abb. 4.14), auf etwas andere Frequenzen gestellt worden. Der Mittelwert und die Standardabweichung der Mittenfrequenzen der insgesamt 14 Linien lauten: $\langle f_z \rangle = 34$ 998 463, 2(1, 1) Hz. Die ausgelesene Frequenz f_z kann mit Hilfe der im Anhang 9.1.1 hergeleiteten Gleichung (9.13) in die 1S–2S Zentroidfrequenz umgerechnet werden:

$$f_{1S2S}^D = 2\ 466\ 736\ 887\ 324, 87(64)\ \text{kHz} - 128f_z,$$

Wegen der geringen Anzahl der Messungen, wäre eine Unsicherheit in der Frequenz des Standards von 23 Hz hier sicherlich zu klein abgeschätzt (vergl. Kapitel 4.3). Weil beim Messen der 14 Linien der Standard nur zweimal in Betrieb genommen wurde, läßt sich mit Hilfe von Abbildung 4.21 die Unsicherheit einer solchen Messung auf 50 Hz abschätzen. Damit ergibt sich für die Deuterium 1S–2S Hyperfeinzentroid Frequenz:

$$f_{1S2S}^D = 2\ 466\ 732\ 407\ 521, 8(1,5)\ \text{kHz}.$$
 (5.2)

Ein genauerer Wert für die 1S–2S Frequenz in Deuterium läßt sich aus der 1S–2S Frequenz in Wasserstoff (Gl.(5.1)) und der in Kapitel 5.2 besprochenen Messung der Wasserstoff–

¹Obwohl in der Dirac–Theorie das elektromagnetische Feld nicht quantisiert ist, läßt sich zeigen, daß deren Lösung identisch ist mit der Berechnung von Feynman Diagrammen (bis zu einer gewissen Ordnung), wie sie für die QED Behandlung des Wasserstoffs verwendet werden.



Abbildung 5.3: Vergleich mit frühere Messungen der 1S-2S Frequenz [9, 97, 98, 14].

Deuterium–Isotopieverschiebung angeben. Der entsprechende Wert ist in Gl.(5.4) angegeben.

5.2 Die Wasserstoff–Deuterium–Isotopieverschiebung

Wie Abbildung 4.22 zu entnehmen ist, besitzt der HeNe–Standard eine Kurzzeitstabilität, die seine Reproduzierbarkeit um einiges übertrifft. Innerhalb einer Mittelungszeit von $\tau \approx 20$ Sekunden, würde man eine Drift um etwa 88 THz ×4×10⁻¹⁴ = 4 Hz erwarten. Für längere Zeiten wird diese Drift größer, bleibt aber unterhalb von 13 Hz für Mittelungszeiten kürzer als 1000 Sekunden (etwa 1/4 Stunde). Um die Wasserstoff-Deuterium-Isotopieverschiebung zu messen, ist es deshalb ratsam, anstatt die Absolutfrequenzen voneinander abzuziehen, schnell zwischen den beiden Isotopen hin- und herzuschalten. Dies gelingt mit den optischen Teilerstufen nicht, weil deren Neujustage etwa einen Tag in Anspruch nimmt. Deswegen wurde für diesen Zweck der optischen Frequenzkamm-(OFC)-Generator eingesetzt. Den Aufbau mit OFC-Generator ist in Abbildung 5.4 dargestellt. Dieser ersetzt den in Abbildung 4.14 gezeigten Aufbau mit den optischen Teilerstufen.



Abbildung 5.4: Der optische Frequenzkamm-(OFC)-Generator, mit dem die Frequenzlücke Δf in Abbildung 4.1 überbrückt wird.

Neben einer Laserdiode bei 850,6 nm für Wasserstoff, wurde eine zusätzliche Laserdiode für Deuterium bei 850,4 nm verwendet. Mit zwei repositionierbaren Spiegelhaltern kann mit zwei Handgriffen die Laserdioden-Frequenz umgerüstet werden. An einer Stelle der Kette muß das Schwebungssignal gezählt werden. Am günstigsten wählt man dabei eine Stelle mit einem großen Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Die korrekte Funktionsweise der Phasenregelkreise lassen sich nämlich überprüfen, indem man sie zusätzlich zählt und das Ergebnis mit dem Lokaloszillator vergleicht. Als sehr praktikabel hat sich erwiesen, die Schwebung des *n*-ten Seitenbands des OFC-Generators mit der ersten Laserdiode zu verwenden, um den Träger des OFC (die zweite Laserdiode) in der Phase zu stabilisieren. Die Laserdiode bei 848,1 nm ist dabei phasenstarr mit dem Farbstofflaser verbunden. Gezählt wurde die Schwebung mit dem Frequenzverdoppelten Farbzentrenlaser, also dem vervierfachten Standard. Um diese Schwebungsfrequenz in einen Bereich zu verschieben, in dem ein hochauflösender Zähler und ein geeigneter Filter zu Verfügung stand, wurde, genau wie bei den Messungen mit den optischen Teilerstufen, ein Radiofrequenzmischer und ein Synthesizer verwendet. Die Frequenz des Synthesizers wurde dabei so eingestellt, daß sich sowohl für Wasserstoff als auch für Deuterium eine Schwebung in der Nähe von 35 MHz ergab. Die Isotopieverschiebung ergibt sich aus der Differenz der ausgelesenen Frequenzen Δf_z des Zählers in Abbildung 5.4 mit der Gleichung (9.23) im Anhang 9.1.2:

 $f_{ISO} = 670\ 993\ 574\ 415(14)\ \text{Hz} + 8\Delta f_z$

Die Frequenzschwankungen des HeNe–Standards, der bei dieser Messung nur als eine Art Schwungrad diente, machen sich in der Streuung der Ergebnisse bemerkbar. Um Δf_z zu berechnen, wurde zunächst an alle Linien, wie bereits bei der Absolutfrequenz–Messung (Abschnitt 5.1), eine Lorentz–Funktion angepaßt. Weil der HeNe–Standard während der Messung etwas driftete, scheinen die Absolutwerte der Frequenz mit der Zeit zu variieren. Der Standard wurde für jede Meßreihe nur einmal in Betrieb genommen, das heißt neu einjustiert, mit Methan befüllt und die Regelschleifen geschlossen. Deswegen läßt sich der lineare Anteil in der Drift herausrechnen. Ein Beispiel für eine solche Meßreihe zeigt Abbildung 5.5.



Abbildung 5.5: Eine Meßreihe zur Bestimmung der Wasserstoff-Deuterium-Isotopieverschiebung.

An die Werte einer Meßreihe wurden zwei Geraden mit verschiedenem Achsabschnitt, aber gleicher Steigung angepaßt². Aus der Differenz der Achsabschnitte Δf_z ergibt sich

²Dies läßt sich völlig analog zur linearen Regression durch Minimierung von $\chi^2 = \sum_i (ax_i + b_1 - y_i)^2 + b_1 - y_i + b_2 - y_i + b$

die gesuchte Isotopieverschiebung. Die Verteilung der Werte für Δf_z aus allen Messungen, die im November und Dezember 1996 durchgeführt wurden, ist in Abbildung 5.6 zu sehen. Bei allen Messungen wurden mit einer Verzögerungszeit von 810 μ s und einem Abstand zwischen Düse und Detektor von 133 mm durchgeführt (vergl. Abschnitt 3).



Abbildung 5.6: Bestimmung der Wasserstoff-Deuterium-Isotopieverschiebung. Jeder Punkt ist das Ergebnis der Anpassung zweier Geraden mit gleicher Steigung.

Der Mittelwert und die Standardabweichung sind $\Delta f_z = 95029(19)$ Hz. Die 8 × 19 = 152 Hz statistische Unsicherheit stellen die mit Abstand größte Unsicherheit dar³. Die systematischen Unsicherheiten durch den AC–Stark– und den DC-Stark–Effekt sind für beide Isotope (im Rahmen der gegenwärtigen Präzision) identisch (vergl. Abschnitt 9.3). Eine kleine systematische Unsicherheit ergibt sich durch den Doppler–Effekt 2. Ordnung. Durch den zeitverzögerten Nachweis werden zwar für beide Isotope dieselben Obergrenzen für die Geschwindigkeiten gesetzt, es ergibt sich jedoch wegen der unterschiedlichen Massen eine leicht unterschiedliche Verteilung der Atome auf die angeregten Geschwindigkeitsklassen. Dieser Beitrag zur Unsicherheit wurde von Andreas Huber zu 20 Hz abgeschätzt [15, 40, 5]. Mit Gl.(9.23) ergibt sich für die Wasserstoff–Deuterium Isotopieverschiebung [5]:

 $[\]sum_{j}(ax_j + b_2 - y_j)^2$ durchführen, wobei die Indizes *i* und *j* nur über die Wasserstoff- bzw. Deuterium-Meßpunkte laufen. Es ergibt sich ein analytischer Ausdruck für *a*, *b*₁ und *b*₂, wobei *b*₂ - *b*₁ die gesuchte Differenzfrequenz ist.

³Aus der in Abb. 4.22 dargestellten Allan–Varianz, die sich als Standardabweichung zweier aufeinander folgender Messungen auffassen läßt, würde man eine Unsicherheit der in Abb. 5.5 dargestellten Meßreihe, bestehend aus 8 Meßpunkten, von $\sigma(\tau = 600 \text{sec}) \times f_{1S2S}/\sqrt{8/2} = 320$ Hz abschätzen. Durch die Auswertung der zehn in Abb. 5.6 dargestellten Meßreihen, erwartet man eine durch den HeNe–Standard verursachte Unsicherheit von etwa 100 Hz.

$$f_{1S2S}^D - f_{1S2S}^H = 670\ 994\ 334, 64(15)\ \text{kHz}$$
(5.3)

Dieses Resultat stellt eine Verbesserung der Genauigkeit um einen Faktor 147 gegenüber der letzten Messung [99] dar und liegt innerhalb der Unsicherheit des alten Werts. Zusammen mit der 1S–2S Absolutfrequenz im Wasserstoff aus Gl.(5.1) ergibt sich ein Wert für die 1S–2S Absolutfrequenz in Deuterium, der genauer ist als der in Gl.(5.2) angegebene:

$$f_{1S2S}^D = 2\ 466\ 732\ 407\ 521,98(85)\ \text{kHz}$$
(5.4)

Bei der Messung der Isotopieverschiebung wurde der HeNe–Standard auf die Methan– Hyperfeinstruktur stabilisiert, um weitere Werte für die 1S–2S Absolutfrequenz in Wasserstoff und Deuterium zu bekommen. Die Ergebnisse dieser Messungen sind $f_{1S2S}^{H} =$ 2 466 061 413 187,95(87) kHz und $f_{1S2S}^{D} =$ 2 466 732 407 522,88(91) kHz in Übereinstimmung mit den Resultaten in Gl.(5.1) und Gl.(5.4).

5.3 Die 1S Lamb–Verschiebung und die Rydberg–Konstante

Die gemessene und um die Hyperfeinstruktur korrigierte 1S–2S Frequenz läßt sich mit Hilfe von Gl.(2.5) in Relation zur Rydberg–Konstanten und zur 1S Lamb–Verschiebung setzen:

$$f_{1S2S}^{H} = R_{\infty} \left[e(1S) - e(2S) \right] + L_{2S}^{H} - L_{1S}^{H}.$$
(5.5)

Die Werte für $e(1S) = e(n = 1, j = 1/2, \alpha, r^H)$ und $e(2S) = e(n = 2, j = 1/2, \alpha, r^H)$ können aus Tabelle 5.1 entnommen werden. Die 1S Lamb–Verschiebung und die Rydberg– Konstante sind die in Gl.(5.5) mit der größten Unsicherheit belasteten Größen. Das bedeutet, man kann wahlweise mit einem bekannten Wert für L_{1S} die Rydberg–Konstante bestimmen oder mit Hilfe einer unabhängigen Messung der Rydberg–Konstanten die 1S Lamb–Verschiebung angeben. In jedem Fall benötigt man andere Messungen, das heißt eine zweite zu Gl.(5.5) analoge Beziehung, um die zwei "unbekannten" R_{∞} und L_{1S} zu bestimmen. Eine solche unabhängige Messung ist die kürzlich von F. Biraben und Mitarbeitern durchgeführte optische Frequenzmessung des Wasserstoff $2S_{1/2}$ – $8D_{5/2}$ Übergangs [96]: $f_{2S8D}^H = 770$ 649 561 585, 0(4, 9) kHz. Das Gleichungssystem aus

$$f_{2S8D}^{H} = R_{\infty} \left[e(2S) - e(8D) \right] + L_{2S}^{H} - L_{8D_{5/2}}^{H}$$
(5.6)

und Gl.(5.5) läßt sich nach R_{∞} und L_{1S}^{H} auflösen. e(8D) ist in Tabelle 5.1 angegeben. Die $8D_{5/2}$ Lamb–Verschiebung $L_{8D_{5/2}}^{H} = 71, 4(2)$ kHz kann wegen ihrer geringen Größe ausreichend genau berechnet [100] werden⁴. Die 2S Lamb-Verschiebung läßt sich wegen der naheliegenden 2P Niveaus mit Radiofrequenzen vermessen. Damit ergibt sich aus Gl.(5.5) und Gl.(5.6) $L_{1S}^{H} = 8172,860(34)$ MHz und $R_{\infty} = 10\ 973\ 731,568\ 64(12)\ m^{-1}$.

Wasserstoff				
$1S_{1/2}$	$e(n=1, j=1/2, \alpha, r^H)$	=	$-299\ 633\ 265,991\ 06(36)(3)$	m/s
$2S_{1/2}, 2P_{1/2}$	$e(n\!=\!2, j\!=\!1/2, \alpha, r^H)$	=	$-74\ 908\ 565,405\ 700(89)(10)$	m/s
$4S_{1/2}, 4P_{1/2}$	$e(n=4, j=1/2, \alpha, r^H)$	=	$-18\ 727\ 032,250\ 038(22)(2)$	m/s
$4D_{5/2}$	$e(n\!=\!4, j\!=\!5/2, \alpha, r^H)$	=	$-18\ 726\ 866,040\ 665(22)(0)$	m/s
$8D_{5/2}$	$e(n\!=\!8, j\!=\!5/2, \alpha, r^H)$	=	$-4\ 681\ 714,885\ 473\ 8(56)(1)$	m/s

Deuterium				
$1S_{1/2}$	$e(n=1, j=1/2, \alpha, r^D)$	=	$-299\ 714\ 794,871\ 04(19)(3)$	m/s
$2S_{1/2}, 2P_{1/2}$	$e(n\!=\!2, j\!=\!1/2, \alpha, r^D)$	=	$-74\ 928\ 947,897\ 265(47)(10)$	m/s
$4S_{1/2}, 4P_{1/2}$	$e(n\!=\!4, j\!=\!1/2, \alpha, r^D)$	=	$-18\ 732\ 127,855\ 956(12)(2)$	m/s
$4D_{5/2}$	$e(n\!=\!4, j\!=\!5/2, \alpha, r^D)$	=	$-18\ 731\ 961,\!601\ 322(12)(0)$	m/s
$8D_{5/2}$	$e(n\!=\!8, j\!=\!5/2, \alpha, r^D)$	=	$-4\ 682\ 988,775\ 991\ 6(29)(1)$	m/s

Tabelle 5.1: Theoretische Werte für $e(n, j, \alpha, r)$ aus Gl. (2.6) mit den Werten für $r^H = m_p/m_e$ und α^{-1} aus Tabelle 2.1 und $r^D = m_d/m_e = 1,999\ 007\ 501\ 3(14)\ [19]\ (m_p=Masse$ des Protons, $m_d=Masse$ des Deuterons). Die erstgenannte Unsicherheit steht für die Unsicherheit durch das experimentell gemessene Massenverhältnis und die zweite für die Unsicherheit durch α . Für Deuterium ergeben sich genauere Werte, weil dieses Isotop dem idealerweise unendlich schweren Kern etwas näher kommt.

Alternativ läßt sich die von Saveli Karshenboim berechnete Kombination $L'_2 := L_{1S} - 8L_{2S}$ verwenden [101]. Wegen der ungefähren n^{-3} Abhängigkeit der Lamb-Verschiebung lassen sich Kombinationen von Lamb Verschiebungen der Form $L_{1S} - n^3 L_{nS}$ wesentlich genauer berechnen als die einzelnen Lamb-Verschiebungen. Denn auf diese Weise fallen unbekannte, von n unabhängige Beiträge⁵ heraus. Wird in Gl.(5.5) und Gl.(5.6) die 2S Lamb-Verschiebung durch $(L_{1S} - L'_2)/8$ ersetzt und wieder nach L_{1S} und R_{∞} aufgelöst, so ergibt sich $L_{1S}^H = 8172, 892(34)$ MHz und $R_{\infty} = 10$ 973 731, 568 75(13) m⁻¹. Die beiden Methoden der Auswertung liefern in etwa die gleiche Präzision. Das arithmetische Mittel aus beiden Ergebnissen gibt einen noch etwas genaueren Wert für die Rydberg-Konstante $R_{\infty} = 10$ 973 731, 568 70(11) m⁻¹ und das Endergebnis für die 1S Lamb-Verschiebung

⁴Wegen der n^{-3} Abhängigkeit der Lamb-Verschiebung sollten zur Bestimmung der Rydberg-Konstanten hoch angeregte Zustände günstiger sein. Die n^7 Abhängigkeit des DC-Stark-Effekts zehrt den Gewinn an Genauigkeit für sehr große n allerdings wieder auf. Die Bestimmung von R_{∞} aus Gl.(5.6) alleine liefert im Gegensatz zu Gl.(5.5) einen verbesserten Wert, weil die beteiligten Lamb-Verschiebungen hinreichend genau bekannt sind [96].

⁵Wie zum Beispiel die Konstante C in Gl. (31) Ref.[16]

im Wasserstoff:

$$L_{1S}^H = 8\ 172,876(29)$$
 MHz. (5.7)

Die Berechnung dieses Wertes und dessen Fehler ist in Anhang 9.2 näher erläutert. Das Ergebnis ist etwa 60 % genauer als der bisher beste Wert von F. Biraben et al. (8 172, 798(46) MHz) [102], von dem es sich um die 1,4-fache kombinierte Standardabweichungen (die quadratisch addierten Standardabweichungen) unterscheidet. Mit zwei anderen, ähnlich genauen Messungen von M. Boshier et al. (8 172, 827(51) MHz) [103] und Martin Weitz et al. (8 172, 874(60) MHz) [21], stimmt das hier angegebene Ergebnis innerhalb der kombinierten Standardabweichungen überein. Zum theoretischen Wert der Lamb-Verschiebung ergibt sich die kleinste Abweichung, von 1,6 mal der kombinierten Standardabweichung, falls der größte gemessene Wert für den Proton Ladungsradius $r_{p,ch} = 0,862(12)$ fm, verwendet wird (vergl. Tabelle 2.1). Die Ubereinstimmung ist weniger gut für die drei anderen Werte von $r_{p,ch}$. Beim neuesten Wert $r_{p,ch} = 0,847(8)$ fm beträgt die Diskrepanz fast drei und bei $r_{p,ch} = 0,805(11)$ fm und $r_{p,ch} = 0,817(8)$ fm fast fünf kombinierte Standardabweichungen. Umgekehrt läßt sich, unter der Voraussetzung, daß die Theorie korrekt ist, der neue Wert für L_{1S}^H als eine Messung des Proton–Ladungsradius mit dem Ergebnis $r_{p,ch} = 0,890(14)$ fm auffassen. Einen Vergleich der letzten Messungen der 1S Lamb-Verschiebung mit der Theorie gestattet die linke Seite der Abbildung 5.7. Durch die Zurückführung der 2S Lamb-Verschiebung auf die 1S Lamb-Verschiebung mittlels $L_{2S} = (L_{1S} - L'_2)/8$ in Gl.(5.5) und Gl.(5.6) gehen nur noch optische Frequenzmessungen und keine Radiofrequenzmessung mehr in die Auswertung ein. Daß beide hier vorgenommenen Arten der Auswertung dieselbe Unsicherheit liefern, zeigt, daß optische Frequenzmessungen mittlerweile mit Radiofrequenzmessungen, die gewöhnlich die genauesten Meßergebnisse überhaupt produzieren, konkurrieren können. Diesen Sachverhalt veranschaulicht die rechte Seite der Abbildung 5.7, in der sich die ergebende Unsicherheit für L_{1S} als Funktion der Unsicherheit der 2S–8D_{5/2} Frequenz (die optische Frequenz mit dem zur Zeit größeren Fehlerbeitrag) dargestellt ist, wobei alle anderen Unsicherheiten als konstant angenommen worden sind. Zur Zeit beträgt der Fehler in der Bestimmung der 2S– $8D_{5/2}$ Frequenz 4,9 kHz.

Um die 1S Lamb-Verschiebung in Deuterium zu erhalten und den Wert für die Rydberg-Konstante etwas zu verbessern, wird die in Gl.(5.4) angebene 1S-2S Frequenz und die von F. Biraben und Mitarbeitern gemessene 2S-8D Frequenz ($f_{2S8D}^H = 770\ 859\ 252\ 851,\ 5(4,4)$ kHz [96]) im Deuterium verwendet, um das Gleichungssystem aus Gl.(5.5) und Gl.(5.6) für Deuterium zu lösen. Weil es keine ausreichend genaue Radiofrequenz-Messungen der 2S Lamb-Verschiebung in Deuterium gibt, wird hier nur die oben erwähnte zweite Auswertmethode mit $L'_2 = L_{1S} - 8L_{2S}$ verwendet [101]. Neben einem leicht verbesserten Wert für die Rydberg-Konstante ergibt sich daraus die 1S Lamb-Verschiebung im Deuterium zu:

$$L_{1S}^D = 8\ 184,016(30)$$
 MHz. (5.8)



Abbildung 5.7: Links: Verschiedene experimentelle Werte für die 1S Lamb-Verschiebung in Wasserstoff [21, 103, 102, 14, 104, 105] mit dem Theoriewert [16] unter Verwendung verschiedener Werte für den Proton-Ladungsradius aus der Literatur [24, 25, 26, 27]. Rechts: Unsicherheit von L_{1S} für die zwei Methoden der Auswertung: Einsetzen der L_{2S} Radiofrequenzmessung und die Zurückführung auf $L'_2 = L_{1S} - 8L_{2S}$ als Funktion der Unsicherheit der $2S-8D_{5/2}$ Frequenz.

Dieses Ergebnis ist um einen Faktor 2,6 genauer als der bisher genaueste Wert von Martin Weitz *et al.* $L_{1S}^D = 8183, 807(78)$ MHz [21] weicht von diesem aber um mehr als 2 kombinierte Standardabweichungen ab. Die Zusammensetzung des Fehlers ist im Anhang 9.2 erläutert.

Um die Unsicherheit in der Rydberg–Konstante weiter zu reduzieren, können mehrere unabhängige Messungen der 1S Lamb–Verschiebung verwendet werden, bei denen die Schwebungsfrequenz zwischen einem Viertel der 1S–2S Frequenz, mit der 2S–4S/D Frequenz [21] bzw. der 2S–4P Frequenz [103] und die Schwebungsfrequenz zwischen einem Viertel der 1S–3S Frequenz mit der 2S–6S Frequenz [102] gemessen wurden. Diese Schwebungsfrequenzen sind im einfachen Bohr'schen Atommodell genau Null, enthalten also neben den relativistischen Korrekturen und den durch die endliche Kernmasse verursachten Abweichungen Kombinationen der Lamb–Verschiebungen der beteiligten Niveaus. Die in Garching gemessene Schwebungsfrequenz $f_{2S4S}^H - 1/4f_{1S2S}^H$ [21] kann anstelle der f_{2S8D} Absolutfrequenz mit Gl.(5.5) kombiniert werden, um den Fehler in der Rydberg–Konstanten zu reduzieren:

$$f_{2S4S}^{H} - 1/4f_{1S2S}^{H} = R_{\infty} \left[e(4s) - 5/4e(2s) + 1/4e(1s) \right] + L_{4S}^{H} - 4/5L_{2S}^{H} + 1/4L_{1S}^{H}.$$
 (5.9)

Ebenso läßt sich mit $f_{2S4D_{5/2}}^H - 1/4f_{1S2S}^H [21], f_{2S4P_{1/2}}^H - 1/4f_{1S2S}^H [103], f_{2S4P_{3/2}}^H - 1/4f_{1S2S}^H [103], f_{2S6S}^H - 1/4f_{1S3S}^H [102]$ und $f_{2S6D_{5/2}}^H - 1/4f_{1S3S}^H [102]$ verfahren. Außerdem können

die in Ref.[21] am Deuterium gemessenen Schwebungsfrequenzen $f_{2S4S}^D - 1/4f_{1S2S}^D$ und $f_{2S4D_{5/2}}^D - 1/4f_{1S2S}^D$ verwendet werden. Die Schwebungsfrequenzen im Wasserstoff lassen sich noch, wie oben erläutert, auf zwei verschiedene Methoden auswerten, falls man die Radiofrequenzmessungen von L_{2S} und die theoretischen Werte für die höheren beteiligten Niveaus oder die kombinierten Lamb-Verschiebungen $L'_n = L_{1S} - n^3 L_{nS}$ [101] verwendet. Auf diese Weise ergeben sich insgesamt 17 Werte für die Rydberg-Konstante (siehe Anhang 9.2). Mit ihrer jeweiligen Unsicherheit gewichtet ergibt sich schließlich:

$$R_{\infty} = 10\ 973\ 731,568\ 646(89)\ \mathrm{m}^{-1}.$$
 (5.10)

Dieses Ergebnis stimmt gut mit dem bisher genauesten Wert, $R_{\infty} = 10\ 973\ 731,568\ 59(10)$ m⁻¹, wie er von F. Biraben *et al.* ermittelt wurde [96], überein, hat aber eine etwa 10% kleinere Unsicherheit. Die Hauptfehlerbeiträge sind in Tabelle 9.3 aufgeführt und im Anhang 9.2 erläutert. Um die hohe Präzision der gemessenen 1S–2S Absolutfrequenz in Zukunft in eine genaue Rydberg–Konstante umzumünzen, wäre eine verbesserte Messung der 1S Lamb–Verschiebung, wie sie zur Zeit in Garching vorbereitet wird, nützlich. Eine Gegenüberstellung des Resultats dieser Arbeit mit älteren Werten für R_{∞} ist in Abbildung 5.8 gegeben.

Die Rydberg–Konstante ist die am genauesten bekannte Naturkonstante. Als solche geht sie entscheidend in die Anpassung aller anderen fundamentalen physikalischen Konstanten ein, wie sie etwa alle 10 Jahre vom CODATA Komitee durchgeführt wird [106]. Bei einer solchen Ausgleichsrechnung [107] werden die Naturkonstanten, die miteinander in Beziehung stehen (zum Beispiel über $R_{\infty} = m_e c \alpha^2 / 2h$ und $\alpha = e^2 / 4\pi \varepsilon_o \hbar c$) so aufeinander abgeglichen, daß der Gesamtfehler, der ähnlich wie bei der Anpassung einer Funktion an Meßdaten definiert ist, minimal wird. Da einige Konstanten wie zum Beispiel R_{∞} sehr viel genauer bekannt sind als andere⁶, werden diese nicht variiert, sondern als Fixpunkte verwendet, die die Relationen zwischen den anderen Konstanten festlegen. Der Wert der Rydberg–Konstanten nach den zur Zeit noch gültigen Empfehlungen des CODATA Komitees [106], unterscheidet sich von den neueren Ergebnissen um etwa 2,5 Standardabweichungen (Abbildung 5.8.)

5.4 Der Deuteron Struktur– und Ladungsradius

Theoretisch lassen sich die Beiträge zur Isotopieverschiebung in verschiedene Beiträge einteilen. Der Größte entsteht durch die von der Kernmasse abhängigen Rückstoßkorrekturen. Dieser Beitrag kann größtenteils durch Gl.(2.6) berechnet, bzw. aus Tabelle

⁶Berechnet man zum Beispiel $R_{\infty} = m_e c \alpha^2 / 2h$ aus den momentan genauesten Werten für α und h, so ergibt sich $R_{\infty} = 10\ 973\ 729, 9(9,3)\ \mathrm{m}^{-1}$, was etwa 10^5 mal ungenauer ist als der oben genannte Wert.


Abbildung 5.8: Verschiedene experimentelle Werte für die Rydberg-Konstante im Vergleich mit dem Ergebnis dieser Arbeit. Der Wert "Paris 97" stammt aus Ref.[96] die anderen Werte sind in Ref.[104] und den Referenzen darin zu finden. Der Wert "CODA-TA 86" ist der vom CODATA Komitee empfohlene [106].

5.1 abgelesen werden. Der sich ergebende Wert von 671,004 GHz stimmt bereits bis auf $1, 4 \times 10^{-5}$ mit der beobachteten Isotopieverschiebung überein. Die restlichen Beiträge werden zur Lamb-Verschiebung der beteiligten Niveaus im Wasserstoff und Deuterium gerechnet. Interessant für die weitere Auswertung der experimentellen Isotopieverschiebung ist der kerngrößenabhängige Beitrag Gl.(2.13) zur Lamb-Verschiebung. Dieser läßt sich extrahieren, indem man alle anderen theoretischen Beiträge zur Isotopieverschiebung von dem gemessenen Wert abzieht. Krzysztof Pachucki hat die theoretische Isotopieverschiebung ohne den Kerngrößenbeitrag berechnet (Gl.(51) in Ref.[16]). Zwischenzeitlich wurde das Proton-Elektron-Massenverhältnis neu bestimmt [18] sowie der Beitrag durch die Polarisierbarkeit des Deuterons (18,58 kHz [108]) und ein Kerngrößenterm höherer Ordnung (-2,79 kHz [108]) sowie zwei weitere kleine Korrekturen berechnet (0,60 kHz [5] und 0,46 kHz [108]). Damit ergibt sich ein neuer Wert für die theoretische Isotopieverschiebung ohne die kerngrößenabhängigen Terme [5]:

Wird dies von der experimentellen Isotopieverschiebung aus Gl.(5.3) abgezogen, so ergibt sich:

$$\Delta ISO = ISO' - \left(f_{1S2S}^D - f_{1S2S}^H\right) = 5234, 0(2,1) \text{ kHz.}$$
(5.12)

Das ist der kerngrößenabhängige Beitrag zur Isotopieverschiebung, der sich mit Gl.(2.13) berechnen läßt:

$$\Delta ISO = \frac{7\pi^2 \alpha^4 c^4}{3h^3} \left[\mu_D^3 r_{d,ch}^2 - \mu_H^3 r_{p,ch}^2 \right] = \frac{7\pi^2 \alpha^4 c^4 \mu_D^3}{3h^3} \left[r_{d,ch}^2 - r_{p,ch}^2 + \left(1 - \frac{\mu_H^3}{\mu_D^3} \right) r_{p,ch}^2 \right],\tag{5.13}$$

wobei die reduzierten Massen $\mu_H = m_e/(1+m_e/m_p)$ und $\mu_D = m_e/(1+m_e/m_d)$ verwendet wurden. Daraus läßt sich die Differenz der quadratischen Ladungsradien von Deuteron und Proton bestimmen:

$$r_{d,ch}^2 - r_{p,ch}^2 = \frac{3h^3}{7\pi^2 \alpha^4 c^4 \mu_D^3} \Delta ISO - \left(1 - \frac{\mu_H^3}{\mu_D^3}\right) r_{p,ch}^2.$$
 (5.14)

Der zweite Term auf der rechten Seite ist etwa 2×10^{-4} mal so groß wie der erste. Im Rahmen der derzeitigen Genauigkeit spielt es deswegen keine Rolle, welcher der vier aus der Literatur verfügbaren Werte für den Proton–Ladungsradius [24, 25, 26, 27] auf der rechten Seite von Gl.(5.14) eingesetzt wird. In allen Fällen ergibt sich:

$$r_{d,ch}^2 - r_{p,ch}^2 = 3,821\ 2(15)\ \text{fm}^2.$$
 (5.15)

Damit läßt sich über den Zusammenhang [109]

$$r_{d,str}^2 = r_{d,ch}^2 - r_{p,ch}^2 - r_{n,ch}^2 - \frac{3\hbar^2}{4m_p^2 c^2}$$
(5.16)

und dem Neutron–Ladungsradius $r_{n,ch}^2 = -0, 114(3)$ fm² [110] ein Wert für den Deuteron–Strukturradius⁷ ableiten:

$$r_{d,str} = 1,975\ 35(85)\ \text{fm}$$
 (5.17)

Die Übereinstimmung mit einer theoretischen Bestimmung des Deuteron-Strukturradius $r_{d,str} = 1,9735(30)$ fm [111] ist gut. Der zur Zeit genaueste Wert $r_{d,str} = 1,953(3)$ fm aus Elektronenstreuexperimenten [112] weicht dagegen um mehr als das siebenfache der kombinierten Standardabweichung von unserem Ergebnis ab. Allerdings wurde bei der Auswertung dieses Experiments ein anderer Wert für den Neutron-Ladungsradius eingesetzt. Um ein vom Neutron-Ladungsradius unabhängiges Ergebnis zu erhalten, das

⁷In Ref.[16] ist dieser mit dem (nicht direkt) observablen Deuteron–Materieradius verwechselt worden.

sich besser mit dem unseren vergleichen läßt, kann man ausnutzen, daß in diesem Streuexperiment das Verhältnis der Formfaktoren von Proton und Deuteron bestimmt⁸ wurde. Aus diesem Verhältnis läßt sich die Differenz der Ladungsradien bestimmen[109]⁹: $r_{d,ch}^2 - r_{p,ch}^2 = 3,728(11)$ fm². Dieser Wert weicht um mehr als das 8-fache der kombinierten Standardabweichungen von unserem Ergebnis (Gl. (5.15)) ab. Der in Ref.[109] angebene theoretische Deuteron-Ladungsradius¹⁰ von $r_{d,ch} = 2,135(3)$ fm ergibt, zusammen mit Gl.(5.15), einen Proton–Ladungsradius von $r_{p,ch} = 0,859(8)$ fm, der sich um 2 kombinierte Standardabweichungen von dem Wert unterscheidet $(r_{p,ch} = 0, 890(14) \text{ fm}), \text{ der}$ in Kapitel 5.3 unter der Annahme abgeleitet wurde, daß die theoretischen Berechnungen der Lamb-Verschiebungen korrekt sind. In der Zwischenzeit wurden sämtliche existierenden Elektron-Deuteron Streudaten neu ausgewertet mit dem Ergebnis $r_{d,ch} = 2,128(11)$ fm [113]. Daraus ergibt sich mit Gl. (5.16) $r_{d,str} = 1,966(13)$ fm, falls für den Proton-Ladungsradius $r_{p,ch} = 0,862(12)$ fm [26] eingesetzt wird. Dieser Wert schließt, mit seiner großen Unsicherheit, sämtliche anderen in der Literatur exitierenden Werte ein. Werden die Werte für den Proton-Ladungsradius aus den Referenzen [24, 25, 27] verwendet, so ergibt sich in allen Fällen eine Übereinstimmung mit unserem Ergebnis in Gl. (5.17), die Ergebnisse aus den Streuexperimenten werden jedoch teilweise ausgeschlossen. Es sei noch erwähnt, daß neben dem hier verwendeten Wert für den Neutron-Ladungsradius noch andere, teilweise widersprüchliche Werte existieren [114]. Weil bei der hier vorgenommen Auswertung (mit Gl. (5.16)) nur der relativ kleine Neutron–Ladungsradius als Größe mit widersprüchlichen Literaturwerten eingeht, ist das in Gl. (5.17) angegebene Ergebnis relativ unempfindlich auf diese Inkonsistenzen. Die Verwendung der anderen Literaturwerte für $r_{n,ch}^2$ ändern unser Ergebnis nur innerhalb des angegeben Fehlers.

⁸Die zusätzliche Streuung an Protonen wurde zur Kalibrierung verwendet.

⁹Für kleine Impulsüberträge q läßt sich das Verhältnis der Formfaktoren wie folgt nähern: $(1 + 1/6r_{d,ch}^2q^2)/(1 + 1/6r_{p,ch}^2q^2) \approx 1 + 1/6r_{d,ch}^2q^2 - 1/6r_{p,ch}^2q^2$. Daraus ergibt sich die Differenz der Ladungsradien. Diese ist zwar in Ref.[112] nicht angegeben, kann aber zurückgerechnet werden.

¹⁰Die Fehlerangabe stammt aus einer privaten Mitteilung von A. J. Buchmann an Andreas Huber.

6. Absolutfrequenzmessung der Cäsium–D2–Linie

Mit dem optischen Frequenzkamm-Generator ist es möglich, Frequenzlücken von bis zu 4 THz zu messen. Damit wurde der Bereich von 843,5 nm bis 852,6 nm (351,6 bis 355,4 THz) mit der in Abbildung 6.1 gezeigten Modifikation der Frequenzkette zugänglich.



Abbildung 6.1: Aufbau zur Bestimmung der Absolutfrequenz der Cäsium-D2-Linie bei 852,3 nm (351,7 THz).

In diesen Bereich fällt die Cäsium–D2–Linie bei 852,3 nm (351,7 THz). Eine genaue Vermessung der Absolutfrequenz könnte die Voraussetzung für eine präzise Bestimmung der Feinstrukturkonstanten sein, für die in der Literatur widersprüchliche Werte existieren. Mit einem Cäsium–Atominterferometer läßt sich die Rückstoßenergie $\Delta \omega = \hbar k^2/2M_{CS}$ bestimmen, wobei M_{CS} die Masse des Cäsiumatoms darstellt. Ist die Wellenzahl k des Übergangs genau bekannt, so läßt sich daraus ein Wert für \hbar/M_{CS} berechnen. Weil atomare Massenverhältnisse sehr genau gemessen werden können, kann daraus \hbar/m_e sehr präzise bestimmt werden. Aus einem genauen Wert für \hbar/m_e , läßt sich dann α mit Hilfe der Rydberg–Konstanten $R_{\infty} = m_e c \alpha^2/2h$ bestimmen, die die am genauesten bekannte Naturkonstante ist [115].

Die in Abbildung 6.1 dargestellte Frequenzkette ist auf der langwelligen Seite bis zum Farbzentrenlaser identisch mit der in Abbildung 4.1 gezeigten Kette. Auch die Vorzeichen und Frequenzen der Lokaloszillatoren sind identisch mit den in Abschnitt 5.1 beschriebenen. Bei diesem Aufbau wird allerdings keine Frequenz gemessen, sondern mit Hilfe eines Synthesizers eingestellt. Dazu wird für den Phasenregelkreis der 848,1 nm Laserdiode ein zusätzlicher Radiofrequenz-Mischer eingefügt, der das stabilisierte Schwebungssignal um einen definierten Wert verschiebt. Aus Gl. (9.1) wird dadurch

$$f_1 = 4f - 4f_{LOHENE} + 2f_{LOCCL} - f_{LOD2} \pm f_{rf}, \tag{6.1}$$

wobe
i f_1 die Frequenz der 848,1 nm Laserdiode angibt. Das Vorzeichen von
 f_{rf} muß so gewählt werden, daß es mit der gegebenen Bandbreite des Mischers und dem Modenabstand des OFC möglich ist, die Cäsium–Resonanz zu erreichen. Ausgehend vom
 $F_g = 3$ Grundzustand war dies mit dem positiven Vorzeichen und dem 280–ten Seitenband möglich. Für die Übergänge vom $F_g = 4$ Grundzustand mußte das negative Vorzeichen
 und das 281–te Seitenband gewählt werden. Die Frequenz f_{CS}^L der 852,3 nm–Laserdiode ergibt sich dem
nach für den $F_q = 3$ Grundzustand zu:

$$f_{CS}^{L} = 4f - 280f_{OFC} + f_{rf} + 2f_{LOCCL} - 4f_{LOHENE} - f_{LOLD1} - f_{LOLD2}$$

= 351 728 646 399 748(92) Hz + f_{rf}. (6.2)

Ausgehend vom $F_g = 4$ Grundzustand war die Frequenz der 848,1 nm-Laserdiode niedriger, als die verdoppelte Frequenz des Farbzentrenlasers. Deswegen mußte das negative Vorzeichen gewählt werden (kleineres f_{rf} bedeutet eine höhere Frequenz der 852,3 nm-Laserdiode):

$$f_{CS}^{L} = 4f - 281f_{OFC} - f_{rf} + 2f_{LOCCL} - 4f_{LOHENE} - f_{LOLD1} - f_{LOLD2}$$

= 351 722 304 599 748(92) Hz - f_{rf}. (6.3)

Die Unsicherheit in der Bestimmung der Frequenz des Lasers f_{CS}^L ist nur durch den HeNe-Standard begrenzt, weil alle Synthesizer eine Cäsiumuhr (Modell HP 5071A der Firma



Abbildung 6.2: Sättigungsspektrometer zur Bestimmung der Cäsium–D2 Resonanzfrequenz.

Hewlett–Packard), mit einer spezifizierten Unsicherheit von höchstens 10^{-12} , als Referenz verwendeten.

Die Absolutfrequenzmessung wurde an einer 2 cm langen Cäsium–Gaszelle bei Raumtemperatur mit Hilfe der Doppler-freien Sättigungsspektroskopie durchgeführt [116]. Abbildung 6.2 zeigt das Spektrometer. Mit einem auf der Rückseite antireflexbeschichteten BK7–Plättchen werden etwa 4 % der Laserstrahlung für die Spektroskopie abgezweigt. Ein weiteres (unbeschichtetes) BK7–Plättchen teilt den Spektroskopiestrahl in einen schwachen Probestrahl und einen stärkeren Pumpstrahl, die dann auf weniger als 4 μ W bzw. 15 μ W abgeschwächt werden. Aufgeweitet auf einen Radius von etwa 5 mm bleiben beide Strahlen somit weit unterhalb der Sättigungsintensität der stärksten Komponente von $I_{sat} = 1, 1 \text{ mW/cm}^2$. Alle Strahlen waren vertikal polarisiert. Um den Einfluß von Streumagnetfeldern zu reduzieren, wurde die Zelle mit einer doppelten μ -Metall-Abschirmung versehen. Im entmagnetisierten Zustand betrug das longitudinale Magnetfeld am Ort der Zelle weniger als 2 μ T, was zu einer Zeeman–Verbreiterung von etwa 30 kHz führt. Zusätzlich zum Zeeman-Effekt gibt es die Durchflugsverbreiterung von $\Delta \nu_{FWHM} = \sqrt{6kT \ln(2)/M_{CS}\pi^2 w^2} = 18$ kHz bei einem Strahlradius von w = 5 mm und einer Temperatur von 300 K. Die Teilchendichte in der Zelle kann mit Hilfe der Dampfdruckkurve $(\log_{10}(p) = 9,717 - 3999/T; [p] = \text{Pascal}; [T] = \text{Kelvin})$ zu $\rho = p/kT = 5.9 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ berechnet werden. Die Stoßverschiebung der Resonanzfrequenz beträgt, bei einer Teilchendichte von 10^{21} m⁻³, weniger als 12 MHz [117]. Auf die hier vorliegende Teilchendichte extrapoliert, ergibt sich eine Verschiebung von weniger als 1 kHz¹. Die systematische Unsicherheit durch den AC-Stark-Effekt von der Größenordnung $\Omega^2/4\Delta_{HFS} \approx 440$ Hz, mit der Rabifrequenz $\Omega^2 = I\Gamma^2/2I_{sat}$ und der Verstimmung

¹Die Atome haben eine freie Weglänge von etwa $1/\rho\sigma\approx 1,9$ km bei einem Stoßquerschnitt von $\sigma\approx\pi a_o^2.$



zur nächsten Hyperfeinkomponente $\Delta_{HFS} \approx 150$ MHz, kann vernachlässigt werden.

Abbildung 6.3: Hyperfeinstruktur der Cäsium–D2–Linie. Die Zahlenangaben stammen aus Ref. [118].

Wie bereits in Kapitel 4.2.1 beschrieben, wird bei der Sättigungsspektroskopie eine Subdoppler–Auflösung erreicht, indem ein Pumpstrahl für eine gewisse Geschwindigkeitsklasse, für die es eine resonante Komponente gibt, den Übergang sättigt, oder, was im Falle kleiner Intensitäten wichtig ist, die Besetzung der Grundzustände durch optisches Pumpen verändert. Ist die Laserfrequenz so eingestellt, daß dies für die entlang der Strahlachse ruhende Geschwindigkeitsklasse der Fall ist, so ändert sich die Transmission des gegenläufigen Probestrahls, weil dieser dann mit derselben Geschwindigkeitsklasse resonant ist. Der Pumpstrahl kann dabei die Population in einen Zustand transferieren, der nicht mehr mit dem Probestrahl wechselwirkt, zum Beispiel in das andere Hyperfein-Niveau des Grundzustands. In diesem Fall erhöht sich die Transmission des Probestrahls. Es ist aber auch möglich, daß der Pumpstrahl eine Population erzeugt, die stärker mit dem Probestrahl wechselwirkt². In diesem Fall wird die Transmission des Probestrahls geschwächt. Es kommt zu einer invertierten Linie [116]. Mit Hilfe eines Choppers und eines Lock-in Verstärkers läßt sich direkt die Differenz der Transmission mit und ohne Pumpstrahl messen. Die sich ergebende Kurve besteht im Idealfall aus lorentzförmigen Hyperfeinkomponenten, die mit einem Doppler–Untergrund multipliziert sind [119]. Weil die gemessenen Hyperfein-Multipletts sich jeweils ein gemeinsames unteres Niveau teilen, gibt es zusätzlich Kreuzresonanzen, die entstehen wenn Pump- und Probestrahl über zwei verschiedene Ubergänge mit derselben, nicht ruhenden Geschwindigkeitsklasse resonant sind. In diesem Fall gleicht die Doppler-Verschiebung den Unterschied in der Resonanzfrequenz aus. Die Transmission des Probestrahls kann sich dabei erhöhen oder erniedrigen

²Dies ist zum Beispiel bei dem geschlossenem Übergang $F_g = 4 \longrightarrow F_e = 5$ der Fall. Unabhängig von der Polarisation wird dabei stets in einen stark absorbierenden Zustand gepumpt.

[116]. Diese Kreuzresonanzen liegen immer genau zwischen zwei gewöhnlichen v = 0 Resonanzen. Sie eignen sich deshalb, um die Konsistenz der Meßergebnisse zu überprüfen.



Abbildung 6.4: Linienstruktur der Cäsium–D2–Hyperfeinkomponeten. F_g gibt das Hyperfeinniveau des Grundzustands und F_e das Hyperfeinniveau des angeregten Zustands an. Die Kreuzresonanzen sind mit zwei Werten für F_e bezeichnet.

Um die Zentroidfrequenz f_{CS} der D2–Linie angeben zu können, muß die Hyperfeinstruktur des $6S_{1/2}$ Grundzustands und des angeregten $6P_{3/2}$ Zustands eingesetzt werden. Das einzige stabile Isotop ¹³³Cs besitzt einen Kernspin von 7/2. Die Hyperfeinaufspaltung zeigt schematisch Abbildung 6.3. Der A_g Faktor der magnetischen Hyperfeinstruktur des Grundzustands ist per Definition $1/4 \times 9$ 192 631 770 Hz. Die magnetische und elektrische Hyperfeinstruktur des angeregten Zustands wurde von C. Tanner und C. Wieman vermessen [118]: $A_e = 50,275(3)$ MHz und $B_e = -0,53(2)$ MHz. Für die insgesamt 6 Hyperfeinkomponenten ergibt sich:

$$f_{CS} = f_{32} - \frac{9}{4}A_g + \frac{27}{4}A_e - \frac{135}{252}B_e$$

$$f_{CS} = f_{33} - \frac{9}{4}A_g + \frac{15}{4}A_e + \frac{45}{252}B_e$$

$$f_{CS} = f_{34} - \frac{9}{4}A_g - \frac{1}{4}A_e + \frac{117}{252}B_e$$

$$f_{CS} = f_{43} + \frac{7}{4}A_g + \frac{15}{4}A_e + \frac{45}{252}B_e$$

$$f_{CS} = f_{44} + \frac{7}{4}A_g - \frac{1}{4}A_e + \frac{117}{252}B_e$$

$$f_{CS} = f_{45} + \frac{7}{4}A_g - \frac{21}{4}A_e - \frac{63}{252}B_e,$$
(6.4)



Abbildung 6.5: Die $F_g = 3 \longrightarrow F_e = 4$ Resonanz aus Abbildung 6.4 mit gestreckter Frequenzachse und angepaßter Lorentz-Funktion.

wobei f_{32} die Frequenz des Übergangs $F_g = 3 \longrightarrow F_e = 2$ etc. ist. Genausoviele Gleichungen für die Zentroidfrequenz ergeben sich aus den Kreuzresonanzen. Abbildung 6.4 zeigt zwei der insgesamt vier Linien, die unter den angegebenen Bedingungen gemessen wurden. Um das Linienzentrum genauer als die natürliche Linienbreite von etwa $\Gamma = 5, 5$ MHz zu bestimmen, ist ein gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis notwendig. Durch sehr langsames Abtasten mit großer Lock-in-Zeitkonstante wird dies erreicht.

Einen Überblick, wie gut dieses Verhältnis ist, gibt Abbildung 6.5, in der die $F_g = 3 \longrightarrow F_e = 4$ Komponente aus Abbildung 6.4 mit gestreckter Frequenzachse dargestellt ist. Die angepaßte Lorentz-Funktion hat eine Linienbreite (FWHM) von 6,9 MHz und kommt damit der natürlichen Linienbreite recht nahe. Um die Linienmitten der Komponenten zu finden, wurde an jede der Resonanzen eine Lorentz-Kurve mit einem linearem Untergrund, um den Einfluß von benachbarten Linien zu reduzieren, angepaßt.

In Tabelle 6.1 sind die Ergebnisse Absolutfrequenzmessung der Cäsium–D2–Linie dargestellt. Dabei ist auch jeweils die Radiofrequenz angegeben, die auf der Linienmitte eingestellt war. Alle Ergebnisse sind Mittelwerte über zwei Meßtage. Die in der dritten Spalte angegebenen Werte geben an, bei welchen Frequenzen Kreuzresonanzen zu erwarten sind. Sie sind aus den v = 0 Resonanzen berechnet und dienen der Kontrolle. Die größte Abweichung beträgt 199 kHz und ist damit doppelt so groß wie die Standardabweichung einer Einzelmessung. Für die invertierten Linien scheinen die gemachten Annahmen über die Linienform schlechter erfüllt zu sein, weil sich Lorentz–Profile nicht besonders gut an die Daten anpassen lassen. Berechnet man mit Gl.(6.2), (6.3) und (6.4) jeweils die Hyperfeinzentroid Frequenz für die sechs v = 0 Resonanzen, so ergibt sich als Mittelwert:

$$f_{CS} = 351\ 725\ 718\ 460(36)\ \text{kHz} \tag{6.5}$$

Die angebene Unsicherheit ist die Standardabweichung der sechs gemittelten Absolutfrequenzen. Dieses Ergebnis ist 250 mal genauer als die bisher genaueste Messung [120], unterscheidet sich jedoch von diesem um 4,3 Standardabweichungen. In Tabelle 6.2 ist dieser Wert zusammen mit den Ergebnissen anderer Autoren aufgeführt. Die Unsicherheit der Absolutfrequenz der Cäsium–D2–Linie ist jetzt nicht mehr sehr viel größer als deren Hyperfeinstruktur. Deswegen könnte bei einer weiteren Steigerung der Genauigkeit, zum Beispiel durch die Verwendung eines Cäsium–Atomstrahls, diese auch bestimmt werden.

Übergang	f_{rf}/MHz	Kreuzresonanz	f_{cs}^L / MHz
$F_g = 3 \longrightarrow F_e = 2$	1903,211		351 730 549,611
$F_g = 3 \longrightarrow F_e = 2,3$	1979,088	1978,889	351 730 625, 488
$F_g = 3 \longrightarrow F_e = 3$	2054,568		351 730 700,968
$F_g = 3 \longrightarrow F_e = 2, 4$	2079,643	2079,512	351 730 726,043
$F_g = 3 \longrightarrow F_e = 3, 4$	2155,168	2155,191	351 730 801, 568
$F_g = 3 \longrightarrow F_e = 4$	2255,814		351 730 902, 214
$F_g = 4 \longrightarrow F_e = 5$	344,238		351 721 960, 362
$F_g = 4 \longrightarrow F_e = 4,5$	469,532	469,647	351 721 835,068
$F_g = 4 \longrightarrow F_e = 3,5$	570,152	570,307	351 721 734,448
$F_g = 4 \longrightarrow F_e = 4$	$595,\!056$		351 721 709, 544
$F_g = 4 \longrightarrow F_e = 3, 4$	695,792	695,716	351 721 608,808
$F_g = 4 \longrightarrow F_e = 3$	796,375		351 721 508, 225

Tabelle 6.1: Ergebnis der Absolutfrequenzmessung der Cäsium-D2-Linie. In der zweiten Spalte ist die gemessene Radiofrequenz der Linienmitte eingetragen. Die dritte Spalte gibt die Position der aus der zweiten Spalte errechneten Kreuzresonanzen an und dient zur Kontrolle. In der letzten Spalte sind die Absolutfrequenzen der einzelnen Hyperfeinkomponenten und der Kreuzresonanzen aufgeführt, wie sie sich aus der zweiten Spalte ergeben. Die Unsicherheit der einzelnen Komponenten beträgt etwa 100 kHz.

Autor	Cäsium–D2–Resonanz / MHz
Eriksson <i>et al.</i> (1964) [121]	351 725 742(30)
Avila <i>et al.</i> (1986) [122]	$351\ 725\ 769(12)$
Carlsson <i>et al.</i> (1996) [120]	$351\ 725\ 757(9)$
diese Arbeit (1997)	$351\ 725\ 718, 460(36)$

Tabelle 6.2: Verschiedene Ergebnisse für die Cäsium-D2-Übergangsfrequenz.

7. Vergleich von OFC–Generator und Teilerstufen

Durch die gleichzeitige Verfügbarkeit des optischen Frequenzkamm-(OFC)-Generators und der Teilerstufenkette, bot sich die Möglichkeit an diese beiden unterschiedlichen Hilfsmittel zur Überbrückung von optischen Frequenzlücken miteinander zu vergleichen. Dazu wurde, wie in Abbildung 7.1 skizziert, eine Frequenzlücke von 1,059 080 6 THz mit dem OFC-Generator vorgegeben und mit den Teilerstufen vermessen.



Abbildung 7.1: Aufbau zum Vergleich der optischen Teilerstufen mit dem OFC-Generator. Die Teilerstufen aus Abb. 4.14 sind durch Symbole ersetzt worden.

Weil zum Betreiben des OFC–Generators eine möglichst große Laserleistung zur Verfügung stehen sollte, wurde eine siebte Laserdiode verwendet. Auf diesen Laser wurde die erste Laserdiode der Teilerstufen phasenstabilisiert. Die zweite Laserdiode der Teilerstufen wurde auf das 167–te Seitenband, auf der langwelligen Seite des Kamms stabilisiert. Das heißt, der OFC wurde nur einseitig verwendet. Die Modulationsfrequenz des OFC–Generators f_{OFC} betrug wie bei der Messung der Isotopieverschiebung 6,3418 GHz. Die Frequenzdifferenz zwischen dem Träger und dem 167–ten Seitenband ergibt sich analog zu Gl. (4.16):

$$\Delta f = f_2 + f_{LOLD1} - f_1 - f_{LOLD2}$$

$$= 16f_z + 64f_{rf} + f_{LOLD1} - f_{LOLD2} - f_{LOLD3} + 2f_{LOLD4} - 4f_{LOLD5} + 8f_{LOLD6},$$
(7.1)

wobei die zusätzlichen Lokaloszillatoren f_{LOLD1} und f_{LOLD2} die der ersten beiden Laserdioden der Teilerstufen sind. Diese waren, wie die anderen Laserdioden auch, auf der niederfrequenten Seite stabilisiert, das heißt die Frequenz des geregelten Lasers war niedriger als die Frequenz des Lasers, auf den geregelt wurde. Bei allen hier wiedergegebenen Vergleichen war die Radiofrequenz am harmonischen Mischer auf $f_{rf} = 16,539$ GHz (vergl. auch Abb. 4.14) und alle Lokaloszillatoren auf 50 MHz eingestellt. Die Radiofrequenzen f_{rf} , f_{OFC} sowie die Frequenzen der Lokaloszillatoren stammten aus drei Synthesizern, die dieselbe Cäsium-Atomuhr als Referenz benutzten. Man erwartet bei perfekter Übereinstimmung am harmonischen Mischer eine Frequenz von $f_z = 20,9125$ MHz. In Abbildung 7.2 ist die gemessene Frequenzlücke Δf zweier Meßreihen als Funktion der Zeit aufgetragen. Bei diesen Messungen wurden sieben synchronisierte Radiofrequenzzähler (HP 53132A der Firma Hewlett–Packard) verwendet, sechs für die phasenstabilisierten Schwebungssignale und einer, um das Ergebnis am harmonischen Mischer auszulesen. Mit Hilfe der ersten sechs Zähler gelang es, den Einfluß der sporadisch auftretenden Verluste von optischen Zyklen der Phasenstabilisierung aus den aufgenommenen Daten im nachhinein zu entfernen.

Die mit den großen Kreisen markierten Punkte sind diejenigen, bei der einer der sechs Kontrollzähler eine Frequenz gemessen hat, die sich um mehr als 0,5 Hz vom vorgegebenen Lokaloszillator unterschied. Diese Punkte wurden für die Auswertung verworfen. Man erkennt im rechten Teil der Abbildung, daß selbst bei gehäuftem Auftreten von Verlustzyklen diese sicher detektiert werden konnten und somit das Ergebnis nicht verfälschten. Der genaue Wert der gesetzten Schwelle (hier 0,5 Hz) war dabei nicht entscheidend. Im Zweifelsfall wird man allerdings eher ein paar Punkte zuviel aussortieren. Die Anzahl der Verlustzyklen hängt von der Justage der Teilerstufen ab, da diese sich auf das Signal-zu-Rausch-Verhältnis der stabilisierten Schwebungssignale auswirkt. Bei einem Signal-zu-Rausch-Verhältnis von etwa 25 dB in 1 MHz Bandbreite verlieren die Komparatoren (Typ NE5214D der Firma Signetics), die aus dem Schwebungssignal ein TTL-Signal erzeugen, erfahrungsgemäß keine Zyklen. Aber selbst bei gutem Signal-zu-Rausch-Verhältnis schwankt die Häufigkeit der Zyklenverluste. Dies ist möglicherweise auf



Abbildung 7.2: Mit einer Torzeit von 1 Sekunde gemessene Differenzfrequenz zwischen dem Träger und dem 167-ten Seitenband des OFC's. Der Mittelwert ist im linken Beispiel $-7, 3 \pm 14$ mHz und im rechten $-0, 2 \pm 12$ mHz. Datenpunkte, bei denen möglicherweise "cycle slip" auftraten, sind durch größere Punkte markiert. Alle Punkte mit einer Abweichung größer als 5 Hz, oder kleiner als -5 Hz, wurden ober- bzw. unterhalb der horizontalen Linien eingezeichnet.

technisches Rauschen zurückzuführen, das heißt durch Einstreuung von Störsignalen in unzureichend abgeschirmte elektronische Komponenten¹. Bei sehr schlechten Signal-zu-Rausch-Verhältnis ergibt sich eine starke Fluktuation des Tastverhältnisses am Ausgang der Komparatoren. Weil dadurch unter Umständen sehr kurze Zyklen auftreten, kann es in der nachfolgenden digitalen Elektronik, die in ihrer Arbeitsgeschwindigkeit den Komparatoren unterlegen ist, zu Störungen und damit zum Verlust von Zyklen kommen². Bei den hier wiedergegebenen Messungen spielte dieser Effekt jedoch keine Rolle.

Durch die Verwendung einer höheren Torzeit der Zähler läßt sich im Prinzip die Meßgenauigkeit, bei gleicher Gesamtmeßzeit, proportional zur Wurzel aus der Torzeit steigern. Dies ist leicht anhand der Formel für die Standardabweichung einer Meßreihe x_i mit N

²Um diese seltenen Ereignisse überhaupt auf einem Oszilloskop sichtbar zu machen, muß es möglich sein, dieses auf eine Pulsdauer zu triggern.

¹Die in Ref.[57] angegebene Abschätzung der mittleren Zeit zwischen zwei "cycle slips" ergibt bei einem Signal-zu-Rausch-Verhältnis von 25 dB in 1 MHz = 15 dB in der verwendeten 10 MHz Filterbandbreite etwa 50 Jahre bei einem Detektionsbereich des Phasendetektors von $\pm 2\pi$. Diese, durch das Schrotrauschen erzeugten Verlustzyklen, sollten also bei dem hier verwendeten Phasendetektor mit einem Detektionsbereich von $\pm 16\pi$ absolut vernachlässigbar sein. Der Kehrwert der in der digitalen Datenkommunikation verwendeten "bit error rate" $BER = 1/2 \exp(-n)$, mit der mittleren Photonenzahl n pro Zyklus (=86000 bei 1 μ W und 50 MHz) ergibt die mittlere Anzahl der Zyklen zwischen zwei "cycle slips" bei schrotrauschbegrenzter Detektion. Die mittlere Zeit zwischen zwei "cycle slips" ist demnach noch wesentlich größer als 50 Jahre.

Meßpunkten von ihrem Mittelwert \bar{x} zu sehen: $\sigma = \sqrt{\sum_i (x_i - \bar{x})^2 / N(N-1)}$. Wird die Torzeit zum Beispiel um einen Faktor 10 erhöht, so verringert sich im Mittel die Abweichung $(x_i - \bar{x})$ und die Anzahl der Summanden $\sum_i (x_i - \bar{x})^2$ auf ein Zehntel. Gleichzeitig verringert sich die Anzahl der Meßpunkte um den gleichen Faktor. Je länger die Torzeit gewählt wird, desto geringer wird also die statistische Unsicherheit. Allerdings erhöht eine zu hohe Torzeit die Wahrscheinlichkeit für den Verlust eines Zyklus innerhalb der Torzeit. Idealerweise wäre also die Torzeit genau die Zeit zwischen zwei Verlustzyklen. Diese läßt sich aber erst nach der Messung bestimmen. Mit kontinuierlich laufenden Zählern, die ohne Totzeit ausgelesen werden können, wäre ein Festlegen der Torzeit auch nach der Messung möglich. Solche Zähler standen aber zum Zeitpunkt der Messungen nicht zur Verfügung. Ein weiteres Problem bei der Wahl einer großen Torzeit betrifft die Detektion von Verlustzyklen. Bei erhöhter Torzeit können diese nach der oben beschriebenen Weise nicht sicher erfaßt werden, weil ein verlorener Zyklus sich auf die Frequenzunsicherheit der verlängerten Torzeit verteilt und daher unter Umständen nicht mehr vom dem, trotz Phasenstabilisierung vorhandenen Phasenrauschen zu unterscheiden ist. Eine Lösung dieses Problems wäre die Wahl von verschiedenen Torzeiten für die Detektion der Verlustzyklen und die Bestimmung der Frequenz f_z am harmonischen Mischer. Weil das Verhältnis der Meßzeit, inklusive dem Auslesen der Zähler, zur Torzeit bei dem verwendeten Modell jedoch nur etwa 90 % beträgt, würden auf diese Weise 10% der Verlustzyklen nicht detektiert. Auch dieses Problem ließe sich mit kontinuierlich arbeitenden Zählern beheben. Um trotzdem etwas über das Verhalten der statistischen Unsicherheit bei Verlängerung der Torzeit zu erfahren wurden auch Messungen mit 10 und 100 Sekunden Torzeit durchgeführt. Zwei solche Meßreihen zeigt Abbildung 7.3.

Bei der auf der linken Seite der Abbildung 7.3 dargestellten Meßreihe, konnte wegen der größeren Torzeit nicht eindeutig ermittelt werden, ob die aus der Reihe fallenden Punkte durch Verlustzyklen ausgelöst wurden. Durch eine Verringerung der Schwelle für die Abweichung von der Lokaloszillatorfrequenz lassen sich diese zwar aussortieren, mit ihnen werden dann aber auch die meisten anderen Punkte verworfen. Während die auf der linken Seite der Abbildung 7.3 dargestellte Meßreihe nach dem Herausstreichen der vemeintlich fehlerhaften Punkte noch in etwa die zu erwartetende Reduktion der Unsicherheit (von 14 mHz bzw. 12 mHz in Abbildung 7.2 auf 2,1 mHz) erbringt, gilt das für die Datenpunkte die mit einer Torzeit von 100 Sekunden aufgenommen wurden, trotz längerer Meßzeit nicht mehr (Rechte Seite der Abbildung 7.3).

Eine Zusammenfassung aller Meßreihen mit einer Torzeit von einer Sekunde ist in Abbildung 7.4 gezeigt. Bei den vier in der Abbildung grau eingezeichneten Meßreihen, die kurz nacheinander am selben Abend durchgeführt wurden, ergab sich eine gravierende Abweichung vom erwarteten Ergebnis. Da dieser Effekt später nicht mehr aufgetreten ist, konnte die Ursache nicht geklärt werden. Möglich schien zunächst eine Störung oder ein (automatisches ?) Nachregeln der internen Phasenregelkreise, die zum Stabilisieren der Synthesizer



Abbildung 7.3: Links: Mit einer Torzeit von 10 Sekunden gemessene Differenzfrequenz zwischen dem Träger und dem 167-ten Seitenband des OFC's. Der Mittelwert ist $-2, 3 \pm 2, 1$ mHz falls die Punkte, die mehr als 0,5 Hz vom Mittelwert abweichen, nicht berücksichtigt werden. Mit diesen Punkten ergibt sich ein Mittelwert von -15 ± 11 mHz. Rechts: Eine Messung mit einer Torzeit von 100 Sekunden. Der Mittelwert beträgt 2, $6 \pm 6, 0$ mHz.

auf eine 10 MHz Referenzfrequenz verwendet wurden. Da die beiden Synthesizer, die den harmonischen Mischer und den OFC–Generator betreiben, diese Referenzfrequenz in die 1 THz Frequenzlücke konvertieren, wäre eine Phasenverschiebung des Referenzsignals von 2, 6° pro Stunde ausreichend, um die in Abbildung 7.4 dargestellte Diskrepanz zu verursachen. Die folgende mehrtägige Registrierung einer Schwebungsfrequenz zwischen den beiden Synthesizern bei einer Frequenz von etwa 6 GHz und einer Auflösung von 10μ Hz brachte allerdings keinen Hinweis auf ein solches Verhalten. Möglich ist auch, daß ein Problem beim Auslesen des Zählers am harmonischen Mischer aufgetreten ist³. Unter der Annahme, daß der Grund für die große Diskrepanz der abweichenden Punkte in Abbildung 7.4 nicht in den Teilerstufen oder dem OFC–Generator zu suchen ist, ergibt sich eine Übereinstimmung bis auf $-6, 0 \pm 7, 2$ mHz:

$$\Delta f - 1\ 059\ 080\ 600\ 000\ \mathrm{Hz} = -6, 0(7, 2)\ \mathrm{mHz}$$
(7.2)

Hierbei wurden Mittelwerte über die einzelnen Meßreihen als Einzelergebnisse betrach-

 $^{^{3}}$ Auffällig ist zumindest, daß an dem betreffenden Meßtag alle (=4) Datenfiles, die mit einer Torzeit von einer Sekunde aufgenommen wurden, diesen Effekt zeigen, während alle anderen (=10) Dateien, die zum Teil zwischen den Datenfiles mit einer Sekunde Torzeit aufgenommen wurden, diesen Effekt nicht zeigen.



Abbildung 7.4: Mittelwerte der 21 Meßserien der Differenzfrequenz zwischen der Trägerfrequenz und dem 167-ten Seitenband des OFC's. Der Mittelwert der Meßserien (ohne die vier grau eingezeichneten) lautet $-6, 0 \pm 7, 2$ mHz.

tet und die in Abbildung 7.4 grau eingezeichneten Meßreihen ausgeschlossen⁴. Sowohl der OFC–Generator, als auch die Teilerstufenkette, können also die Frequenzlücke mit einer Unsicherheit von höchstens 7,2 mHz/1,06 THz = $6,8 \times 10^{-15}$ bestimmen. Die zu erreichende Genauigkeit innerhalb einer halben Stunde Meßzeit sollte (entsprechend Abbildung 7.4), unter Berücksichtigung der Dauer der Meßreihen, besser als 5×10^{-14} sein. Der Mittelwert über insgesamt 20593 Meßpunkte mit einer Torzeit von einer Sekunde ergibt sich nach Abzug von 3862 detektierten Verlustzyklen, den in Abbildung 7.4 grau eingezeichneten Meßreihen, sowie weiteren 9 Punkten mit einer Abweichung von mehr als 10 Hz zu $-1, 6 \pm 4, 3$ mHz.

Die größte systematische Fehlerquelle ist die spezifizierte systematische Unsicherheit der verwendeten Radiofrequenzzähler von 2 mHz bei 20 MHz pro Sekunde Torzeit. Dies kann bis zu 32 mHz zum Ergebnis beitragen (siehe Gl.(7.1)). Weitere systematische Effekte können durch die thermische Expansion oder Kontraktion der optischen Bank und der dadurch verursachten Doppler-Verschiebung kommen. Der thermische Ausdehnungskoeffizient von Stahl liegt bei etwa $1, 7 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, was etwa 20 Wellenlängen pro Kelvin bei 850 nm und einem Meter Distanz entspricht. Dies war in etwa der Abstand zwischen den Teilerstufen und dem OFC-Generator. Falls sich etwa die Temperatur der optischen Bank während einer typischen Meßzeit von 2500 Sekunden um 1 Kelvin ändert, kann dies eine systematische Abweichung von 8 mHz verursachen. Die Bewegung der Laserdioden der Teilerstufen entlang ihres Ausgangsstrahls verursachen eine Frequenzverschiebung, die von den Phasenregelkreisen wieder ausgeglichen wird. Diese sorgen dafür, daß die Frequenzen am Ort des Photodetektors und damit auch im Punkt der Überlagerung übereinstimmen.

 $^{^4}$ Werden diese Meßreihen nicht ausgeschlossen, so messen die Teilerstufen und der OFC–Generator die 1THz mit einem Unterschied von -36 ± 15 mHz.

Wenn sich die Strahlteiler entlang einer der beiden überlagerten Strahlen bewegen⁵, vergrößert oder verringert sich die Distanz eines der Laser zum Detektor, während die Distanz des anderen Lasers unbeeinflußt bleibt. Am anderen Ausgang des Strahlteilers, der bei der Teilerstufenkette die nächste Stufe versorgt (vergl. Abb. 4.14), ist die Situation umgekehrt: Verringert sich die optische Weglänge des einen Lasers an einem Ausgang des Strahlteilers, so erhöht sich die optische Weglänge des anderen Lasers am anderen Ausgang. Da nur Differenzfrequenzen detektiert werden, gleichen sich beide Effekte genau aus^6 . Die Frequenzverschiebung durch weitere systematische Fehlerquellen wie die Änderung des Luftdrucks oder der Lufttemperatur, die thermischen Änderung des Brechungsindex der Substrate der Strahlteiler oder der Kabellaufzeiten der Radiofrequenz-Referenzsignale, ist wesentlich kleiner. Ob das gemeinsame Driften aller Laserdioden einen systematischen Effekt verursacht⁷, wurde untersucht, indem die Laserdiode, die den OFC-Generator treibt, mit etwa 5 MHz pro Sekunde verstimmt wurde. Es konnte kein systematischer Effekt, der von der Richtung der Verstimmung abhängt, festgestellt werden⁸. Weil die Teilerstufen an zwei Stellen mit dem OFC-Generator verbunden sind, schließen sie eine gewisse Fläche ein und stellen damit ein Sagnac–Interferometer dar. Bei diesem Interferometer verschiebt sich die Resonanzfrequenz durch eine Rotation, z.B. der Erdrotation. Da es jedoch kein selbstoszillierendes Medium enthält, bewirkt gleichmäßige Rotation lediglich eine Phasenverschiebung und keine Frequenzverschiebung [123].

Auf den ersten Blick scheint die gute Übereinstimmung des OFC-Generators mit den optischen Teilerstufen gleichzeitig ein Test für die korrekte Erzeugung von Summenfrequenzen und Harmonischen zu sein. Es stellt sich jedoch heraus, daß die optischen Teilerstufen relativ robust gegenüber einer etwaigen Verletzung der als exakt angesehenen Frequenzverdopplung (bzw. Summenfrequenzbildung) sind. Sollte die Summenfrequenzerzeugung mit einer kleinen Abweichung $f_1 + f_2 + \delta(f_1, f_2)$ geschehen, dann wird bei einer optischen Teilerstufe die vermeintliche Summenfrequenz von f_1 und f_2 auf die vermeintliche Harmonische $2f_3$ stabilisiert⁹: $f_1 + f_2 + \delta(f_1, f_2) = 2f_3 + \delta(f_3, f_3)$. Weil $\delta(f_1, f_2)$ eine kleine Korrektur ist, bietet sich eine Entwicklung in eine Taylorreihe an: $\delta(f_1, f_2) = a + bf_1 + cf_2 \dots$ Die Reihenfolge bei der Summenbildung kann nicht wichtig sein. Deswegen gilt sicherlich auch $\delta(f_1, f_2) = \delta(f_2, f_1)$ und damit b = c =: A. Für die Relation der Frequenz f_3 zu den

⁵Bei einer Bewegung parallel zur Oberfläche des Strahlteilers gibt es keine Frequenzverschiebung.

⁶Man kann auch wie folgt argumentieren: Wegen der Erhaltung der Strahlenergie ist es notwendigerweise an einem Ausgang des Strahlteilers dunkel, wenn es am anderen hell ist (und umgekehrt). Deswegen sind die Schwebungen an beiden Ausgängen immer um 180° phasenverschoben und haben damit die gleiche Frequenz.

⁷Etwa durch Speicherung des Lichts im Überhöhungsresonator des OFC–Generators.

⁸Allerdings wurden bei diesen Messungen keine Verlustzyklen detektiert, weil zu diesem Zeitpunkt nicht genügend Zähler zur Verfügung standen.

⁹Vereinfachend sei angenommen, es handele sich um ein homodynes Phasenlock ($f_{LO} = 0$).

beiden anderen Frequenzen, ergibt sich dann in dieser linearen Näherung:

$$f_1 + f_2 + \delta(f_1, f_2) = 2f_3 + \delta(f_3, f_3)$$
(7.3)

$$\implies f_1 + f_2 + a + A(f_1 + f_2) = 2f_3 + a + A(f_3 + f_3) \tag{7.4}$$

$$\implies (f_1 + f_2)(A+1) = 2f_3(A+1) \tag{7.5}$$

$$\implies f_1 + f_2 = 2f_3. \tag{7.6}$$

Deswegen funktionieren die Teilerstufen selbst dann wie gewünscht (d.h. es gilt $f_3 = (f_1 + f_2)/2$), wenn es eine konstante oder lineare Abweichung $\delta(f_1, f_2)$ geben sollte. Bei der hier betrachteten kleinen Frequenzlücke gilt $f_1 \approx f_2 \approx f_3$. Daher werden eventuell auftretende Terme höherer Ordnung nur dann detektiert, wenn sie einen sehr großen Beitrag liefern. Faßt man allerdings die Modulation im OFC–Generator als Summenfrequenz des optischen Eingangssignals bei f_0 mit der verwendeten Radiofrequenz f_{OFC} auf, so legt der hier durchgeführte Vergleich zumindest $\delta \equiv 0$ im Radiofrequenzbereich nahe. Die Frequenzlücke Δf zwischen dem Träger f_0 und dem *n*-ten Seitenband f_n hängt nämlich in allen Ordnungen von δ ab:

$$\Delta f = n f_{OFC} + \sum_{k=0}^{n} \delta(f_0 + k f_{OFC}, f_{OFC})$$
(7.7)

8. Ausblick

8.1 Der optische Frequenzzähler

Zu den möglichen zukünftigen Anwendungen der optischen Teilerstufen gehört die einfache und kompakte Konvertierung von optischen Frequenzen in zählbare Radiofrequenzen. Dazu kann mit einer Kaskade von Teilerstufen die Frequenzlücke $\Delta f = f$ zwischen einem Laser der Frequenz f und seiner zweiten Harmonischen 2f gemessen werden [44, 57, 124]. Wird am Ende der Teilerstufenkette ein optischer Frequenzkamm (OFC) Generator verwendet, so läßt sich die Zahl der notwendigen Teilerstufen erheblich reduzieren. Abbildung 8.1 zeigt einen möglichen Aufbau, der zur Absolutfrequenzmessung der 2S–4S und der 2S–8S Zweiphotonen–Resonanzen (972 nm und 1555/2 nm = 778 nm) im Wasserstoff verwendet werden kann¹.



Abbildung 8.1: Vorschlag für einen optischen Frequenzzähler, mit dem die 1S–2S, 2S–4S und die 2S–8S Zweiphotonen Resonanzen in Wasserstoff gemessen werden können.

¹Die zweite Harmonische der 1555 nm-Laserdiode wird zum Betrieb der zweiten Teilerstufe erzeugt.

Mit Hilfe einer zusätzlichen Frequenzverdoppelung, 972 nm \rightarrow 486 nm, kann außerdem der 1S–2S Übergang angeregt werden. Mit der in Abbildung 8.1 dargestellten Teilerstufenkette ist ein vollständig phasenstarrer Vergleich dieser Wasserstoffübergänge mit der Cäsium–Frequenz bei 9,2 GHz möglich. Werden auf diese Weise mehrere Absolutfrequenzen im Wasserstoff gemessen, so ist es möglich, durch eine Linerakombination sowohl die Lamb–Verschiebungungen einzelner Niveaus als auch die Rydberg–Konstante aus demselben Experiment zu bestimmen. Weil in diesem neuen Typ Frequenzkette nur Laserdioden zum Einsatz kommen, kann dieser Aufbau wesentlich kompakter² und wahrscheinlich sogar transportierbar realisiert wedren. Die hohe Betriebssicherheit von Diodenlasern könnte diesem Aufbau die nötige Zuverlässigkeit verleihen, um mit hochpräzisen optischen Frequenzen gefangener Ionen oder mit magnetisch gespeichertem Wasserstoff neuartige Uhren zu bauen. Die praktische Verwendbarkeit einer solchen optischen Uhr ist von der Möglichkeit einer Konvertierung ihrer Frequenz in den Radiofrequenzbereich abhängig.



Abbildung 8.2: Zeitintervall Messung zwischen der Cäsium-Atomuhr in Garching (Startimpuls) und den GPS Zeitmarken (Stopimpuls). Die Steigung der angepaßten Geraden beträgt 6,31(33) ns/Tag.

Im Gegensatz zur harmonischen Frequenzkette lassen sich bei einer Teilerstufenkette die verwendeten Frequenzen mit sehr viel weniger Einschränkungen wählen, weil es für jede Stufe (außer der ersten) zwei Möglichkeiten gibt, die Kette fortzusetzen (siehe Abbildung 4.15). Man wird also versuchen, Wellenlängen zu verwenden, für die es leistungsstarke Laser und effiziente Kristalle für die nichtlinearen Prozesse gibt. Sämtliche Summenfrequenzen und Frequenzverdopplungen für den in Abbildung 8.1 dargestellten Aufbau lassen sich auf sehr effiziente Weise mit den seit kurzem kommerziell erhältlichen periodisch

²Die bisher verwendete harmonische Frequenzkette füllt zur Zeit zwei große optische Labors (bei der PTB und in Garching).

gepolten Lithium–Niobat Kristallen [125] realisieren. Die Konvergenz der Teilerstufenkette in den technologisch weit entwickelten Kommunikations Wellenlängenbereich um 1,55 μ m erlaubt den Einsatz eines kürzlich von Motonobu Kourogi *et al.* entwickelten OFC–Generator mit einer spektralen Breite von 30 THz breiten [126].

Die Messung optischer Frequenzen mit einem solchen Aufbau wäre nach den Ergebnissen in Kapitel 7 durch die Verfügbarkeit einer präzisen Radiofrequenz und nicht durch die Teilerstufenkette oder den OFC–Generator limitiert. Um die spezifizierte Genauigkeit einer vorhandenen Cäsium–Atomuhr (Modell HP 5071A der Firma Hewlett–Packard) von 10^{-12} weiter zu steigern, kann man deren viel bessere Stabilität mit Hilfe des Zeitsignals des satellitengestützten "Global Positioning Systems" (GPS) ausnutzen. Abbildung 8.2 zeigt die Zeitdifferenz der Cäsiumuhr relativ zu den vom GPS ausgesendeten Zeitmarken. Das breite Rauschband entsteht durch atmosphärische Störungen und eine absichtlich von den Betreibern aufmodulierte Störung ("selective availability"). Die empfangene GPS-Zeit ist dabei mit einer Genauigkeit von etwa \pm 100 ns mit UTC (Universal Coordinated Time) synchronisiert. Die langsame systematische Drift der Zeitmarken, wird durch den sogenannten Gang der Cäsiumuhr verursacht. Aus der in Abbildung 8.2 dargestellten Messung läßt sich ablesen, daß die Cäsiumuhr hier um 6,31(33) ns pro Tag (= 7, 3 $\times 10^{-14}$) zu schnell läuft. Dieser Gang läßt sich, zumindest für lange Zeiten, bis auf den statistischen Fehler von 0,33 ns aus allen mit der Cäsiumuhr gewonnenen Daten herauskorrigieren³. Die sich rein rechnerisch ergebende Ungenauigkeit von nur 0,33 ns pro Tag = $3,8 \times$ 10^{-15}) läßt hoffen, daß sich die Langzeitgenauigkeit des GPS auf die Cäsiumuhr ohne Genauigkeitsverlust übertragen läßt.

8.2 Optische Frequenzmessung mit Solitonen

Neben den optischen Frequenzkamm–Generatoren, die auf sehr effizienter elektrooptischer Modulation beruhen (siehe Kapitel 4.2.5), können auch modengekoppelte Laser verwendet werden. Das in den letzten Jahren entwickelte Prinzip des Kerr–Lens–Modenkopplung [127] ermöglicht es, auf relativ einfache Art sehr kurze Pulse von weniger als 10 fs zu erzeugen [128, 129]. Das Spektrum des Pulszuges besteht aus einem Modenkamm mit der Pulswiederholrate als Modenabstand. Bei der Kerr–Lens–Modenkopplung wird in einem Stehwellenresonator, meist ein Titan–Saphir–Laser, ein optisches Soliton erzeugt. Diese nichtzerfließenden Wellenpakete können in Medien angeregt werden, die eine negative Gruppengeschwindigkeitsdispersion⁴ $\partial^2 k/\partial \omega^2$ und einen intensitätsabhängigen Brechungsindex $n(I) = n_o + n_2 I$ (Kerr–Effekt) mit einem positiven Kerr–Koeffizienten n_2

 $^{^{3}}$ Man könnte auch die Cäsiumuhr mit einer sehr langen Zeitkonstante nachregeln. Beim Registrieren des Gangs der Uhr ist dies auch rein rechnerisch möglich. Man kann sogar im Nachhinein erst die Zeitkonstanten festlegen.

⁴Die meisten Materialien besitzen eine positive Gruppengeschwindigkeitsdispersion.

besitzen (Selbstphasenmodulation). Durch diese Materialeigenschaften ergibt sich statt der Wellengleichung, wie sie für elektromagnetische Wellen im Vakuum gilt, als Bewegungsgleichung die nichtlineare Schrödinger-Gleichung. In dieser Gleichung können sich die genannten Materialeigenschaften, die in Form zweier zusätzlicher amplitudenändernder Terme auftreten, kompensieren. Die Form der Einhüllenden der sich ergebenden Solitonlösung bleibt dann konstant [130]. Die negative Gruppengeschwindigkeitsdispersion wird in dem Resonator meist durch ein Prismenpaar [131] oder durch speziell beschichtete Spiegel [132] erreicht. Das laseraktive Medium (Titan–Saphir) besitzt den positiven Kerr-Koeffizienten n_2 . Um die Solitonlösung in dem Resonator gegenüber einer kontinuierlichen Lösung zu bevorzugen, wird ein zweiter Effekt, der mit dem intensitätsabhängigen Brechungsindex einhergeht, ausgenutzt: Wegen der radial gaußförmigen Intensitätsverteilung des Resonatormodes besitzt das laseraktive Medium auf der Achse den größten Brechungsindex und bildet deswegen bei entsprechend hoher Intensität eine Kerr-Linse aus. Der Resonator wird so gestaltet, daß er nur für Pulse mit sehr hoher Spitzenintensität, welche das effiziente Ausbilden der Kerr-Linse ermöglicht, stabil ist [133]. Angeregt wird ein Soliton dann durch eine kurze Störung, zum Beispiel die Vibration eines der Spiegel, wodurch eine zufällige Überlagerung von Moden, die gewöhnlich Intensitätsspitzen besitzt, erzeugt wird.



Abbildung 8.3: Spektrum eines Kerr-Lens-modengekoppelten Titan-Saphir-Lasers mit einer Breite von 10,2 nm bzw. 4,23 THz (FWHM).

Abbildung 8.3 zeigt das Spektrum (die Einhüllende des Modenkamms) eines kommerziellen Kerr-Lens-modengekoppelten Titan-Saphir Lasers (Modell Mira 900 der Firma Coherent). Die spektrale Breite läßt nach dem minimalen Pulsdauer-Bandbreitenprodukt $\Delta \nu \times \Delta \tau = 0,44$ (für gaußförmige Pulse) eine minimale Pulsdauer τ von 100 fs zu, falls alle relativen Phasen der Moden die optimale Einstellung haben. Obwohl bei der Verwendung eines solchen gepulsten Lasers als Modenkamm die spektrale Breite und nicht die Pulsdauer entscheidend ist, kann eine Messung der Pulsdauer⁵, über das Pulsdauer– Bandbreitenprodukt möglicherweise Auskunft über die Kohärenz des Kamms geben. Ob dies die Äquidistanz der einzelnen Moden des Modenkamms sichert, ist noch eine ungelöste Frage, aber sehr naheliegend. Falls man sich die Einhüllende des Pulszuges als streng periodisch vorstellen darf, so sollte diese streng periodische Amplitudenmodulation einen äquidistanten Modenabstand zur Folge haben.



Abbildung 8.4: Propagation eines sehr kurzen Pulses in einem Medium mit Dispersion. Während sich die Einhüllende mit der Gruppengeschwindigkeit v_g bewegt, läuft die Trägerphase mit der Phasengeschwindigkeit v_p ($T_1 < T_2$).

In Abbildung 8.4 ist die Propagation eines sehr kurzen Pulses skizziert. Die Einhüllende des Pulses bewegt sich mit der Gruppengeschwindigkeit $v_g = \partial \omega / \partial k$ und wird deswegen mit der Frequenz $\nu_{rep} = v_g/2L$ vom Laser emittiert, wobei L die Länge des Resonators ist. Die Modulationsfrequenz ist also gleich der des freien Spektralbereichs: $\nu_{rep} = \nu_{FSR} = v_q/2L$ (siehe Fußnote auf Seite 45). Man kann sich daher vorstellen, daß sich die erzeugten Seitenbänder gegenseitig "injection locken". Sollte sich diese Vorstellung als richtig herausstellen, so würde dies eine feste Phase (bis auf $2\pi\nu_{rep}t$) zwischen den Moden bewirken. Wie Abbildung 8.4 zeigt, folgt aus der strengen Periodizität der Einhüllenden nicht die Periodizität des elektrischen Feldes. Wenn aber die elektrische Feldstärke nicht periodisch mit der Pulswiederholrate ist, läßt sie sich nicht als Fourier-Reihe mit den Vielfachen der Frequenz ν_{rep} schreiben. Das bedeutet, daß die emittierten optischen Frequenzen des Modenkamms sich nicht einfach mit $\nu_{opt} = q \times \nu_{rep}$ und einer großen ganzen Zahl q (=Halbwellen im Stehwellenresonator) berechnen lassen. Wäre dies der Fall, so könnte man mit einem solchen Laser auf einfachste Weise optische Frequenzmessungen durchführen, indem man die Pulswiederholrate (eine Radiofrequenz) mißt und damit einen absolut kalibrierten Kamm von präzisen optischen Referenzfrequenzen erzeugt. Anders ausgedrückt: Wäre die Gleichung $\nu_{opt} = q \times \nu_{rep}$ exakt gültig, so könnte man die Radiofrequenz ν_{rep} statt schrittweise mit einer langen Kette von Tranferoszillatoren mit nur einem Laser in den optischen Frequenzbereich multiplizieren⁶. Weil dies nicht der Fall

⁵Mit Hilfe eines Autokorrelators.

⁶Die genaue Kenntnis der Zahl q würde dabei keine so große Rolle spielen, wenn die zu bestimmende optische Frequenz schon bis auf ν_{rep} genau bekannt ist. Ist dies nicht der Fall, so könnte man durch

ist, gilt für die optischen Frequenzen der Resonatormoden $\nu_{opt} = q \times \nu_{rep} + \nu_s$ mit einer unbekannten Schlupffrequenz ν_s . Diese Schlupffrequenz ist nur bis auf ein Vielfaches von ν_{rep} definiert, soll aber so gewählt werden, daß $0 > \nu_s > \nu_{rep}$ gilt. Das elektrische Feld an einem bestimmten Ort im Resonator ist dann nicht als Fourier-Reihe in ν_{rep} , aber durch die folgende Summe mit konstanten Phasen φ_q auszudrücken:

$$E(t) = \sum_{q} a_n \cos(q\omega_{rep}t + \omega_s t + \varphi_q).$$
(8.1)

Daran erkennt man, daß ν_s die Frequenz ist, mit der die 0 Hz-Marke auf der Frequenzachse verfehlt wird, wenn der Modenkamm (über die nicht an der Laseremission beteiligten Moden) zu Null extrapoliert wird⁷. Sollte es sich ergeben, daß ν_s eine Subharmonische von ν_{rep} ist, etwa $m\nu_s = \nu_{rep}$, dann wiederholt sich das Feld in Gl.(8.1) mit der Periode $1/\nu_s = m/\nu_{rep}$. Die Trägerphase schlüpft dann derart relativ zur Einhüllenden, daß sich das elektrische Feld nach m Pulsen wiederholt. Außerhalb des dispersiven Mediums (Laserresonator) schlüpft die Phase nicht mehr, aber jeder Puls hat eine zu seinem Vorgänger leicht versetzte Phase relativ zur Einhüllenden. Gelingt es ν_s (im Radiofrequenzbereich) zu messen, so wäre der Modenkamm alleine, wie oben erwähnt, für optische Absolutfrequenzmessungen verwendbar. Dafür würde ein Detektor, der die Relativphase zwischen der Trägerfrequenz und der Einhüllenden mißt, genügen. In der Literatur sind zwar eine ganze Reihe von Meßmethoden zur Bestimmung von anders definierten Phasen kurzer Pulse beschrieben (zum Beispiel mit einem spektral auflösenden Autokorrelator [134]), aber keines davon kann bis jetzt die optische Phase relativ zur Einhüllenden bestimmen. Weiterhin ist es möglich, aus der Kreuzkorrelation mit einem Puls und seinem Nachfolger die Phasenverschiebung zwischen zwei Pulsen zu messen [135]. Mit einem geeigneten Stellmechanismus könnte man vielleicht die Phasenverschiebung zwischen zwei Pulsen konstant halten, winzige Fehler dabei würden aber, bei typischerweise 10⁸ Pulsen pro Sekunde, die erstrebte Radiofrequenzgenauigkeit verhindern. Für sehr kurze Pulse könnte die Effizienz von stark nichtlinearen Prozessen von der gesuchten Phase abhängen. Zum Beispiel könnte ein Prozeß, der erst ab einer geeigneten Feldstärke eintritt⁸, im Falle der in Abbildung 8.4 auf der linken Seite dargestellten relativen Phase stattfinden, bei dem auf der rechten Seite dargestellten Phasenverlauf jedoch ausbleiben. Ein Detektor, der nicht über eine optische Bandbreite verfügt, würde das zeitliche Integral der n-ten Potenz der elektrischen Feldstärke registrieren. Für einen gaußförmigen Puls mit der Trägerfrequenz

eine kleine Änderung von ν_{rep} und einer stabilen optischen Referenzfrequenz, den Übersetzungsfaktor bestimmen.

⁷Würden alle Moden bis DC an der Laseremission beteiligt sein, so würde sich ein Puls von der Dauer eines halben Zyklus ergeben, der keine veränderliche Phase zur Einhüllenden besitzt. Das elektrische Feld wäre seine eigene Einhüllende. In diesem Fall würde die 0 Hz Marke nicht verfehlt werden.

⁸Die "above threshold" Ionisation [136] bei der viele Photonen zur Ionisation eines Atoms beitragen ist ein solcher Prozeß. Bei n Photonen hängt dieser mit der 2n-ten Potenz von der elektrischen Feldstärke ab. Die momentan verfügbare Zeitauflösung beträgt aber nur wenige kHz.

 ω_c läßt sich die elektrische Feldstärke eines Pulses außerhalb des Resonators als Funktion der Zeit folgendermaßen angeben:

$$E(t) = E_o e^{-t^2/2\tau^2} \cos(\omega_c t + \varphi).$$
(8.2)

 φ sei eine von Puls zu Puls sich linear ändernde Phase, deren Wert gemessen werden soll. Die Halbwertsbreite (FWHM) der Intensität $(E(t)^2)$ ist durch $2\tau\sqrt{\ln(2)} = 1,67\tau$ gegeben. Falls der hypothetische Phasendetektor die *n*-te Harmonische der Feldstärke (z.B. die Intensität: n = 2) verwendet und nicht über eine ausreichende Bandbreite verfügt, um optische Zyklen unterscheiden zu können, wird sich die Abhängigkeit des Signals von der Phase φ durch folgendes Integral beschreiben lassen:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-nt^2/2\tau^2} \cos^n(\omega_c t + \varphi) dt.$$
(8.3)

Mit Hilfe von

$$\cos^{n}(x) = \left(\frac{e^{ix} + e^{-ix}}{2}\right)^{n} = \frac{1}{2^{n}} \sum_{j=0}^{n} \binom{n}{j} e^{-nix+2jix} = \frac{1}{2^{n}} \sum_{j=0}^{n} \binom{n}{j} \cos([n-2j]x), \quad (8.4)$$

wobei die letzte Umformung ausnutzt, daß der Ausdruck reell sein muß und der Verwendung einer Integraltafel [137], ergibt sich daraus:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-nt^2/2\tau^2} \cos^n(\omega_c t + \varphi) dt = \frac{1}{2^n} \sum_{j=0}^n \binom{n}{j} \sqrt{\frac{2\pi}{n}} \tau e^{-\frac{[n-2j]^2}{2n}(\omega_c \tau)^2} \cos([n-2j]\varphi).$$
(8.5)

Damit dieser Ausdruck überhaupt von der Phase φ abhängt, muß $[n-2j] \neq 0$ gelten. Dann ist aber der erdrückend kleine Vorfaktor $\exp(-[n-2j]^2(\omega_c\tau)^2/2n)$ präsent⁹. Wird ein noch zu findender Mechanismus, der auf eine ungerade Potenz n der elektrischen Feldstärke sensitiv ist verwendet, so ist der größte Term in der Summe über j der mit [n-2j] = 1. Das Signal wäre dann proportional zu:

$$e^{-\frac{(\omega_c\tau)^2}{2n}}\cos(\varphi). \tag{8.6}$$

Wird eine gerade Potenz n der elektrischen Feldstärke verwendet, so ist der größte Term der mit [n - 2j] = 2. Das Signal ist proportional zu:

$$1 + \frac{2n}{n+2} e^{-2\frac{(\omega_c \tau)^2}{n}} \cos(2\varphi).$$
(8.7)

In Tabelle 8.1 sind einige numerische Werte dieser Funktion angegeben. Wird davon ausgegangen, daß nur ein Detektionsmechanismus mit einer geraden Potenz der elektrischen

 $^{{}^{9}\}omega_{c}\tau = \frac{2\pi}{2\sqrt{\ln(2)}} \times 2\sqrt{\ln(2)}\nu_{c}\tau = 3,8 \times (1.67\tau)\nu_{c}$ ist die mit 3,8 multiplizierte Anzahl der optischen Zyklen innerhalb eines gaußförmigen Pulses.

au imes 1,67	n = 4	n=8	n=100	n=200
30 fs = 10,5 Zyklen	2×10^{-345}	5×10^{-173}	2×10^{-14}	1×10^{-7}
20 fs = 7,1 Zyklen	7×10^{-154}	3×10^{-77}	8×10^{-7}	9×10^{-4}
10 fs = 3,5 Zyklen	6×10^{-39}	7×10^{-20}	0,03	0, 2
8 fs = 2,8 Zyklen	3×10^{-25}	6×10^{-13}	0,1	0,3
6 fs = 2,1 Zyklen	2×10^{-14}	1×10^{-7}	0,3	0,5
4 fs = 1,4 Zyklen	8×10^{-7}	9×10^{-4}	0, 6	0, 6

Tabelle 8.1: Numerische Werte von $\exp(-2(\omega_c \tau)^2/n)$ mit $\lambda = 2\pi c/\omega_c = 850$ nm zur Abschätzung der Detektierbarkeit des Signals in Gl.(8.7). n = 4: SHG; n = 8: Vierte; n = 100 und n = 200: 50-te und 100-te Harmonische.

Feldstärke in Frage kommt, so müssen die numerischen Werte in der Tabelle mit der Zahl 1 verglichen werden (Gl.(8.7). Es erscheint nur die Erzeugung einer sehr hohen Harmonischen, wie das mit sehr intensiven Pulsen möglich ist [138], für eine solche Phasenmessung realistisch. Zur Erzeugung der hohen Harmonischen ist eine wesentlich höhere Intensität notwendig als sie ein Kerr-Lens-modengekoppelter Laser alleine liefern kann. Die Pulse müßten in einem regenerativen Verstärker (mit Hilfe der "chirped pulse amplification") aufbereitet werden, was zur Zeit allerdings in einer wesentlich niedrigeren Pulswiederholrate resultiert.

Aber auch ohne die Möglichkeit, die Phasenlage der Trägerfrequenz relativ zur Einhüllenden zu messen, sind Kerr-Lens-modengekoppelte Laser vielversprechende Kamm-Generatoren. Mit den bisher erreichten Pulsdauern von 10 fs ergibt sich immerhin eine optische Bandbreite von 44 THz (FWHM), wobei die nutzbare Bandbreite wahrscheinlich noch größer ist. Dies sind 11 % der optischen Trägerfrequenz bei 780 nm [128]. Könnte man einen Frequenzkamm mit einer Bandbreite von 50 % der Trägerfrequenz erzeugen, so wäre auch das Problem mit der Schlupffrequenz ν_s gelöst, falls man auf der langwelligen Seite des Kamms die Frequenz f einer Mode verdoppelt und sie dann mit einer Mode auf der blauen Seite des Kamms vergleicht. Aus der Schwebungsfrequenz zwischen der frequenzverdoppelten Mode bei 2f und der Mode auf der blauen Seite des Kamms mit $f + n\nu_{rep}$ würde sich die Absolutfrequenz f modulo ν_{rep} ergeben. Wichtig für die gute Selektierbarkeit einzelner Moden ist der kompakte Aufbau eines solchen Lasers, wie er mit speziell beschichteten Spiegeln (mit negativer Gruppengeschwindigkeitsdispersion) möglich ist. Bei einem kurzen Resonator ergeben sich neben einer größeren Leistung pro Mode (bei gleicher Gesamtleistung) auch geringere Anforderungen an das Auflösungsvermögen des Spektrometers, das zur Selektion der Moden verwendet werden muß. Eine Phasenregelung der Pulswiederholrate ist zur genauen Kontrolle von ν_{rep} notwendig. Weil geringstes Rauschen in diesem Regelkreis mit einem sehr hohen Faktor (nämlich ν_{opt}/ν_{rep}) in das Rauschen der optischen Frequenz ν_{opt} übersetzt wird, sollte eine sehr rauscharme

und möglichst hohe Referenzfrequenz¹⁰ als Lokaloszillator verwendet werden. Nach der in Ref.[57] angegebenen Auswahl von Oszillatoren kommen nur dielektrische Resonator–Oszillatoren (DRO) oder kryogene Saphir–Oszillatoren, mit einem maximal nutzbaren Multiplikationsfaktor, der über 100 THz führt, in Frage.

¹⁰Um den Faktor, um den die Referenzfrequenz vervielfältigt wird, möglichst gering zu halten. Statt der Pulswiederholrate, kann auch eine hohe Harmonische, die mit kurzen Pulsen leicht zu erzeugen ist, auf den Lokaloszillator stabilisiert werden.

8.2 Optische Frequenzmessung mit Solitonen

9. Anhang

9.1 Die Frequenzketten Gleichungen

9.1.1 1S–2S Absolutfrequenz

Um die ausgelesene Frequenz f_z des Zählers am Ende der Teilerstufen in Abbildung 4.14 in die 1S–2S Absolutfrequenz umzurechnen, wird zunächst der Zusammenhang der Frequenzen der ersten beiden Laserdioden in der Teilerstufenkette (Abbildung 4.1) zur 1S–2S Frequenz und zum HeNe–Standard benötigt. Die Frequenz des leistungsstarken HeNe–Lasers, f_{HENE} , ist im stabilisierten Zustand um seine Lokaloszillatorfrequenz, f_{LOHENE} , tiefer als die des HeNe–Standards: $f_{HENE} + f_{LOHENE} = f$. Diese Frequenz wird verdoppelt und der Farbzentrenlaser auf eine um die Lokaloszillatorfrequenz, f_{LOCCL} , erhöhte Frequenz phasenstabilisiert: $f_{CCL} - f_{LOCCL} = 2f_{HENE}$. Nach dem Verdoppeln des Farbzentrenlasers wird die zweite Laserdiode der Teilerstufenkette mit der Frequenz f_2 um f_{LOLD2} unterhalb der Frequenz $2f_{CCL}$ stabilisiert: $f_2 + f_{LOLD2} = 2f_{CCL}$. Die Frequenz der Laserdiode bei 848,1 berechnet sich somit aus der Frequenz des Standards und den verwendeten Lokaloszillatoren zu:

$$f_2 = 4f - 4f_{LOHENE} + 2f_{LOCCL} - f_{LOD2}.$$
(9.1)

Die Frequenz der ersten Laserdiode f_1 berechnet sich aus der 1S–2S Frequenz f_{1S2S}^L und der Frequenz f des HeNe–Standards. Mit f_{1S2S}^L ist hier die vierfache Frequenz des Farbstofflasers gemeint. Zur Farbstofflaser–Frequenz wird die Frequenz des leistungsstarken HeNe–Lasers addiert: $1/4 \times f_{1S2S}^L + f_{HENE}$. Die doppelte Frequenz der Laserdiode eins $2f_1$ wird darauf mit dem Lokaloszillator, f_{LOLD1} , stabilisiert: $2f_1 + f_{LOLD1} = 1/4 \times f_{1S2S}^L + f_{HENE}$. Die Frequenz der Laserdiode bei 850,6 nm berechnet sich somit aus der Frequenz des Standards, der 1S–2S Frequenz und den verwendeten Lokaloszillatoren zu:

$$f_1 = \frac{1}{8}f_{1S2S}^L + \frac{1}{2}f - \frac{1}{2}f_{LOHENE} - \frac{1}{2}f_{LOLD1}.$$
(9.2)

Diese Vorzeichen der Phasenregelkreise wurden bei allen Messungen beibehalten. Einsetzen von Gl.(9.1) und Gl.(9.2) in Gl.(4.16) und auflösen nach f_{1S2S}^L ergibt die "Frequenzketten"–Gleichung für die 1S–2S Messung:

$$f_{1S2S}^{L} = 28f - 128f_z - 512f_{rf} - 28f_{LOHENE} + 16f_{LOCCL} + 4f_{LOLD1} - 8f_{LOLD1} + 8f_{LOLD3} - 16f_{LOLD4} + 32f_{LOLD5} - 64f_{LOLD6}.$$
(9.3)

Um zur Frequenz des Hyperfeinzentroids zu gelangen, muß von der gemessenen Frequenz noch die Hyperfeinstruktur des 1S und des 2S Zustands abgezogen werden. Die Aufspaltung dieser Niveaus sind sehr genau bekannt [139, 140]

$$HFS(H,1S) = 1\ 420\ 405\ 751,766\ 7(10)\ Hz \tag{9.4}$$

$$HFS(H,2S) = 177\ 556, 86(5)\ kHz,$$
 (9.5)

wobei der Zustand mit F = 1 um jeweils ein Viertel dieser Frequenz angehoben ist (vergl. Abb. 2.1). Daher muß 1/4 HFS(H,1S) - 1/4 HFS(H,2S) = 310 712 223(25) Hz zur gemessenen Frequenz, f_{1S2S}^L , addiert werden, um die Zentroidfrequenz, f_{1S2S}^H , zu erhalten. Einsetzen der numerischen Werten für die Lokaloszillatorfrequenzen der Laserdioden von 50 MHz, des Farbzentrenlasers von 20 MHz und des leistungsstarken HeNe–Lasers von 80 MHz in Gl.(9.3) ergibt mit der für alle Wasserstoff 1S–2S Messungen verwendeten Radiofrequenz am harmonischen Mischer von $f_{rf} = 16,53215$ GHz:

$$f_{1S2S}^{H} = 28f - 128f_z - 512f_{rf} - 3 \text{ GHz} + 1/4 \text{ HFS}(\text{H},1\text{S}) - 1/4 \text{ HFS}(\text{H},2\text{S})$$
(9.6)

$$= 28f - 128f_z - 8,467\,460\,8 \text{ THz} + 310\,712\,223(13) \text{ Hz}$$
(9.7)

$$= 2\ 466\ 065\ 962\ 710, 46(64)\ \text{kHz} - 128f_z. \tag{9.8}$$

Bei der Absolutfrequenzmessung am Deuterium wurden alle Lokaloszillatorfrequenzen und ihre Vorzeichen beibehalten. Die Radiofrequenz am harmonischen Mischer wurde auf $f_{rf} = 15,22133$ GHz gestellt. Zusammen mit der Hyperfeinstrukturaufspalzung im Deuterium [141, 142]

$$HFS(D,1S) = 327\ 384\ 352, 522\ 2(17) \ Hz$$
(9.9)

$$HFS(D,2S) = 40\ 924,439(20)\ kHz,$$
 (9.10)

wobei der Zustand mit F = 3/2 um jeweils ein Drittel dieser Frequenz angehoben ist, ergibt sich:

$$f_{1S2S}^{D} = 28f - 128f_{z} - 512f_{rf} - 3 \text{ GHz} + 1/3 \text{ HFS}(D,1S) - 1/3 \text{ HFS}(D,2S) \quad (9.11)$$

= 28f - 128f_{z} - 7,793 320 96 THz + 95 486 637,8(6,7) Hz (9.12)
= 2 466 736 887 324,87(64) \text{ kHz} - 128f_{z}. (9.13)

9.1.2 Isotopieverschiebung

Die ausgelesene Frequenz f_z des Zählers in Abbildung 5.4 wird ähnlich wie in Abschnitt 9.1.1 in Relation zur 1S–2S Absolutfrequenz gebracht. Genau wie dort erläutert, gilt:

$$f_{CCL} - f_{LOCCL} = 2f_{HENE} \tag{9.14}$$

$$f_2 + f_{LOLD2} = 2f_{CCL}$$
 (9.15)

$$2f_1 + f_{LOLD1} = 1/4 \times f_{1S2S}^L + f_{HENE}, \qquad (9.16)$$

Zusätzlich gilt für die, mit dem Synthesizer um f_{rf} gemischte und am Zähler abgelesene Frequenz $f_z = 2f_{CCL} - f_2 + f_{rf}$. Das *n*-te Seitenband des OFC-Generators bei $f_2 - nf_{OFC}$ ist im stabilisierten Zustand um die Lokaloszillatorfrequenz der Laserdiode zwei f_{LOLD2} tiefer als die Frequenz der ersten Laserdiode: $f_2 - nf_{OFC} + f_{LOLD2} = f_1$. Daraus ergibt sich mit Gl.(9.16):

$$f_{1S2S}^{L} = 28f - 8f_z + 8f_{rf} - 8nf_{OFC} - 28f_{LOHENE} + 16f_{LOCCL} + 4f_{LOLD1} + 8f_{LOLD1}.$$
(9.17)

Die numerischen Werte der Lokaloszillatorfrequenzen sind dieselben wie in Abschnitt 9.1.1. Zum Hyperfeinzentroid gelangt man durch Abziehen der Hyperfeinstruktur. Für Wasserstoff wurde das $n^H = 167$ -te Seitenband und eine Mischerfrequenz von $f_{rf}^H = 279, 4$ MHz verwendet:

$$f_{1S2S}^{H} = 28f - 8f_{z}^{H} + 8f_{rf}^{H} - 8n^{H}f_{OFC} - 1,320 \text{ GHz} + 1/4 \text{ HFS(H,1S)} - 1/4 \text{ HFS(H,2S)}$$
(9.18)

$$= 2\ 466\ 061\ 693\ 910, 46(64)\ \text{kHz} - 8f_z^H. \tag{9.19}$$

Für Deuterium wurde das $n^D = 154$ -te Seitenband und eine Mischerfrequenz von $f_{rf}^D = 1,7371$ GHz verwendet:

$$f_{1S2S}^{D} = 28f - 8f_{z}^{D} + 8f_{rf}^{D} - 8n^{D}f_{OFC} - 1,320 \text{ GHz} + 1/3 \text{ HFS}(D,1S) - 1/3 \text{ HFS}(D,2S)$$
(9.20)

$$= 2\ 466\ 732\ 687\ 484, 87(64)\ \mathrm{kHz} - 8f_z^D. \tag{9.21}$$

Die Differenz der Gleichungen (9.19) und (9.21) ergibt die Isotopieverschiebung:

$$f_{ISO} = 8\Delta f_z + 8\Delta f_{rf} + 8 \times 13 f_{OFC} + 1/3 \text{ HFS}(D,1S) - 1/3 \text{ HFS}(D,2S) - 1/4 \text{ HFS}(H,1S) + 1/4 \text{ HFS}(H,2S)$$
(9.22)
= 670 993 574 415(14) Hz + $8\Delta f_z$, (9.23)

wobei $\Delta f_z = f_z^H - f_z^D$ und $\Delta f_{rf} = f_{rf}^D - f_{rf}^H$ die Unterschiede der vom Zähler angezeigten Frequenzen und der verwendeten Mischerfrequenz für die Deuterium– und die Wasserstoff– Linien sind. Die Unsicherheit, die in der zweiten Zeile von Gl.(9.23) angegeben ist, stammt von der Unsicherheit der 2S Hyperfeinstruktur. Die involvierten Radiofrequenzen wurden von einer Cäsium–Atomuhr (Genauigkeit 10⁻¹²) abgeleitet und tragen somit nicht zur Unsicherheit bei.

9.2 Fehlerbetrachtung für R_{∞} und L_{1S} .

Wie in Abschnitt 5.3 erläutert, lassen sich aus den Gleichungen (5.5) und Gl.(5.6) die Rydberg-Konstante und die 1S Lamb-Verschiebung bestimmen. Dies kann unter Verwendung eines Werts für L_{2S}^{H} aus Radiofrequenzmessungen geschehen. Die bisher genauesten rf-Messungen der Lamb-Verschiebung $L_{2S} - L_{2P_{1/2}}$ und $L_{2S} - L_{2P_{3/2}}$ wurden von F. M. Pipkin und Mitarbeitern durchgeführt [22, 143]. Weil diese grundsätzlich nur die Differenz von Lamb-Verschiebungen liefern, benötigt man zur Angabe von L_{2S}^H noch die Werte $L_{2P_{1/2}}^H = -12,835$ 99(8) MHz und $L_{2P_{3/2}}^H = -12,517$ 46(8) MHz, die von Ulrich Jentschura und Krzysztof Pachucki berechnet wurden [144]. Es ergibt sich das gewichtete Mittel der Werte aus Ref.[22] und Ref.[143]: $L_{2S}^H = 1$ 045,0079(72) MHz, wobei das Ergebnis aus Ref.[143] aufgrund eines neuen Werts der Feinstrukturaufspaltung korrigiert wurde [144]. Mit Gl.(5.5) und Gl.(5.6) ergibt sich damit $L_{1S}^{RF} = 8172,860(34)$ MHz. In der Tabelle 9.1 findet sich eine aufgeschlüsselte Liste aller Fehlerbeiträge, die bei dieser Auswertung in das Endresultat einfließen. In der zweiten Spalte der Tabelle sind diese Beiträge als $\Delta X \times \partial L_{1S}^{RF} / \partial X$ eingetragen, wobei X die fehlerbehaftete Größe aus der ersten Spalte bezeichnet.

Quelle der	Auswertung	Auswertung	Arithmetisches
Unsicherheit	mit L_{2S}^H	mit L'_2	Mittel
f_{2S8D}^H	15,68	33,01	24,35
L_{2S}^H	$30,\!24$	—	$15,\!12$
L'_2		-5,53	-2,77
f^H_{1S2S}	-0,84	-1,77	-1,31
$L^{H}_{8D_{5/2}}$	-0,64	-1,35	-1,00
α	-0,11	-0,23	-0,17
m_p/m_e	$0,\!00$	$0,\!00$	0,00
	IRF 0179.960(24)	L' = 0179 009(24)	I = 0.170.076(0.0)
	$L_{1S} = 8172\ 800(34)$	$L_{1S} = 8172.892(34)$	$L_{1S} = 8172.870(29)$

Tabelle 9.1: Unsicherheiten bei der Bestimmung der 1S Lamb-Verschiebung in Wasserstoff. Die Einheit aller Zahlenwerte ist kHz.

Alternativ läßt sich die 2S Lamb-Verschiebung in Gl.(5.5) und Gl.(5.6) mit Hilfe von $L'_2 = L_{1S} - 8L_{2S} = -187,232(5)$ MHz [101] auf die 1S Lamb-Verschiebung zurückführen. Auf diese Weise ergibt sich ein anderer Wert $L_{1S}^{L'} = 8172,892(34)$ MHz. Dieser ist mit seinem vorzeichenbehafteten Fehlerbeiträgen in der dritten Spalte der Tabelle 9.1 eingetragen. Weil die Unsicherheiten teilweise unabhängig von dem zuvor abgeleiteten Wert für L_{1S}^{H} sind, läßt sich eine genauere 1S Lamb-Verschiebung durch Mittelung finden. Es genügt, die Berechnung des gleichgewichteten arithmetischen Mittels $(L_{1S}^{RF} + L_{1S}^{L'})/2$, weil die Unsicherheiten der beiden Auswertmethoden ungefähr gleich ist. Die Unsicherheit dieses Mittelwerts ist durch $\Delta X \times \partial((L_{1S}^{RF} + L_{1S}^{L'})/2)/\partial X$, also durch den Mittelwert der zweiten und dritten Spalte der Tabelle 9.1, gegeben. Dieser ist in der vierten Spalte der Tabelle eingetragen. Bei der Berechnung der Unsicherheit von L_{1S}^{H} muß darauf geachtet werden, daß nicht etwa das arithmetische Mittel der Unsicherheiten von L_{1S}^{RF} und $L_{1S}^{L'}$ zu nehmen ist sondern jeweils das Mittel der einzelnen Beiträge (einschließlich des Vorzeichens), die dann quadratisch addiert werden. Es ergibt sich das in Abschnitt 5.3 und in Tabelle 9.1

Quelle der	Auswertung mit neuer	Auswertung mit alter
Unsicherheit	Isotopieverschiebung	Isotopieverschiebung
f_{2S8D}^D	29,64	29,64
L'_2	$5,\!53$	$5,\!53$
f^D_{1S2S}	1,77	1,77
$L^{D}_{8D_{5/2}}$	1,35	$1,\!35$
Isotopieverschiebung	$0,\!32$	46,32
lpha	$0,\!23$	$0,\!23$
m_p/m_e	0,00	0,00
	$L_{1S} = 8184\ 016(30)$	$L_{1S} = 8184\ 011(55)$

angegebene Endergebnis.

Tabelle 9.2: Unsicherheiten bei der Bestimmung der 1S Lamb-Verschiebung in Deuterium. Die Einheit aller Zahlenwerte ist kHz.

Weil es keine ausreichend genauen Radiofrequenzmessungen der 2S Lamb-Verschiebung im Deuterium gibt, kann nur die oben erwähnte Auswertmethode mit $L'_2 = L_{1S} - 8L_{2S} =$ -187, 225(5) MHz [101] verwendet werden. Das Ergebnis lautet $L_{1S}^D =$ 8184, 016(30) MHz, falls der in Gl.(5.3) angegebe Wert für die Isotopieverschiebung und $L_{1S} =$ 8184, 011(55) MHz (wie in Ref.[1] angegeben) falls der ältere Wert aus Ref.[99] verwendet wird. Die Zusammensetzung der Unsicherheit ist der Tabelle 9.2 zu entnehmen.

Um eine möglichst geringe Unsicherheit in der Bestimmung der Rydberg-Konstanten zu erhalten, ist es notwendig, Gl.(5.5) nicht nur zusammen mit der 2S-8D Frequenz (Gl.(5.6) und Spalten 1 bis 3 in der Tabelle 9.3) für L_{1S} und R_{∞} zu lösen, sondern sie auch mit anderen Frequenzen im Wasserstoff und Deuterium zu kombinieren. Diese sind die folgenden Schwebungsfrequenzen [21, 103, 102]:

- $f_{2S6S}^H 1/4 f_{1S3S}^H = 4197,6078(58)$ MHz (Spalten 4 und 5) und $f_{2S6D_{5/2}}^H 1/4 f_{1S3S}^H = 4699,0928(93)$ MHz (Spalten 6 und 7).
- $f_{2S4S}^H 1/4f_{1S2S}^H = 4797,338(10)$ MHz (Spalten 8 und 9), $f_{2S4S}^D 1/4f_{1S2S}^D = 4801,693(20)$ MHz (Spalte 10), $f_{2S4D_{5/2}}^H 1/4f_{1S2S}^H = 6490,144(24)$ MHz (Spalten 11 und 12) und $f_{2S4D_{5/2}}^D 1/4f_{1S2S}^D = 6494,841(41)$ MHz (Spalte 13).
- $f_{2S4P_{1/2}}^H 1/4 f_{1S2S}^H = 4664, 269(15)$ MHz (Spalten 14 und 15) und $f_{2S4P_{3/2}}^H 1/4 f_{1S2S}^H = 6035, 373(10)$ MHz (Spalten 16 und 17).

Frequenz		5D 1.258.	D 12581	D 12S6S f1S3S	f1S3S f1S3S	f1S3S :	f1S3S 1	E2S4S f	1828 f	ls2s f	2S4D 1 1S2S f	ls2s f	2S4D f 1S2S f	2S4P1/2 1S2S	f2S4P1/7 f1S2S	2 f2S4P3/7 f1S2S	2 f2S4P3/2 f1S2S	
Auswertmethode	RF(F	H),T (F) L'(D) RF(H)	L'(H)	RF(H)	L'(H)]	RF(H) I	I (H),7		F(H) I	I (H),7	'(D) R	F (H)	г.(Н)	RF(H)	г.(Н)	
(R-10973731,56 m^-1)	8642	15 8749	4 8730	1 86762	88144	83177	81526 {	36701 8	8008	9568 8	7978 9	1771 8	9793 88	3027	91884	83487	81291	86459
d(R)	124	47 130	7 117	3 1415	1874	1914	3121	2200	3572	7123	4462	9973 I	7027	2965	6239	2198	4167	
d(alpha)	1	16 -2	0 -2(0 -16	-20	-17	-22	-17	-23	-23	-20	-31	-31	-17	- 25	-19	-29	-19
d(me/mN)	-15	30 -13	0 -6	3 -130	-130	-130	-130	-130	-130	-68	-130	-130	-68	-130	-130	-130	130	-118
d(f1S2S)		0 - 3	1 -3.	1 37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	8
d(f2S8D)	69	98 128	5 1154	4 0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	525
d(f2S6S-1/4Xf1S3S)		0	0	0 1023	1860	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	268
d(f2S6D-1/4Xf1S3S)		0	0	0	0	1646	3112	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	198
d(f2S4S-1/4Xf1S2S) (F	(I	0	0	0	0	0	0	1780	3560	0	0	0	0	0	0	0	0	166
d(f2S4S-1/4Xf1S2S) (I	()	0	0	0	0	0	0	0	0	7118	0	0	0	0	0	0	0	36
d(f2S4D-1/4Xf1S2S) (F	(I	0	0	0	0	0	0	0	0	0	4272	9968	0	0	0	0	0	81
d(f2S4D-1/4Xf1S2S) (I	(0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0 1	7024	0	0	0	0	15
d(f2S4P1/2-1/4Xf1S2S)		0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2670	6230	0	0	119
d(f2S4P3/2-1/4Xf1S2S)		0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1780	4153	156
d(Isotopieverschiebung	1 (14	0	í 0	5	0	0	0	0	0	7	0	0	7	0	0	0	0	-
d(L2S)	102	25	0	196 0	0	961	0	1282	0	0	1282	0	0	1282	0	1282	0	551
d(L3S)		0	0	989	0	89	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	18
d(L4S)		0	0	0	0	0	0	-107	0	0	0	0	0	0	0	0	0	9-
d(L4P1/2)		0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-44	-104	0	0	-2
d(L4P3/2)		0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-44	-104	-4
d(L4D5/2)		0	0	0	0	0	0	0	0	0	- 18	-42	-42	0	0	0	0	0
d(L6S)		0	0	9 -53	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	L-
d(L6D5/2)		0	0	0	0	-36	-67	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-4
d(L8D5/2)	-	28 -5.	2 -5.	2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-22
d(L'2)		0 -18	7 -18	7 0	-174	0	-182	0	-250	-250	0	-297	-297	0	-297	0	- 297	-94
d(L'3)		0	0	0	-30	0	-31	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	- °
d(L'4)		0	0	0	0	0	0	0	67	67	0	0	0	0	0	0	0	7
d(L'6)		0	0	0	22	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	7

Tabelle 9.3: Unsicherheiten bei der Bestimmung der Rydberg-Konstanten. Links: Unter Verwendung der Isotopieverschiebung in Gl.(5.3). Rechts: Unter Verwendung der Isotopieverschiebung aus Ref.[99]). Alle Zahlen sind in Einheiten von $10^{-7}m^{-1}$ angegeben. Weitere Erläuterungen im Text.
Die Spaltenangaben hinter den Schwebungsfrequenzen beziehen sich auf Tabelle 9.3, die das gesamte Fehlerbudget beinhaltet. Die obere Tabelle bezieht sich auf die in dieser Arbeit angegebenen Ergebnisse, während die untere Tabelle mit einem älteren Wert für die Isotopieverschiebung (670 994 337(22) kHz [99]) erstellt wurde. Sie enthält die Resultate, wie sie in Ref.[1] abgedruckt sind. In der Kopfzeile ist vermerkt, welche zusätzliche Frequenz verwendet wurde, das heißt, welches Niveau zur Bestimmung der 1S Lamb-Verschiebung verwendet wurde (in Klammern). Das Kürzel "RF" bezeichnet die Auswertung, bei der die 2S Lamb-Verschiebung aus den Radiofrequenz-Messungen (siehe 1S Lamb–Verschiebung) und für die höheren Lamb–Verschiebungen theoretische Werte, verwendet wurden. Diese sind: $L_{3S}^{H} = 311,403(2)$ MHz, $L_{4S}^{H} = 131,675$ 2(6) MHz, $L_{4D_{5/2}}^H = 536,47(1)$ kHz, $L_{4P_{1/2}}^H = -1,401$ 25(25) MHz, $L_{4P_{3/2}}^H = 1,767$ 25(25) MHz, $L_{6S}^{H} = 39,085$ 9(3) MHz, $L_{6D_{5/2}}^{H} = 166,0(2)$ kHz und $L_{8D_{5/2}}^{H} = 71,4(2)$ kHz im Wasserstoff und $L_{4S}^D = 131,852$ 4(1,2) MHz, $L_{4D_{5/2}}^D = 537,04(10)$ kHz und $L_{8D_{5/2}}^D = 71,5(2)$ kHz im Deuterium. Diese Werte sind zum Teil in den Referenzen [21, 103, 102] angegeben, oder können wegen ihrer geringen Größe allein aus dem Bethelogarithmus in Ref. [23] berechnet werden. Das Kürzel "L'" in Tabelle 9.3 markiert die alternative Auswertmethode, nach der alle Lamb-Verschiebungen mit Hilfe von $L'_n = L_{1S} - n^3 L_{nS}$ [101] auf die 1S Lamb-Verschiebung zurückgeführt wurden. Die numerischen Werte für L'_n sind nach Ref.[101]: $L'_2 = -187,232(5)$ MHz, $L'_3 = -235,079(3)$ MHz, $L'_4 = -254,428(12)$ MHz und $L'_{6} = -269,747(15)$ MHz im Wasserstoff und $L'_{2} = -187,225(5)$ MHz, $L'_{3} = -235,073(10)$ MHz, $L'_4 = -254, 423(12)$ MHz und $L'_6 = -269, 743(15)$ MHz im Deuterium. Die Theoriewerte für die Lamb-Verschiebungen der beiden Isotope sind nicht statistisch unabhängig. Deswegen gibt es für deren Fehlerbeitrag für beide Isotope jeweils nur eine Zeile in Tabelle 9.3. In der Zeile unter derjenigen, die die Auswertmethode kennzeichnet, sind die jeweiligen Werte für die Rydberg-Konstante, $(R_{\infty} - 10\ 973\ 731, 56\ \mathrm{m}^{-1}) \times 10^7$ und in der Zeile darunter deren Unsicherheit enthalten. In den folgenden Zeilen sind, analog zu Tabelle 9.1, die einzelnen Beiträge $\Delta X \times \partial R_{\infty} / \partial X$ einschließlich Vorzeichen eingetragen, wobei X die fehlerbehaftete Größe aus der ersten Spalte bezeichnet. Im Gegensatz zur Bestimmung der Wasserstoff 1S Lamb-Verschiebung wurden die Werte für R_{∞} hier nicht arithmetisch, sondern mit dem inversen Quadrat der in der Zeile "d(R)" eingetragenen Unsicherheit gewichtet. In der letzten Spalte findet sich das Endergebnis. Der oberste Eintrag ist die gesuchte Rydberg-Konstante und darunter stehen die Einzelbeiträge zur Gesamtunsicherheit, wie sie sich aus der gewichteten Summe über die jeweilige Zeile ergibt¹. Ihre quadratische Summe ergibt die Unsicherheit des Endergebnises. Aus den Tabellen liest man $R_{\infty} = 10\ 973\ 731,568\ 646(89)\ {\rm m}^{-1}$ wie in Gl.(5.10) und $R_{\infty} = 10\ 973\ 731,568\ 639(91)$ m^{-1} wie in Ref.[1] ab.

¹Es sei darauf hingewiesen, daß diese Vorgehensweise nicht das gewichtete Mittel im Sinne der minimalen Unsicherheit ergibt. Dieses läßt sich für teilweise korrelierte Fehler zum Beispiel finden, indem man alle Werte für R_{∞} mit zunächst unbestimmten Gewichten mittelt und anschließend diese Gewichte numerisch so bestimmt, daß sich die minimale Unsicherheit des Mittels ergibt.

9.3 AC- und DC-Stark-Verschiebung der S-Zustände

Die Stark-Verschiebung eines atomaren Niveaus kann mit Hilfe der Störungstheorie berechnet werden, falls die Verschiebungen klein gegen sämtliche Energieunterschiede zwischen den Niveaus bleibt. Die AC-Stark-Verschiebung des Niveaus $|F, M, J, L, S, I, n\rangle$ durch einen Laser mit der Intensität $I = c\varepsilon_o E^2$ und der mittleren elektrischen Feldstärke² E, läßt sich mit folgendem Ausdruck (Gl.(7.73) in Ref.[39]) berechnen:

$$\Delta \nu_{AC} = \frac{I}{4\pi\hbar^2 c\varepsilon_o} \left(B + C\right). \tag{9.24}$$

Die Konstanten *B* und *C* ergeben sich aus einer Summe bzw. einem Integral über die gebundenen und die Kontinuumszustände. Mit dem Dipoloperator $d_o = ez$ (in sphärischen Koordinaten) für einen linear entlang der z-Achse polarisierten Laser mit der Kreisfrequenz ω ergibt sich der Beitrag der gebundenen Zustände zu:

$$B = \sum_{\substack{n',J',L'\\F',M'}} |\langle F, M, J, L, S, I, n | d_o | F', M', J', L', S, I, n' \rangle|^2 \times \left[(\omega_{n,n'} - \omega)^{-1} + (\omega_{n,n'} + \omega)^{-1} \right], \quad (9.25)$$

wobei der Summand n' = n ausgelassen werden muß und $\omega_{n,n'}$ die Frequenzen des Übergangs $|F, M, J, L, S, I, n\rangle \rightarrow |F', M', J', L', S, I, n'\rangle$ sind. Weil ω die Frequenz des Zwei-Photonen-Übergangs zwischen 1S und 2S ist, gibt keinen resonanten Term in Gl.(9.25) $(\omega_{n,n'} \approx \omega)$. Für die angestrebte Genauigkeit reicht es deswegen aus, die Schrödingeroder Dirac-Energien in $\omega_{n,n'}$, unter Vernachlässigung der Hyperfeinstruktur, einzusetzen. Die Zustände deren Stark-Verschiebung berechnet werden müssen, sind diejenigen mit J = 1/2 und maximalen Werten für F und M. Diese lassen sich in Form der folgende Produktzustände schreiben:

$$|F, M, J, L, S, I, n\rangle = |I, m_I = I\rangle|J = 1/2, m_J = 1/2, n\rangle.$$
 (9.26)

Damit wird aus Gl.(9.25):

$$B = \sum_{\substack{n',J' \\ m'_J,m'_I}} |\langle I, m_I = I | \langle J = 1/2, m_J = 1/2, n | d_o | I, m'_I \rangle |J, m'_J, n' \rangle|^2 \times \left[(\omega_{n,n'} - \omega)^{-1} + (\omega_{n,n'} + \omega)^{-1} \right]. \quad (9.27)$$

Weil der Dipoloperator nicht auf Spins wirkt ergibt sich daraus:

$$B = \sum_{n',J',m'_J} |\langle J = 1/2, m_J = 1/2, n | d_o | J, m'_J, n' \rangle|^2 \left[(\omega_{n,n'} - \omega)^{-1} + (\omega_{n,n'} + \omega)^{-1} \right].$$
(9.28)

²Der zeitliche Mittelwert des elektrischen Felds $E^2 = E_o^2/2 = \langle E_o \cos(\omega t) \rangle^2$ ist entscheidend. Innerhalb eines Stehwellenresonators muß die Intensität der vor und rücklaufenden Welle berücksichtigt werden.

Dieser Ausdruck ist unabhängig vom Kernspin und daher für Wasserstoff und Deuterium identisch. Für die Behandlung der Kontinuumszustände (Konstannte C) gelten dieselben Überlegungen, weil sich diese von den gebundenen Zuständen nur im Radialteil der Ortswellenfunktion unterscheiden.

Der DC-Stark-Effekt kann mit Gl.(9.25) berechnet werden, falls dort $\omega = 0$ eingesetzt wird (vergl. Gl.(7.2) in Ref.[39]). Bei der DC-Stark-Verschiebung des 2S Zustands tritt, wegen des naheliegenden $2P_{1/2}$ Zustands allerdings ein resonanter Term auf. Unter Vernachlässigung aller Terme mit $n' \neq 2$ ergibt sich

$$B = \frac{2e^{2}|\langle 1, 1, 1/2, 0, 1/2, 1/2, 2|z|1, 1, 1/2, 1, 1/2, 1/2, 2\rangle|^{2}}{2\pi(1058 + 44 - 15)\text{MHz}}$$

= $\frac{1}{9} \frac{2e^{2}|\langle L = 0, n = 2||z||L' = 1, n' = 2\rangle|^{2}}{2\pi 1087\text{MHz}}$ (9.29)

für Wasserstoff und

$$B = \frac{2e^2 |\langle 3/2, 3/2, 1/2, 0, 1/2, 1, 2|z|3/2, 3/2, 1/2, 1, 1/2, 1, 2\rangle|^2}{2\pi (1059 + 14 - 5) \text{MHz}}$$

= $\frac{1}{9} \frac{2e^2 |\langle L = 0, n = 2||z||L' = 1, n' = 2\rangle|^2}{2\pi 1068 \text{MHz}}$ (9.30)

für Deuterium, wobei die Übergangsfrequenzen³ (Lamb-Verschiebung und Hyperfeinstruktur) der einzigen Hyperfeinkomponente mit nichtverschwindendem Matrixelement⁴ eingesetzt wurde. Für die Matrixelemente ergibt sich mit Gl.(4.120) und Gl.(4.175) in Ref.[39] in beiden Fällen 1/9. Die Beiträge zur DC-Stark-Verschiebung in Gl.(9.29) und in Gl.(9.30) unterscheiden sich lediglich um 1,7 %. Weil die restlichen Terme wesentlich schwächer vom Isotop abhängen kann dies bei einer gesamten DC-Stark-Verschiebung der 1S-2S Resonanz von etwa 180 Hz nur etwa 3 Hz zur Isotopieverschiebung beitragen.

9.4 Justage der Teilerstufenkette

Die Details zum Aufbau der Teilerstufenkette, wie sie zur Bestimmung der Wasserstoff 1S-2S Resonanzfrequenz verwendet wurde, sind in Abbildung 9.1 dargestellt. Zur Justage

³Die Hyperfein Komponente 2S(F = 1, M = 1) [2S(F = 3/2, M = 3/2)] ist beim Wassertoff [Deuterium] um 44 MHz [14 MHz] gegenüber dem Zentroid angehoben. Die Komponete $2P_{1/2}(F = 1/2, M = 1)$ [$2P_{1/2}(F = 3/2, M = 3/2$)] ist um 15 MHz [5 MHz] gegenüber dem Zentroid angehoben.

⁴Weil die z–Achse entlang des elektrischen Feldes gewählt wurde, können nur Matrixelemente mit $\Delta M = 0$ von Null verschieden sein. Beim Wasserstoff verschwinden die Matixelemente $\langle 2S(F = 1, M = 1)|z|2S(F = 0, M = 0)\rangle$ und $\langle 2S(F = 1, M = 1)|z|2P_{1/2}(F = 0, M = 0)\rangle$. In Deuterium verschwinden die Matrixelemente $\langle 2S(F = 3/2, M = 3/2)|z|2S(F = 1/2, M = \pm 1/2)\rangle$ und $\langle 2S(F = 3/2, M = 3/2)|z|2P_{1/2}(F = 1/2, M = \pm 1/2)\rangle$.

werden die Laserdioden (frühestens eine halbe Stunde nach dem Einschalten) auf die richtigen Frequenzen mit Hilfe ihrer Temperatur und der Stromstärke (etwa 90 mA für die verwendeten STC-LT50A-03U Laserdioden) eingestellt (für Wasserstoff sind diese in Abb. 4.15 angegeben).



Abbildung 9.1: Die Teilerstufenkette, wie sie zur Bestimmung der 1S–2S Frequenz verwendet wurde. AP=Anamorphisches Prismenpaar; ISO=optischer Isolator; BS=Strahlteiler.

Dann werden die Isolatoren auf die richtigen Wellenlängen abgestimmt und so positioniert, daß sie maximale Transmission (etwa 90 %) gewährleisten (bei 71 % Transmission sinkt das Schwebungssignal nach Gl.(4.6) bereits um 3 dB). Zur Erzeugung der Schwebungssignale müssen die Laserdioden durch die richtige Wahl des Stroms im Einmoden-Betrieb sein. Dies läßt sich mit Hilfe des optischen Spektrumanalysators feststellen. Dieser erlaubt es auch zu überprüfen, ob die Laserdioden durch einen Rückreflex wegen eines nicht richtig eingestellten Isolators gestört werden (die Kristalle streuen je nach Fokusposition sehr stark zurück). Dazu wackelt man vorsichtig an den Spiegeln, Strahlteilern oder Kristallhalterungen und beobachtet den optischen Spektrumanalysator. Falls dies die Laserfrequenz beeinflußt, gibt es eine optische Rückkopplung, die in den meisten Fällen eine Phasenstabilisierung unmöglich macht. Die Harmonische der ersten Laserdiode bei 425 nm wird mit Hilfe des Spiegels M1 zur Erzeugung des Schwebungssignals mit der Summenfrequenz von Farbstofflaser und dem leistungsstarken HeNe–Laser ausgekoppelt. Dieser Spiegel ist hochreflektierend für 850 nm (s–Polarisation) und hochtransmittierend (p–Polarisation) für 425 nm. Mit der Linse L1, die eine Brennweite von 40 mm hat und auf einem xyz–Verschiebetisch montiert ist, wird die optimale Position des Brennpunktes in dem 5 mm langen KNbO₃ Kristall durch Beobachten der Leistung bei 425 nm eingestellt. Bei einer Laserausgangsleistung von 50 mW sollten sich etwa 5 μ W bei 425 nm ergeben. Mit der Linse L2, die ebenfalls eine Brennweite von 40 mm hat, sich aber nur entlang der Strahlachse verschieben läßt, wird der infrarote Strahl kollimiert.

Die erste Laserdiode erzeugt auf diese Weise einen Strahl, auf den die Strahlen aller anderen Laserdioden mit Hilfe der Spiegel M4 und der Strahlteiler BS justiert werden. Die Spiegel M2 und M3 ermöglichen eine Korrektur des infraroten Strahlengangs der ersten Laserdiode, ohne daß alle anderen Strahlen erneut ausgerichtet werden müssen, falls zum Beispiel die Linse für die Fokussierung in den ersten Kristall verstellt werden muß. Für die Vorjustierung wird mit Hilfe des Spiegels M4 der zweiten Laserdiode die Strahlposition auf der Oberfläche des Strahlteilers mit der Strahlposition der ersten Laserdiode überlagert, indem zum Beispiel ein Linsenreinigungstuch über diese gespannt wird. Im abgedunkelten Labor erkennt man die 850 nm Strahlung, wobei der Strahldurchmesser wesentlich kleiner erscheint als auf einer Infrarotkarte (wegen der Sättigung der Karte). Danach werden die Strahlpositionen an einem entfernten Punkt (1 Meter reicht aus) zur Deckung gebracht. Die Qualität der Überlagerung kann mit dem Signal der Photodiode im Wavemeter beurteilt werden, das auf einem Oszilloskop beobachtet wird. Beim Blockieren aller Strahlen, bis den zu überlagernden, sollte sich eine Schwebung mit gut sichtbarem Kontrast ergeben. Für die zweite Laserdiode ist dies das Hauptkriterium für eine gute Uberlagerung. Bei der dritten Laserdiode wird nach dieser Vorjustierung die Temperatur des Kristalls und die Position des Fokus (Linse L1) so eingestellt, daß sich die maximale Leistung der zweiten Harmonischen ergibt (etwa 1 μ W für 50 mW Laserdioden). Dazu werden die ersten beiden Laserdioden blockiert, um nicht zusätzlich blaues Licht durch Frequenzsummierung oder Harmonische (bei falscher Kristalltemperatur) zu erzeugen. Danach wird durch Blockieren der dritten Laserdiode und Öffnen der ersten beiden Laserdioden überprüft, ob der Kristall auch die Summenfrequenz erzeugt. Durch wechselseitiges Blockieren der ersten und zweiten Laserdiode kann überprüft werden, ob nicht fälschlicherweise die Harmonische der ersten oder zweiten Laserdiode erzeugt wird. Dies ist bei der letzten Teilerstufe, wegen der geringen Frequenzunterschiede der Laserdioden, unvermeidlich. Die Leistung der Summenfrequenz sollte zwischen 200 und 700 nW betragen. Ist dies nicht der Fall, so sollte die Vorjustage wiederholt werden. Zum Überprüfen der Vorjustage kann auch der Detektor (Hamamatsu–Sekundärelektronenvervielfacher Modell H5783–03) vorübergehend entfernt werden und die Überlagerung der Summenfrequenz mit der Harmonischen in einiger Entfernung kontrolliert werden (entsprechende Laserdioden

abwechselnd blockieren). Der Hamamatsu–Detektor ist über einen Lastwiderstand von 1 k Ω und einer AC–Kopplung an einen 37 dB–Verstärker angeschlossen. Beim Blockieren der Laserdioden sollte sich das Rauschen auf einem an den Verstärker angeschlossenen rf-Spektrumanalysator um etwa 10 dB verringern (schrotrauschbegrenzte Detektion). Nach dem erneuten Überprüfen der Laserfrequenzen sollte die Schwebung zwischen der Summenfrequenz der ersten beiden Laserdioden und der Harmonischen der dritten Laserdiode durch Verändern der Spannung an der Piezokeramik der dritten Laserdiode gesucht werden. Sobald die Schwebung auf dem rf-Spektrumanalysator sichtbar ist, sollte mit dem Spiegel M6 der optimale Punkt auf dem großflächigen Sekundärelektronenvervielfacher eingestellt werden. Die Größe des Signals hängt bei diesen Detektoren stark von dieser Position ab. Die Betriebspannung des Detektors wirkt sich ebenfalls auf die Signalgröße sowie auf die Größe des Rauschens aus.

Danach kann mit den Spiegeln M4 und den Strahlteilern der ersten beiden Laserdioden das Signal optimiert werden. Sobald die Phasenstabilisierung möglich ist (ab etwa 25 dB Signal-zu-Rausch-Verhältnis bei einer Auflösungsbandbreite von 3 MHz), sollte diese eingeschaltet werden, um das Schwebungssignal bei 50 MHz zu stabilisieren. In diesem Zustand ist die Feinjustage (durch die Spiegel M4 und M6 dem Strahlteiler BS sowie der Betriebspannung des Detektors) wesentlich einfacher. Durch Zählen der Schwebungsfrequenz läßt sich feststellen, ob der Phasenregelkreis richtig arbeitet. Auf einem HP 53131A Zähler der Firma Hewlett-Packard sollten die Abweichungen von der Lokaloszillatorfrequenz nicht mehr als einige 100 mHz betragen. Befindet sich die erste Teilerstufe in diesem Zustand, so wird diese Prozedur mit den Laserdioden 4 bis 6 wiederholt. Hierbei sollten allerdings die Spiegel M4 und der Stahlteiler BS der vorangehenden Stufe nicht mehr verstellt werden. Bei der ersten Justage sollte danach die Transmission der Isolatoren kontrolliert werden, weil diese sich durch den neuen Strahlverlauf möglicherweise deutlich verschlechtert hat. Nach der Neupositionierung der Isolatoren muß die Feinjustage für die involvierten Teilerstufen wiederholt werden. Um das Schwebungssignal zwischen der fünften und der sechsten (oder der fünften und der vierten) Laserdiode zu erhalten, werden alle Laserstrahlen in das Glasfaserende eines Detektors der Firma New Focus Detektors (Modell 1002) mit Hilfe der Spiegel M6 und M7 und eines Mikroskopobjektivs (X10) eingekoppelt. Von den zwei Schwebungssignalen (bei etwa 66 GHz für Wasserstoff), die von den letzten drei phasenstabilisierten Laserdioden erzeugt werden, muß eines ausgewählt werden. Dies geschieht mit Hilfe der Frequenz des Synthesizers ($\approx 16 \text{ GHz}$), der den harmonischen Mischer (die vierte Harmonische wurde verwendet) am rf-Ausgang des New Focus Detektors betreibt, und eines Filters.

9.5 Bei "Physical Review Letters" abgedruckte Artikel

In diesem Anhang sind mit Genehmigung des Verlages die im Rahmen dieser Arbeit bei "Physical Review Letters" erschienenen Artikel wiedergegeben:

• Referenz [1]:

Phase-Coherent Measurement of the Hydrogen 1S-2S Transition Frequency with an Optical Frequency Interval Divider Chain,
Th. Udem, A. Huber, B. Gross, J. Reichert, M. Prevedelli, M. Weitz und T. W. Hänsch,
Phys. Rev. Lett., 79, 2646 (1997).

• Referenz [5]:

Hydrogen-Deuterium 1S-2S Isotope Shift and the Structure of the Deuteron, A. Huber, Th. Udem, B. Gross, J. Reichert, M. Kourogi, K. Pachucki, M. Weitz und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett., **80**, 468 (1998).

Phase-Coherent Measurement of the Hydrogen 1S-2S Transition Frequency with an Optical Frequency Interval Divider Chain

Th. Udem, A. Huber, B. Gross, J. Reichert, M. Prevedelli,* M. Weitz, and T. W. Hänsch Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Strasse 1, 85748 Garching, Germany (Received 21 May 1997)

We have measured the absolute frequency of the hydrogen 1*S*-2*S* two-photon resonance with an accuracy of 3.4 parts in 10¹³ by comparing it with the 28th harmonic of a methane-stabilized 3.39 μ m He-Ne laser. A frequency mismatch of 2.1 THz at the 7th harmonic is bridged with a phase-locked chain of five optical frequency interval dividers. From the measured frequency $f_{1S-2S} = 2466\,061\,413\,187.34(84)$ kHz and published data of other authors we derive precise new values of the Rydberg constant, $R_{\infty} = 10\,973\,731.568\,639(91)$ m⁻¹ and of the Lamb shift of the 1*S* ground state, $L_{1S} = 8172.876(29)$ MHz. These are now the most accurate values available. [S0031-9007(97)04182-3]

PACS numbers: 31.30.Jv, 06.20.Jr, 21.10.Ft

For almost three decades, the 1S-2S two-photon transition in atomic hydrogen with its natural linewidth of only 1.3 Hz has inspired advances in high resolution laser spectroscopy and optical frequency metrology [1]. This resonance has become a *de facto* optical frequency standard. More importantly, it is providing a cornerstone for the determination of fundamental physical constants and for stringent tests of quantum electrodynamic theory. In the future, it may unveil conceivable slow changes of fundamental constants or even differences between matter and antimatter.

Here, we report on a new precise measurement of the absolute frequency of the 1S-2S interval which exceeds the accuracy of the best previous measurement [2] by almost 2 orders of magnitude. The 1S-2S resonance is observed by longitudinal Doppler-free two-photon spectroscopy of a cold atomic beam. The resonance frequency is compared with the frequency of a cesium atomic clock with the help of a phase-coherent laser frequency chain, using a transportable CH₄-stabilized He-Ne laser at 3.39 μ m as an intermediate reference. In this way, we have determined a 1S-2S interval of $f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187.34(84)$ kHz with an uncertainty of 3.4 parts in 10^{13} , limited by the reproducibility of the He-Ne reference laser. This represents now the most accurate measurement of any optical frequency in the ultraviolet and visible region. Together with the results of other authors, in particular, the recent precision measurements of the $2S_{1/2}$ - $8D_{5/2}$ transition frequency in hydrogen by the group of Biraben [3], we derive new and more precise values for both the Rydberg constant and the 1S Lamb shift. This Lamb shift provides now the best test of quantum electrodynamics for an atom.

As in our earlier experiment [2] we are taking advantage of the near coincidence between the 1*S*-2*S* interval and the 28th harmonic of the frequency of a CH₄-stabilized 3.39 μ m He-Ne laser. However, a frequency mismatch of 2.1 THz near the 7th harmonic is no longer bridged interferometrically but is now measured with the help of a phase-locked chain of five frequency interval dividers. We are thus demonstrating the viability of a new approach to measuring the frequency of light. The cascaded bisection of optical frequency intervals has long been proposed [1], but only single divider stages have been demonstrated before [4].

As illustrated in Fig. 1, such a divider stage receives two input laser frequencies f_1 and f_2 , and it forces a third laser to oscillate at the precise midpoint $f_3 = (f_1 + f_2)/2$, by electronically phase locking the second harmonic $2f_3$ to the sum frequency $f_1 + f_2$ via a lowfrequency beat signal. In this way the original frequency gap is divided by two. With a chain of *n* cascaded divider stages, a given frequency interval can be divided



FIG. 1. Principle of an optical frequency interval divider and symbol as used in Fig. 2.

© 1997 The American Physical Society

2646



FIG. 2. Experimental setup for the comparison of the 1*S*-2*S* two-photon resonance at 243 nm with a 3.39 μ m methanestabilized He-Ne laser. The large-gap divider on top finds the midpoint between f and 7f - Δ : 4f - $\Delta/2$. The difference to 4f is then further reduced using the cascaded divider stages.

by 2^n . In order to avoid 1/f noise it is advantageous to lock the beat signal not to zero but to some offset radio frequency $f_{\rm LO}$ of a local oscillator, so that $f_3 = (f_1 + f_2)/2 - f_{\rm LO}/2$ is no longer at the exact midpoint, but still precisely known. This kind of heterodyning allows us to monitor the performance of the phase-locked loops by simply counting the beat frequency, confirming that the uncertainty introduced by cycle slipping is absolutely negligible at the present level of precision.

An overview of our experiment is shown in Fig. 2. The reference frequency f is provided by a transportable CH₄-stabilized He-Ne laser that has been built by the group of Bagayev at the Institute of Laser Physics in Novosibirsk, Russia [5]. Since our earlier experiment [2] this laser has been somewhat improved, and its output frequency is now reproducible within 2.6×10^{-13} , as confirmed by several calibrations at the Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig before and during the 1S-2S measurement. The comparisons with the German atomic cesium time standard with the help of a harmonic frequency chain at the PTB [6] give a frequency $f = 88\,376\,182\,599\,937(23)$ Hz.

The frequency of the He-Ne laser is doubled in an angle-tuned AgGaSe₂ crystal, and a NaCl:OH⁻ color center laser is electronically phase locked to the second harmonic 2*f*. It acts as a transfer oscillator and provides sufficient power for further frequency doubling in a LiIO₃ crystal so that we produce the 4th harmonic 4*f* of the He-Ne standard.

This wavelength region near 848 nm is convenient for implementing an optical frequency interval divider chain

with readily available grating-tuned diode lasers. In order to measure the frequency $7f - \Delta$ of the dye laser used in the hydrogen spectrometer we employ a first largegap divider stage to bisect the interval between the dye laser frequency and the He-Ne reference, producing a frequency $4f - \Delta/2$. We then compare this frequency with the 4th harmonic of the standard using 4 additional cascaded divider stages to reduce the frequency gap $\Delta/2$ by a factor of 16. The final beat frequency of $f_c \approx$ 66 GHz is accessible to a commercial fast photodiode, followed by a harmonic mixer and a synthesizer for down conversion and a radio frequency counter. Since our diode lasers have a relatively broad linewidth we use a digital phase locking scheme [7] that keeps track of the accumulated optical phase, making the divider chain rather immune to external perturbations so that it can remain locked for hours. As long as the rms phase fluctuations stay below 1 cycle, a measuring time of 1 s is sufficient to transport an optical frequency accuracy of better than one part in 10^{14} .

In the phase-locked condition our frequency chain relates the frequency of the observed 1S-2S hyperfine component f_{1S-2S}^F to the measured microwave frequency f_c through

$$f_{1S-2S}^F = 28f - f_{\rm LO} - 128f_{\rm c} \,. \tag{1}$$

The local oscillator frequencies used in the frequency chain are summed up in $f_{\rm LO} = 3$ GHz. In all the measurements, the local oscillators and the rf counter have been referenced to a local cesium clock.

The hydrogen spectrometer has been described before in detail [8]. The hydrogen $1S(F = 1, m_F = \pm 1) \rightarrow$ $2S(F' = 1, m_{F'} = \pm 1)$ transition is driven in a cold atomic beam by longitudinal Doppler-free two-photon excitation with light at 243 nm that is generated by doubling the frequency of an ultrastable dye laser at 486 nm in a crystal of beta barium borate, as indicated on the right side of Fig. 2. The uv radiation is resonantly enhanced in a linear cavity inside the vacuum chamber of the atomic beam apparatus. Hydrogen atoms from a gas discharge escape from a nozzle cooled with a liquid helium flow-through cryostat. Cold atoms traveling along the laser field are excited to the metastable 2S state. An electric quenching field a distance $l \simeq 10$ cm downstream from the nozzle forces the emission of 121 nm Lyman- α photons which are detected with a solar blind photomultiplier.

In order to reduce transit time broadening and second order Doppler shifts we select the slowest atoms by turning the laser light periodically off with a chopper and counting signal photons only if they arrive after a time delay τ that was chosen between 0.5 and 1.5 ms. An upper limit for the second order Doppler shift is given by $\Delta v_{max} = -1/2(l/\tau c)^2 f_{15-25}^{\rm F}$. We have taken into account only those measurements for which $\Delta v_{max} \leq 350$ Hz. A realistic model for the line shape [9] predicts that the actual shift of the line center is approximately 4 times smaller than $\Delta \nu_{max}$, since the slowest atoms which spend the longest time in the light field contribute a disproportionately large part to the signal. Other uncertainties of the hydrogen spectrometer such as dc and ac Stark shifts are estimated to contribute less than 325 Hz [8].

Figure 3 shows an example of a 1*S*-2*S* excitation spectrum, recorded with a delay time $\tau = 1.5$ ms. We determine the line center by fitting a Lorentzian to the experimental data. Simulations [9] confirm that this procedure is easily sufficient at the present level of accuracy, even though the expected line shape is not exactly Lorentzian. Evaluating the line centers of 41 spectra with $\Delta \nu_{\rm max} \leq 350$ Hz we obtain a mean value of the measured microwave frequency $f_{\rm c} = 66\,164\,143\,149.4(2.0)$ Hz. We determine the optical frequency f_{1S-2S} according to the prescription (1) and add a correction for the well-known hyperfine splitting of the 1*S* and 2*S* [10] levels, $f_{\rm hf} = 310\,712\,223(13)$ Hz, to find the frequency of the hyperfine centroid,

$f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187.34(84)$ kHz.

The uncertainty of 3.4 parts in 10^{13} is dominated by the CH₄-stabilized He-Ne laser reference. The 1*S*-2*S* resonance line shape in our experiment is now well enough understood [9] that we could determine the line center to within 1.5 parts in 10^{14} if a sufficiently accurate optical frequency standard were available.

An important complement to our 1S-2S frequency measurement is the recent precise measurement of the hydrogen $2S_{1/2}-8D_{5/2}$ frequency $f_{2S-8D} =$ 770 649 561 585.0(4.9) kHz with an uncertainty of 6 parts in 10^{12} by the group of Biraben [3]. The Rydberg constant R_{∞} and the ground state Lamb shift L_{1S} can be determined from these two measurements by solving the set of linear equations,

$$f_{1S-2S} = R_{\infty}[e(2S) - e(1S)] + L_{2S} - L_{1S}, \quad (2)$$

$$f_{2S-8D} = R_{\infty}[e(8D) - e(2S)] + L_{8D} - L_{2S}.$$
 (3)

Here, the term $R_{\infty}e(nS/D)$ gives the Dirac energy (in Hz) of the corresponding state including the recoil corrections due to the finite nuclear mass that are not considered to be part of the Lamb shift [11]. They are calculated with the most recent value of the fine structure constant $\alpha^{-1} = 137.035\,999\,44(57)$ [12] and the electron-proton mass ratio 1836.152\,666\,5(40) [13]. For the small $8D_{5/2}$ Lamb shift we can use the theoretical value $L_{8D_{5/2}} = 71.4(2)$ kHz. In the past, before optical frequency measurements had reached the present level of accuracy, it would have been best to use a value of the 2S Lamb shift as derived from radio frequency measurements of the hydrogen 2S-2P splitting. Using the weighted average of Refs. [14,15], where the result of [15] is recalculated according to [16] using a new value for the fine structure splitting, and with the



FIG. 3. Hydrogen $1S(F = 1) \rightarrow 2S(F' = 1)$ resonance as measured with the optical interval divider chain. There is an uncertainty in the absolute frequency scale of 640 Hz.

theoretical values for the small Lamb shifts $L_{2P_{1/2}}$ and $L_{2P_{3/2}}$, we arrive at $L_{2S} = 1045.0079(72)$ MHz. In the future, when optical frequency measurements reach even higher accuracy, it will be better to replace L_{2S} in both equations by $(L_{1S} - L')/8$, where $L' = L_{1S} - 8L_{2S} = -187.232(5)$ MHz can be calculated much more accurately than the Lamb shifts of the individual levels [17]. At present, both approaches give results with comparable accuracies, and smaller uncertainties are obtained if we take the arithmetic averages of L_{1S} and R_{∞} as derived by these two methods, as shown in Table I for L_{1S} . Note that both approaches involve some small theoretical uncertainties (in $L_{8D_{5/2}}$, $L_{2P_{1/2}}$, and especially in L') due to uncalculated higher order QED terms.

In this way we find a hydrogen 1S ground state Lamb shift

$L_{1S} = 8172.876(29) \text{ MHz}$ (hydrogen).

This result is in agreement with earlier determinations of the 1*S* Lamb shift [18–20]. However, it is in only moderate agreement with the theoretical value $L_{1S,\text{theo}} =$ 8172.797(40) MHz using a rms proton charge radius $r_p = 0.862(12)$ fm [21] and a new value of the electronproton mass ratio [13]. The use of other proton charge radii, as stated in the literature [22,23], further reduces this moderate agreement. Alternatively our experiment can be interpreted as a measurement of the proton rms charge radius, yielding $r_p = 0.890(14)$ fm, provided that the theoretical calculations are correct. Independent more accurate measurements of the proton charge radius, for instance, via the 2*S* Lamb shift of muonic hydrogen, would permit stringent new tests of bound state QED.

We can use an earlier measurement of the hydrogendeuterium isotope shift of the 1*S*-2*S* transition [670 994 337(22) kHz [24]] to derive the absolute frequency of the 1*S*-2*S* interval in deuterium. Inserting this value and the absolute frequency of the deuterium 2*S*-8*D* splitting $f_{2S-8D_{5/2}} = 770\,859\,252\,851.5(4.4)$ kHz

TABLE I. Results of L_{1S} and dominating contributions to the total uncertainties (in kHz).			
Source of uncertainty	Using rf L_{2S} measurements	Using theoretical $L' = L_{1S} - 8L_{2S}$	Mean
L_{2S}	30.2		15.1
f_{2S-8D}	15.7	33.0	24.4
f_{1S-2S}	0.8	1.8	1.3
$L_{8D_{5/2}}$	0.6	1.4	1.0
$L^{i'}$		5.5	2.8
Results (L_{1S})	8 172 860(34)	8 172 892(34)	8 172 876(29)

[3] into the set of Eqs. (2) and (3) we obtain a deuterium ground state Lamb shift

 $L_{1S} = 8184.011(55)$ MHz (deuterium).

Here, we have replaced L_{2S} in both equations by $(L_{1S} - L')/8$, with L' = -187.225(5) MHz [17], since we do not know of any sufficiently precise measurements of the 2*S*-2*P* splitting in deuterium.

Finally, the outlined method yields a Rydberg constant $R_{\infty} = 10\,973\,731.568\,70(11) \text{ m}^{-1}$ with the hydrogen data, and $R_{\infty} = 10\,973\,731.568\,72(14) \text{ m}^{-1}$ with the data for deuterium. A slightly more accurate Rydberg value is obtained, if we use as additional input the results of three independent recent hydrogen 1S Lamb shift measurements based on a comparison of the hydrogen 1S-2S interval with the 2S-4S/4D [18] and 2S-4P [19] intervals as well as a comparison of the 1S-3S interval with the 2S-6S/6D interval [20]. In all three experiments, a combination of Lamb shifts is determined from a measured difference of optical frequencies of a few GHz. We can now replace Eq. (3) by analogous equations for the measured beat frequencies, such as the $f_{2S-4S/D} - 1/4f_{1S-2S}$. We have solved these by the method outlined above, using subsequently the hydrogen 2S-2P splitting determined by rf measurements and $(L_{1S} - L')/8$, as well as analogous combinations to replace the 3S, 4S, and 6S Lamb shifts [17]. We use theoretical values for the smaller and better known Lamb shifts of the higher excited states as stated by the authors of the corresponding measurement [18–20]. Our final result for the Rydberg constant is the average weighted by the squared uncertainties of individual results for R_{∞}

$$R_{\infty} = 10\,973\,731.568\,639(91) \text{ m}^{-1}$$

This value is in good agreement with the result $R_{\infty} = 10\,973\,731.568\,59(10) \text{ m}^{-1}$ recently determined in Paris [3]. The main uncertainties are due to the rf L_{2S} measurements (59 × 10⁻⁶ m⁻¹), the optical 1S Lamb shift measurements (46 × 10⁻⁶ m⁻¹), and the $2S_{1/2}$ - $8D_{5/2}$ frequency (48 × 10⁻⁶ m⁻¹). For future improvements precise frequency measurements of the 2S-nS/D transitions in hydrogen are desirable.

We thank A.K. Dmitriyev of the Institute of Laser Physics in Novosibirsk, Russia, for his help with the CH₄stabilized He-Ne laser standard. We are also indebted to G. Kramer and B. Lipphardt of the PTB in Braunschweig, Germany, and D.A. Tyurikov of the P.N. Lebedev Institute, Moscow, for their essential support in the calibration of this standard. This work has been supported in part by the Deutsche Forschungsgemeinschaft.

- *Present address: LENS, Largo E. Fermi 2, Florence, Italy. [1] T.W. Hänsch, in *The Hydrogen Atom*, edited by G.F.
- Bassani, M. Inguscio, and T. W. Hänsch (Springer-Verlag, Berlin, 1989), p. 93.
- [2] T. Andreae et al., Phys. Rev. Lett. 69, 1923 (1992).
- [3] B. de Beauvoir et al., Phys. Rev. Lett. 78, 440 (1997).
- [4] H. R. Telle, D. Meschede, and T. W. Hänsch, Opt. Lett. 15, 532 (1990); R. Wynands, T. Mukai, and T. W. Hänsch, Opt. Lett. 17, 1749 (1992).
- [5] S.N. Bagayev et al., Laser Phys. 7, 1 (1997).
- [6] C. O. Weiss *et al.*, IEEE J. Quantum Electron. **24**, 1970 (1988)
- [7] M. Prevedelli, T. Freegarde, and T.W. Hänsch, Appl. Phys. B 60, S241 (1995).
- [8] C. Zimmermann, R. Kallenbach, and T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 65, 571 (1990); F. Schmidt-Kaler *et al.*, Phys. Rev. A 51, 2789 (1995).
- [9] A. Huber et al. (to be published).
- [10] L. Essen *et al.*, Nature (London) **229**, 110 (1971); J.W. Heberle, H.A. Reich, and P. Kusch, Phys. Rev. **101**, 612 (1956).
- [11] K. Pachucki et al., J. Phys. B 29, 177 (1996).
- [12] T. Kinoshita, Phys. Rev. Lett. 75, 4728 (1995).
- [13] D. L. Farnham, R. S. Van Dyck, Jr., and B. P. Schwinberg, Phys. Rev. Lett. **75**, 3598 (1995).
- [14] S. R. Lundeen and F. M. Pipkin, Phys. Rev. Lett. 46, 232 (1981).
- [15] E. W. Hagley and F. M. Pipkin, Phys. Rev. Lett. 72, 1172 (1994).
- [16] U. Jentschura and K. Pachucki, Phys. Rev. A 54, 1853 (1996).
- [17] S.G. Karshenboim, Z. Phys. D 39, 109 (1997).
- [18] M. Weitz et al., Phys. Rev. A 52, 2664 (1995).
- [19] D.J. Berkeland, E.A. Hinds, and M.G. Boshier, Phys. Rev. Lett. 75, 2470 (1995).
- [20] S. Bourzeix et al., Phys. Rev. Lett. 76, 384 (1996).
- [21] G.G. Simon et al., Nucl. Phys. A333, 381 (1980).
- [22] L. N. Hand, D. J. Miller, and R. Wilson, Rev. Mod. Phys. 35, 335 (1963).
- [23] P. Mergell, U.G. Meißner, and D. Drechsel, Nucl. Phys. A596, 367 (1996).
- [24] F. Schmidt-Kaler et al., Phys. Rev. Lett. 70, 2261 (1993).

Hydrogen-Deuterium 1S-2S Isotope Shift and the Structure of the Deuteron

A. Huber, Th. Udem, B. Gross, J. Reichert, M. Kourogi,* K. Pachucki,[†] M. Weitz, and T. W. Hänsch Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Strasse 1, 85748 Garching, Germany

(Received 26 August 1997)

We have determined the hydrogen-deuterium isotope shift of the 1*S*-2*S* two-photon resonance with a 150-fold increase in accuracy compared to previous measurements. Our experimental result of 670 994 334.64(15) kHz has been obtained with an optical frequency comb generator and a CH₄-stabilized He-Ne reference laser which provides the frequency stability of our spectrometer while switching between the isotopes. From this measurement we derive values for the difference of the mean square charge radii of the proton and deuteron $r_d^2 - r_p^2 = 3.8212(15)$ fm², and for the deuteron structure radius $r_{\rm str} = 1.975 35(85)$ fm. [S0031-9007(97)05204-6]

PACS numbers: 32.30.Jc, 06.20.Jr, 21.10.Ft, 31.30.Jv

The deuteron is the simplest compound nucleus and provides an important testing ground for theories of nuclear few-body systems which are beginning to accurately predict the deuteron structure radius [1]. This radius has traditionally been determined from accelerator-based electron scattering experiments [2–4]. In 1993 optical spectroscopic measurements of the hydrogen-deuterium isotope shift of the 1*S*-2*S* resonance [5] reached a precision sufficient to derive a new value for the deuteron structure radius [6] which deviates significantly from the electron scattering results.

Here, we report on a new precision measurement of the H-D isotope shift of the 1S-2S interval, which exceeds the accuracy of our earlier experiment by more than 2 orders of magnitude. The high resolution and measurement accuracy in our experiment allows us to clearly observe nuclear size effects that contribute only at the level of about 10^{-5} to the total isotope shift of the 1S-2S transition. Because of the fact that many QED effects cancel in the isotope shift, the difference of the mean square charge radii between deuteron and proton can be accurately derived. However, this requires a careful theoretical analysis of nuclear structure effects. At this precision level we have to give a careful definition of the charge radius, since the description of the nucleus by an elastic form factor is no longer sufficient. The recent theoretical progress is described in the second part of this Letter. The complete theoretical description together with our tabletop atomic physics experiment allows us to reach much higher accuracy for the deuteron structure radius than past measurements with electron-nucleon colliders.

Our experimental setup is shown in Fig. 1. The hydrogen spectrometer, indicated at the top of this figure, has been described previously in detail [7]. The 1*S*-2*S* transition in both isotopes is driven in a cold atomic beam by longitudinal Doppler-free two-photon excitation (F = $1 \rightarrow 1$, $m_F = \pm 1 \rightarrow \pm 1$ in hydrogen and $F = 3/2 \rightarrow$ 3/2, $m_F = \pm 3/2 \rightarrow \pm 3/2$ in deuterium). The radiation of an ultrastable dye laser at 486 nm is frequency doubled. The resulting UV radiation at 243 nm is resonantly enhanced in a linear cavity inside a vacuum chamber. A mixture of hydrogen and deuterium atoms from a gas discharge emerges from a liquid helium cooled nozzle. Cold atoms, traveling along the laser field, are excited into the metastable 2*S* state. At the end of the interaction zone an electric quenching field forces the emission of Lyman- α



FIG. 1. Phase-coherent frequency chain for the comparison of the 1*S*-2*S* transition frequencies in hydrogen and deuterium.

468

© 1998 The American Physical Society

photons, which are detected by a photomultiplier. We apply a time-delayed measurement technique selecting slow atoms to reduce transit time broadening and the relativistic Doppler shift [7].

Figure 1 also shows the frequency chain that has been described in part in [8], where an absolute measurement of the 1S-2S frequency has been reported. A new element, the optical frequency comb (OFC) generator [9] is added to allow a rapid variation of the bridged frequency gap in order to switch between hydrogen and deuterium. This device creates a broad comb of equally spaced frequencies by efficient electro-optic modulation in a monolithic optical resonator. With a modulation frequency $f_{OFC} =$ 6.3418 GHz, our OFC has a width of 3.5 THz. As in our previous experiments, we exploit the close coincidence of the 28th subharmonic of the 1S-2S transition frequency with the absolute frequency of the CH₄-stabilized He-Ne laser. However, this laser now serves only as a flywheel to maintain the position of the OFC in frequency space, while the dye laser frequency is switched between the excitation wavelengths of the two isotopes. In this way, the absolute frequency of the He-Ne standard cancels in our result, while its frequency stability determines the uncertainty. The typical time for measuring and switching between isotopes is about 1000 s. The Allan variance for this time has been determined to be around 10^{-13} using a frequency chain at the Physikalisch Technische Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig [10]. To transfer the stability of the He-Ne laser to the 850 nm region where the OFC operates we create its fourth harmonic with the help of a NaCl:OH⁻ color center laser. The frequency doubled output of this laser provides the carrier frequency for the OFC generation. Intermediate lasers are used after each nonlinear optical device to regain sufficient power for the next step. To phase-coherently connect the lasers we use optical phase-locked loops [11]. The frequency chain relates the difference in the counted radio frequency Δf_c to the isotope shift $(f_{1S-2S}^D - f_{1S-2S}^H)$ according to

$$\Delta f_{\rm exp} = 8\Delta f_c + 104 f_{\rm OFC} - \Delta f_{\rm HFS}, \qquad (1)$$

where $\Delta f_{\text{HFS}} = 215\,225\,585(14)$ Hz accounts for the well known hyperfine structure in both isotopes [12].

Figure 2 shows 1*S*-2*S* excitation spectra recorded versus the detuning from selected modes of the OFC generator. The detuning is $8 \times (f_c - 244.306 \text{ MHz})$ for hydrogen and $8 \times (f_c - 1702.1 \text{ MHz})$ for deuterium. We determine the line center by fitting a Lorentzian to the experimental data. Numerical simulations [13] confirm that this procedure is sufficient at the present level of accuracy, even though the expected line shape is not exactly Lorentzian. From the radio frequency f_c of the line center we calculate the H-D isotope shift according to Eq. (1).

As an example, a series of alternating measurements in hydrogen and deuterium is shown in Fig. 3. The residual frequency uncertainty of the measured line centers is



FIG. 2. Experimental 1S-2S spectra in hydrogen and deuterium as measured relatively to selected modes of the optical comb generator.

limited by the short term frequency stability of the He-Ne standard. We determine the isotope shift by fitting a pair of parallel lines to the hydrogen and deuterium data, thus accounting for a linear frequency drift of the standard. Since the coefficient of the ac Stark shift is the same in hydrogen and deuterium [14], we kept the power of the exciting UV light at 243 nm constant. Further systematic effects such as dc Stark and pressure shifts do not play a significant role at the present level of accuracy. A realistic model for the line shape [13] predicts that the relativistic Doppler shift of the line center is about 80 Hz in hydrogen for the chosen delay time. Even though we expect the same Doppler shift for deuterium due to our time-delayed signal detection, we allow for an uncertainty of 20 Hz to account for a possible difference. After averaging the results of 10 measurements like the one shown in Fig. 3, we obtain the experimental result for the 1S-2S H-D isotope shift,

$$\Delta f_{\rm exp} = 670\,994\,334.64(15)\,\,\rm kHz\,. \tag{2}$$

The uncertainty of 150 Hz is dominated by the frequency fluctuations of the CH_4 -stabilized He-Ne standard.

At this precision level the theoretical contributions to the isotope shift must be reanalyzed. Although the majority of QED effects are the same for hydrogen and deuterium, an accurate determination of the difference in the nuclear charge radii from the H-D isotope shift depends on both QED and non-QED effects. Therefore, a large



FIG. 3. Alternating measurements of the 1S-2S transition frequency in hydrogen and deuterium. The dots stand for line centers of single spectra as shown in Fig. 2.

effort was undertaken to recalculate higher order recoil corrections, resulting in the identification of some new effects. In the following we present a short description of all known contributions to the H-D isotope shift which contribute at the level of 1 kHz. For details we refer to the review of Sapirstein and Yennie in [15] and the recent update in [6].

Most of the H-D isotope shift of the 1S-2S interval is caused by the different masses of the nuclei. The leading effects are obtained in the Breit treatment,

$$E = \mu[\mathcal{E}(n,j) - 1] - \frac{\mu^2}{2(M+m)} [\mathcal{E}(n,j) - 1]^2,$$
(3)

and amount to 671 004 073.56 kHz. Here $\mathcal{I}(n, j)$ denotes the dimensionless Dirac energy, and m, M, and μ are the electron, nucleus, and reduced mass, respectively. This formula does not account for the fact that the deuteron has spin 1. The relativistic corrections may depend on the spin, and in our case one has to subtract the so-called Darwin-Foldy correction $\Delta E = -\mu^3 \alpha^4 / 2M^2 n^3$, which is included by convention [16] in the deuteron charge radius, but not in the proton charge radius. It contributes 11.37 kHz to the 1S-2S frequency in deuterium. There are many other effects that result from the nuclear mass dependence of the Lamb shift called recoil corrections. They are first calculated under the assumption that the nucleus is a pointlike particle with spin 1/2. Corrections beyond this assumption are considered separately. The recoil corrections give -4 536.16 kHz to the isotope shift. The uncertainty due to yet unknown corrections of the order $m^2/M\alpha^7 \ln^2(\alpha^{-2})/\pi$ are estimated to be 1 kHz by assuming that the coefficient is equal to 1 (we correct our previous estimate in [6]).

There are conceptual problems with the proton selfenergy correction because it modifies the proton form factors. To incorporate this correction unambiguously we must precisely specify the meaning of the nuclear mean square charge radius. The standard definition is based on the Sachs form factor G_E which, in the nonrelativistic limit, is the Fourier transform of the charge density distribution

$$\frac{\langle r^2 \rangle}{6} = \left. \frac{\partial G_E(q^2)}{\partial (q^2)} \right|_{q^2=0} \,. \tag{4}$$

This definition is not appropriate at our precision level, because radiative corrections to G_E are infrared divergent. We follow the enhanced definition proposed in [17], which is based on the forward scattering amplitude described by

$$T^{\mu\nu}(x - x') = -i\langle t | T j^{\mu}(x) j^{\nu}(x') | t \rangle, \qquad (5)$$

where t = (M, 0, 0, 0) and j^{μ} is the 4-vector current of the nucleon components. In the nonrelativistic limit the T^{00} component contains a logarithmic singularity. This term occurs because the nucleus has a charge and does not depend on other details, such as spin. Once it is subtracted from T^{00} the remainder has a proper analytical behavior. At low momentum transfer it could be described by one quantity, the nuclear charge radius. The associated correction to the energy for *S* states has the form

$$\Delta E = \frac{2}{3 n^3} \langle Z \alpha \rangle^4 \mu^3 \langle r^2 \rangle + \frac{4 \langle Z^2 \alpha \rangle \langle Z \alpha \rangle^4}{3 \pi n^3} \frac{\mu^3}{M^2} \\ \times \left[\ln \left(\frac{M}{\mu \langle Z \alpha \rangle^2} \right) - \ln k_0(n) \right], \tag{6}$$

where $\ln k_0(n)$ is the Bethe logarithm and Z denotes the nucleus charge. The first term is due to the finite nuclear size, while the second term comes from the proton self-energy and contributes 2.98 kHz to the H-D isotope shift.

The correction of the order of $(Z\alpha)^2$ to the finite size effect is also significant due to the logarithmic singularity of the relativistic wave function at the origin and amounts to -2.79 kHz for the H-D isotope shift [16]. The combination of radiative corrections and finite size gives a small contribution of 0.60 kHz. It is obtained from the radiatively corrected electron charge density at the origin [18]. The nuclear structure effects beyond Eq. (6) are well described by the two-photon scattering amplitude at zero momentum

$$\Delta E = -\frac{e^4}{2} \phi^2(0) \int \frac{d^4 q}{(2\pi)^4 i} \frac{1}{q^4} \\ \times \left[T^{\mu\nu} - t^{\mu\nu}(M)\right] t_{\mu\nu}(m), \tag{7}$$

where $t_{\mu\nu}(m)$ is a bare amplitude (without radiative corrections) for a pointlike spin 1/2 particle of mass m. This amplitude requires subtraction of the singularities connected with the terms already included: relativistic, selfenergy, and finite size corrections. Since recoil effects have been calculated with the assumption that the nucleus has spin 1/2, we subtracted the corresponding amplitude for a pointlike particle with the mass equal to the deuteron mass in Eq. (7). The main contribution comes from small momenta and is associated with the deuteron polarizability. The binding energy of the deuteron of 2.2 MeV is comparable to the electron rest energy, giving rise to a polarizability correction. The most recent analysis of Friar et al. [16] gives 18.58(7) kHz for the 1S-2S frequency in deuterium. The corrections beyond this polarizability term, i.e., the elastic part, have been estimated in the static nucleus limit [16], and they amount to 0.46 kHz. The yet uncalculated contributions coming from relativistic corrections to the proton-neutron interaction and the deuteron recoil enter at similar order of magnitude as retardation terms in the polarizability contribution. The second uncertainty is due to an additional photon exchange in the inelastic amplitude. We estimate the total uncertainty of Eq. (7) to 0.5 kHz. A detailed study of the deuteron structure corrections as described by Eq. (7) would be very desirable.



FIG. 4. Values for the deuteron structure radius. See Refs. [2,3] (*a* and *b* stand for a fit with third and fourth order polynomials) [4,5,23,24].

We calculate the theoretical isotope shift *excluding* nuclear size effects as

$$\Delta f_{\rm th} = 670\,999\,568.6(1.5)\,(1.5)\,\,\mathrm{kHz}\,,\tag{8}$$

where the first uncertainty comes from the electron-proton mass ratio and the second is the theoretical uncertainty. In this calculation we have used the constants given in references as follow: α [19], M_p/m [20], M_d/M_p [21], and R_{∞} [8]. The difference

$$\Delta f_{\rm th} - \Delta f_{\rm exp} = 5234.0(2.1) \,\rm kHz$$
 (9)

between the theoretical and the experimental values is caused by the nuclear finite size effect, which is given by the first term of Eq. (6). From this we derive the difference of the deuteron-proton mean square charge radii

$$r_d^2 - r_p^2 = 3.8212(15) \text{ fm}^2.$$
 (10)

The deuteron structure radius is $r_{str}^2 = (r_d^2 - r_p^2) - r_n^2 - 3/4M_p^2$ [4], where $r_n^2 = -0.114(3)$ fm² [22] is the neutron charge radius and M_p the proton mass. From this equation one obtains

$$r_{\rm str} = 1.975\,35(85)\,\,{\rm fm}\,.$$
 (11)

The precision of atomic spectroscopy measurements of the deuteron radius is thus exceeding the accuracy of previous measurements based on elastic electron scattering by an order of magnitude. Furthermore, our result is in disagreement with these measurements as can be seen from Fig. 4. The recent reanalysis of scattering data by Sick [23] indicates a possible agreement with our data, when including the second order Born approximation. We emphasize again at this point that our determination of the deuteron structure radius is requiring a careful analysis of the nuclear self-energy. We have incorporated some corrections beyond the Sachs form factor. The recent prediction of the deuteron structure radius by Buchmann *et al.* [24] is in very good agreement with the new value presented here.

We are grateful to A.J. Buchmann, J.C. Friar, and D.W. Sprung for helpful discussions.

- *Permanent address: Tokyo Institute of Technology, 4259 Nagatsuta, Midori-ku, Yokohama, 226 Japan.
- [†]Permanent address: Institute of Theoretical Physics, Warsaw University, Hoża 69, 00-681 Warsaw, Poland.
- [1] See, e.g., C. W. Wong, Int. J. Mod. Phys. E 3, 821 (1994).
- [2] R. W. Berard et al., Phys. Lett. 47B, 355 (1973).
- [3] G. G. Simon, Ch. Schmitt, and V. H. Walther, Nucl. Phys. A364, 285 (1981).
- [4] S. Klarsfeld et al., Nucl. Phys. A456, 373 (1986).
- [5] F. Schmidt-Kaler *et al.*, Phys. Rev. Lett. **70**, 2261 (1993). The value for r_{str} in Fig. 4 was obtained by recalculating the theoretical isotope shift.
- [6] K. Pachucki et al., J. Phys. B 29, 177 (1996).
- [7] F. Schmidt-Kaler et al., Phys. Rev. A 51, 2789 (1995).
- [8] Th. Udem et al., Phys. Rev. Lett. 79, 2646 (1997).
- [9] M. Kourogi *et al.*, IEEE J. Quantum Electron. **31**, 2120 (1995).
- [10] H. Schnatz et al., Phys. Rev. Lett. 76, 18 (1996).
- [11] M. Prevedelli, T. Freegarde, and T.W. Hänsch, Appl. Phys. B 60, S241 (1995).
- [12] L. Essen *et al.*, Nature (London) **229**, 110 (1971); J.W.
 Heberle *et al.*, Phys. Rev. **101**, 612 (1956); H.A. Reich *et al.*, Phys. Rev. **104**, 1585 (1956); D.J. Wineland *et al.*, Phys. Rev. A **5**, 821 (1972).
- [13] A. Huber, Ph.D. thesis, LMU-München, 1997.
- [14] Th. Udem, Ph.D. thesis, LMU-München, 1997.
- [15] J. R. Sapirstein and D. R. Yennie, in *Quantum Electrody-namics*, edited by T. Kinoshita (World Scientific, Singapore, 1990).
- [16] J.L. Friar and G.L. Payne (unpublished).
- [17] K. Pachucki, Phys. Rev. A 52, 1079 (1995).
- [18] K. Pachucki, Phys. Rev. A 48, 120 (1993).
- [19] T. Kinoshita, Phys. Rev. Lett. 75, 4728 (1995).
- [20] D. L. Farnham, R. S. Van Dyck, Jr., and P. B. Schwinberg, Phys. Rev. Lett. **75**, 3598 (1995).
- [21] G. Audi and A. H. Waspra, Nucl. Phys. A565, 1 (1993).
- [22] S. Kopecky et al., Phys. Rev. Lett. 74, 2427 (1995).
- [23] I. Sick and D. Trautmann, Phys. Lett. B **375**, 16 (1996). $r_{\rm str} = 1.966(13)$ fm is obtained with $r_p = 0.862(12)$ fm from G. G. Simon *et al.*, Nucl. Phys. **A333**, 381 (1980).
- [24] A. J. Buchmann, H. Henning, and P. U. Sauer, Few-Body Syst. **21**, 149 (1996). The value for $r_{\text{str}} = 1.9735(3)$ fm (r_d in their notation) was calculated from their Eq. (6) and the entries in Table 4. The uncertainty in the last digit is due to the nearest neighbor potential model dependence.

Literaturverzeichnis

- Th. Udem, A. Huber, B. Gross, J. Reichert, M. Prevedelli, M. Weitz und Th. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett., 79, 2646 (1997).
- [2] Th. Udem, A. Huber, M. Weitz, D. Leibfried, W. König, M. Prevedelli, A. Dimitriev, H. Geiger und T. W. Hänsch, IEEE Transaction on Instrumentation and Measurement, 46, 166 (1997).
- [3] Th. Udem, A. Huber, J. Reichert, B. Gross, M. Prevedelli, M. Weitz, Th. W. Hänsch und M. Kourogi in *Laser Spectroscopy*, XIII International Conference, Z. J. Wang, Z. M. Zhang und Y. Z. Wang (Hrsg.), World Scientific, Singapore (1998).
- [4] Empfehlung 1(CI-1997), angenommen durch das Comité international des poids et mesures (CIPM) auf seinem 86. Treffen. T. Quinn, zu veröffentlichen in Metrologia.
- [5] A. Huber, Th. Udem, B. Gross, J. Reichert, M. Kourogi, K. Pachucki, M. Weitz und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett., 80, 468 (1998).
- [6] G. W. Series in *The Hydrogen Atom*, G. F. Bassani, M. Inguscio und T. W. Hänsch (Hrsg.), Springer Verlag, Berlin (1989).
- [7] W. E. Lamb und R. C. Retherford, Phys. Rev. 72, 241 (1947), Phys. Rev. 79, 549 (1950) und Phys. Rev. 81, 222 (1951).
- [8] T. Kinoshita und D. R. Yennie in *Quantum Eletrodynamics*, T. Kinoshita (Hrsg.), World Scientific, Singapore (1990).
- [9] R. G. Beausoleil, D. H. McIntyre, C. J. Foot, E. A. Hildum, B. Couillaud und T. W. Hänsch, Phys. Rev. A 35, 4878 (1987).
- [10] C. Zimmermann, R. Kallenbach und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett., 65, 571 (1990).
- [11] T. Andreae, Dissertation, Ludwig–Maximilians–Universität München (1993).
- [12] W. König, Dissertation, Ludwig–Maximilians–Universität München (1993).

- [13] R. Wynands, Dissertation, Ludwig–Maximilians–Universität München (1993).
- [14] T. Andreae, W. König, R. Wynands, D. Leibfried, F. Schmidt-Kaler, C. Zimmermann, D. Meschede und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett., 69, 1923 (1992).
- [15] A. Huber, Dissertation, Ludwig–Maximilians–Universität München (1997).
- [16] K. Pachucki, D. Leibfried, M. Weitz, A. Huber, W. König und T. W. Hänsch, J.Phys. B 29, 177 (1996) + Erratum auf Seite 1573 desselben Bandes.
- [17] J. R. Sapirstein und D. R. Yennie in *Quantum Electrodynamics*, T. Kinoshita (Hrsg.), World Scientific, Singapore (1990).
- [18] D. L. Farnham, R. S. Van Dyck Jr. und P. B. Schwinberg, Phys. Rev. Lett. 75, 3598 (1995).
- [19] G. Audi und A. H. Waspra, Nucl. Phys. A 565, 1 (1993).
- [20] H. A. Bethe und E. Salpeter, *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms*, Plenum Publishing Corporation, New York.
- [21] M. Weitz, A. Huber, F. Schmidt-Kaler, D. Leibfried, W. Vassen, C. Zimmermann, K. Pachucki, T. W. Hänsch, L. Julien und F. Biraben, Phys. Rev. A 52, 2664 (1995).
- [22] S. R. Lundeen und F. M. Pipkin, Phys. Rev. Lett., 46, 232 (1981).
- [23] S. Klarsfeld und A. Maquet, Phys. Lett. **43** B, 201 (1973).
- [24] L. N. Hand, D. J. Miller und R. Wilson, Rev. Mod. Phys. 35, 335 (1963).
- [25] Y. K. Akimov *et al.*, Sov. J. Nucl. Phys. **29**, 335 (1979).
- [26] G. G. Simon, C. Schmidt, F. Borkowski und V. H. Walther, Nucl. Phys. A 333, 381 (1980).
- [27] P. Mergell, U. G. Meißner und D. Drechsel, Nucl. Phys. A 596, 367 (1996).
- [28] K. Pachucki, Phys. Rev. Lett. **72**, 3154 (1994).
- [29] T. Kinoshita, Phys. Rev. Lett., **75**, 4728 (1995).

- [30] R. Kallenbach, Dissertation, Ludwig–Maximilians–Universität München (1990).
- [31] C. Zimmermann, Dissertation, Ludwig–Maximilians–Universität München (1991).
- [32] F. Schmidt–Kaler, Dissertation, Ludwig–Maximilians–Universität München (1992).
- [33] D. Leibfried, Dissertation, Ludwig–Maximilians–Universität München (1995).
- [34] F. Schmidt-Kaler, D. Leibfried, S. Seel, C. Zimmermann, W. König, M. Weitz und T. W. Hänsch, Phys. Rev. A 51, 2789 (1995);
- [35] B. Cagnac, G. Grynberg und F. Biraben, J. de Physique, **34**, 845 (1973).
- [36] G. Grynberg, F. Biraben, E. Giacobino und B. Cognac, J. de Physique, 38, 629 (1977).
- [37] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley und H. Ward, Appl. Phys. B 31, 97 (1983).
- [38] L. Bergmann und C. Schäfer, Lehrbuch der Experimentalphysik, Bd.3 Optik, Walter de Gruyter, Berlin.
- [39] I. I. Sobelman, Atomic Spectra and Radiative Transitions, Springer Verlag, Berlin.
- [40] A. Huber, zur Veröffentlichung vorbereitet.
- [41] T. Mayer–Kuckuk, Atomphysik, Teubner Verlag, Stuttgart.
- [42] D. McIntyre und T. W. Hänsch, Digest of the Annual Meeting of the Optical Society of America, paper ThG3, Washington D.C. (1988).
- [43] H. R. Telle, D. Meschede und T. W. Hänsch, Opt. Lett., 15, 532 (1990).
- [44] T. W. Hänsch in *The Hydrogen Atom*, G. F. Bassani, M. Inguscio und T. W. Hänsch (Hrsg.), Springer Verlag, Berlin (1989).
- [45] R. Wynands, T. Mukai und T. W. Hänsch, Opt. Lett. 17, 1749 (1992).
- [46] W. König, Diplomarbeit, Ludwig–Maximilians–Universität München (1990).

- [47] F. Zernike, J. E. Midwinter, Applied Nonlinear Optics, John Wiley & Sons Inc., New York (1973).
- [48] A. Yariv, Quantum Electronics, John Wiley & Sons Inc., New York (1989).
- [49] G. D. Boyd und D. A. Kleinman, J. Appl. Phys. **39**, 3597 (1968).
- [50] H. Kogelnik und T. Li, Appl. Opt. 5, 1550 (1966).
- [51] T. W. Hänsch und B. Couillaud, Opt. Comm. **35**, 441 (1980).
- [52] M. Prevedelli, T. Freegarde und T. W. Hänsch, Appl. Phys. B, 60, S241 (1995).
- [53] F. M. Gardener, *Phaselock Techniques*, John Wiley & Sons, New York.
- [54] R. Best, Theorie und Anwendungen der Phase–Locked Loops, AT–Verlag.
- [55] M. Ohtsu, *Highly Coherent Semiconductor Lasers*, Artech House, London.
- [56] F. L. Walls und A. DeMarchi, IEEE Trans. Inst. Meas., IM 24, 210 (1975).
- [57] H. Telle in Frequency Control of Semiconductor Lasers, M. Ohtsu (Hrsg.), John Wiley & Sons, New York (1996).
- [58] J. L. Stewart, Proc. IRE. **42**, 1539 (1954).
- [59] H. Schnatz, B. Lipphardt, J. Helmcke, F. Riehle und G. Zinner, Phys. Rev. Lett., 76, 18 (1996).
- [60] V. P. Chebotayev, V. G. Goldort, V. M. Klementyev, M. V. Nikitin, B. A. Timchenko und V. F. Zakharyash, Appl. Phys. B 29, 63 (1982).
- [61] K. M. Evenson, J. S. Wells, F. R. Petersen, B. L. Danielson und G. W. Day, Appl. Phys. Lett. 22, 192 (1973).
- [62] J. L. Hall, M. Long-shen und G. Kramer, IEEE J. Quantum Electron., 23, 427 (1987).
- [63] D. Fink, Appl. Opt. **14**, 689 (1975).
- [64] R. H. Kingston, Detection of Optical and Infrared Radiation, Springer, Berlin.

- [65] L. Wu, H. J. Kimble, J. L. Hall und H. Wu, Phys. Rev. Lett. 57, 2520 (1986).
- [66] S. A. Alexander, IEEE J. Lightwave Technol., LT 5, 523 (1987).
- [67] M. Kourogi, K. Nakagawa und M. Ohtsu, IEEE J. Quant. Electron. 29, 2693 (1993).
- [68] Institute of Laser Physics, Siberian Division, Russian Academy of Sciences, pr. Akademika Lavrent'eva 13/3, Novosibirsk, 630090 Russsia.
- [69] S. N. Bagayev, A. K. Dmitriyev, P. V. Pokasov, Laser Physics, 7, 989 (1997).
- [70] S. N. Bagayev, A. K. Dmitriyev, A. E. Ohm, P. V. Pokasov, E. V. Shalnev, B. N. Skvortsov und V. A. Nikulin auf dem Internationalen Symposium Modern Problems of Laser Physics 1995, S. N. Bagayev und V. I. Denisov (Hrsg.), Novosibirsk (1995).
- [71] V. S. Letokhov und V. P. Chebotayev, Nonlinear Laser Spectroscopy, Springer Verlag, Berlin.
- [72] S. N. Bagayev, E. V. Baklanov, V. P. Chebotayev und A. S. Dychkov, Appl. Phys. B 48, 31 (1989).
- [73] S. N. Bagayev, E. V. Baklanov, A. S. Dychkov, P. V. Pokasov und V. P. Chebotayev, JETP Lett., 45, 471 (1987).
- [74] S. N. Bagayev und V. P. Chebotayev, Sov. Phys. Usp., **29**, 82 (1986).
- [75] G. Kramer, D. N. Ghosh Roy, J. Helmcke und F. Spieweck, Appl. Phys. Lett., 37, 354 (1980).
- [76] Th. Udem, Bedienungsanleitung des HeNe–Standards, Stand 1997.
- [77] W. König, Diplomarbeit, Ludwig–Maximilians–Universität München (1990).
- [78] L. F. Mollenauer in Topics in Applied Physics, Vol 59, Tunable Lasers, L. F. Mollenauer, J. C. White und C. R. Pollock (Hrsg.), Springer Verlag, Berlin (1992).
- [79] R. Beigang, K. Klameth, B. Becker, Z. Youn und H. Welling, Opt. Comm. 65, 383 (1988).
- [80] B. Dahmani, L. Hollberg und R. Drullinger, Opt. Lett. **12**, 876 (1987).

- [81] L. Ricci, M. Weidemüller, T. Esslinger, A. Hemmerich, C. Zimmermann, V. Vuletic, W. König und T. W. Hänsch, Opt. Comm., 117, 541 (1995).
- [82] M. Kourogi, B. Widiyatomoko, Y. Takeuchi und M. Ohtsu, IEEE J. Quant. Electron. 31, 2120 (1995).
- [83] M. Kourogi, T. Enami und M. Ohtsu, IEEE Photon. Technol. Lett. 6, 214 (1994).
- [84] L. R. Brothers, D. Lee und N. C. Wong, Opt. Lett. **19**, 245 (1994).
- [85] J. T. Verdeyen, Laser Electronics, Prentice–Hall, New Jersey (1989).
- [86] S. N. Bagayev, A. K. Dmitriyev, V. M. Klementyev, P. V. Pokasov, B. N. Skvortsov, B. A. Timchenko und V. F. Zakharyash, Laser Physics, 6, 612 (1996).
- [87] M. A. Gubin, D. A. Tyurikov, A. S. Shelkovnikov, E. V. Koval'chuk, G. Kramer und B. Lipphardt, IEEE J. Quantum Electron., QE 31, 2177 (1995).
- [88] A. Bauch, *PTB–Mitteilungen*, **105**, 430 (1995).
- [89] A. Bauch, K. Dorenwendt, B. Fischer, T. Heindorff, E. K. Müller und R. Schröder, IEEE Trans. Instr. Meas. IM 36, 613 (1987).
- [90] C. O. Weiss, Appl. Phys. **B** 34, 63 (1984).
- [91] D. A. Tyurikov, M. A. Gubin, A. S. Shelkovnikov und E. V. Koval'chuk, IEEE Trans. Instr. Meas. IM 44, 166 (1995).
- [92] B. G. Whitford, Metrologia, **30**, 145 (1993).
- [93] J. A. Barnes, A. R. Chi, L. S. Cutler, D. J. Healey, D. B. Leeson, T. E. McGunigal, J. A. Mullen, W. L. Smith, R. L. Sydnor, R. F. Vessot und G. M. Winkler, IEEE Trans. Instr. Meas. IM 20, 105 (1971).
- [94] D. W. Allan, Proc. IEEE, **54**, 221 (1966).
- [95] R. S. Van Dyck, J. P. B. Schwinberg und H. G. Dehmelt, Phys. Rev. Lett. 59, 26 (1987).
- [96] B. de Beauvoir, F. Nez, L. Julien, B. Cagnac, F. Biraben, D. Touahri L. Hilico, O. Acef, A. Clairon und J. J. Zondy, Phys. Rev. Lett. 78, 440 (1997).

- [97] D. H. McIntyre, R. G. Beausoleil, C. J. Foot, E. A. Hildum, B. Couillaud und T. W. Hänsch, Phys. Rev. A 39, 4591 (1989).
- [98] M. G. Boshier, P. G. E. Baird, C. J. Foot, E. A. Hinds, M. D. Plimmer, D. Stacey, J. B. Swan, D. A. Tate, D. M. Warrington und G. K. Woodgate, Phys. Rev. A 40, 6169 (1989).
- [99] F. Schmidt-Kaler, D. Leibfried, M. Weitz und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett., 70, 2261 (1993).
- [100] Es reicht die Angabe des größten Terms in Gl.(2.10), des Bethe Logarithmus (Private Mitteilung von Krzysztof Pachucki). Numerische Werte sind zu finden in S. Klarsfeld und A. Maquet, Phys. Lett., 43B, 201 (1973).
- [101] S. G. Karshenboim, Z.Phys. D **39**, 109 (1997).
- [102] S. Bourzeix, B. de Beauvoir, F. Nez, M. D. Plimmer, F. de Tomasi, L. Julien, F. Biraben und D. N. Stacey, Phys. Rev. Lett., 76, 384 (1996).
- [103] D. J. Berkeland, E. A. Hinds und M. G. Boshier, Phys. Rev. Lett., 75, 2470 (1995).
- [104] F. Nez, M. D. Plimmer, S. Bourzeix, L. Julien, F. Biraben, R. Felder, Y. Millerioux und P. De Nathale, Europhys. Lett. 24, 635 (1993).
- [105] M. Weitz, F. Schmidt-Kaler und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. A 68, 1120 (1992).
- [106] E. R. Cohen und B. N. Taylor, Rev. Mod. Ohys. **59**, 1121 (1987).
- [107] E. R. Cohen, K. M. Crowe und J. W. Dumond, The Fundamental Constants of Physics, Interscience Publishers, New York (1957).
- [108] J. L. Friar und G. L. Payne, Phys. Rev. C, zur Veröffentlichung eingereicht.
- [109] A. J. Buchmann, H. Henning und P. U. Sauer, Few–Body Systems 21, 149 (1996).
- [110] S. Kopecky, P. Riehs, J. A. Harvey, N. W. Hill, Phys. Rev. Lett., **74**, 2427 (1995). Der Wert $r_{n,ch}^2 = -0, 114(3) \text{ fm}^2$ läßt sich aus dem in Tabelle I angegebenen Wert für $b_{ne} = -1.32(3) \times 10^{-3}$ fm berechnen.
- [111] Der Deuteron–Strukturradius läßt sich aus den Tabellen 4 und 6 in Ref.[109] berechnen (private Mitteilung von A. J. Buchmann).

- [112] S. K. Klarsfeld, J. Martorell, J. A. Oteo, M. Nishimura und D. W. Sprung, Nucl. Phys. A 456, 373 (1986).
- [113] I. Sick und D. Trautmann, Phys. Lett. **B** 375, 16 (1996).
- [114] L. Koester, W. Nistler und W. Waschkowski, Phys. Rev. Lett. **36**, 1021 (1976). Die angegebenen Neutron–Elektron Streulängen $b_{n,e}$ lassen sich mit $r_{n,ch}^2 = 86,387$ fm $\times b_{n,e}$ [110] in den Neutron–Ladungsradius umrechnen.
- [115] D. S. Weiss, B. C. Young und S. Chu, Phys. Rev. Lett. 70, 2706 (1993).
- [116] O. Schmidt, K. M. Knaak, R. Wynands und D. Meschede, Appl. Phys. B 59, 167 (1994).
- [117] M. Oria, M. Chevrollier, D. Bloch, M. Fichet und M. Ducloy, Europhys. Lett. 14, 527 (1991).
- [118] C. E. Tanner und C. Wieman, Phys. Rev. A 38, 1616 (1988).
- [119] W. Demtröder, Laser Spektroskopie, Springer Verlag, Berlin (1993).
- [120] G. Carlsson, A. Kastberg und L. R. Pendrill, Metrologia 34, 387 (1997).
- [121] K. B. Eriksson, I. Johanson und G. Norlén, Arkiv foer Fysik 28, 233 (1964).
- [122] G. Avila, P. Gain, E. de Clercq und P. Cerez, Metrologia 22, 111 (1986).
- [123] E. J. Post, Rev. Mod. Phys. **39**, 475 (1967).
- [124] K. Nakagawa, M. Kourogi und M. Ohtsu, Appl. Phys. **B57**, 425 (1993).
- [125] L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, R. L. Byer, W. R. Bosenberg und J. W. Pierce, J. Opt. Soc. Am., B 12, 2102 (1995).
- [126] K. Imai, M. Kourogi und M. Ohtsu, IEEE J. Quant. Electron., 34, 54 (1998).
- [127] C. Spielmann, P. F. Curley, T. Brabec und F. Krausz, IEEE J. QE 30, 1100 (1994).
- [128] A. Kasper und K. J. Witte, Opt. Lett., **21**, 360 (1996).

- [129] A. Baltuška, Z. Wei, M. S. Pshenichnikov und D. A. Wiersma, Opt. Lett. 22 102 (1997).
- [130] A. Hasegawa und F. Tappert, Appl. Phys. Lett., 23, 142 (1973).
- [131] R. L. Fork, O. E. Martinez und J. P. Gordon, Opt. Lett. 9, 150 (1984).
- [132] R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann und F. Krausz, Opt. Lett. **19**, 201 (1994).
- [133] G. Cerullo, S. De Silvestri, V. Magni und L. Pallaro, Opt. Lett. **19**, 807 (1994).
- [134] J. Paye, M. Ramaswamy, J. G. Fujimoto und E. P. Ippen, Opt. Lett. 18, 1946 (1993).
- [135] L. Xu, Ch. Spielmann, A. Poppe, T. Brabec, F. Krausz und T. W. Hänsch, Opt. Lett. 21, 2008 (1996).
- [136] G. G. Paulus, W. Nicklich, F. Zacher, P. Lambropoulos und H. Walter, J. Phys. B 29, L249 (1996).
- [137] I. S. Gradsteyn und I. M. Ryzhik, Table of Integrals, Series, and Products, Academic Press, New York (1965). Integral Nummer 3896.
- [138] A. L'Huillier und Ph.Balcou, Phys. Rev. Lett., **70**, 774 (1993).
- [139] L. Essen, R. W. Donaldson, M. J. Bangham und E. G. Hope, Nature 229, 110 (1971).
- [140] J. W. Heberle, H. A. Reich und P. Kusch, Phys. Rev. **101**, 612 (1956).
- [141] D. J. Wineland und N. F. Ramsey, Phys. Rev. A 5, 821 (1972).
- [142] H. A. Reich, J. W. Heberle, und P. Kusch, Phys. Rev. **104**, 1585 (1956).
- [143] E. W. Hagley und F. M. Pipkin, Phys. Rev. Lett., 72, 1172 (1994).
- [144] U. Jentschura und K. Pachucki, Phys. Rev., A 54, 1853 (1996).

Danksagung

Zu allererst gehört mein Dank Prof. T. W. Hänsch für die Möglichkeit, an einem interessanten Grundlagenexperiment mitarbeiten zu dürfen. Ich hatte oft das Gefühl, daß er die Phasen längerer Abwesenheit zu einem beträchlichen Teil dazu nutzte, neue Ideen für die Frequenzkette zu sammeln. Indem er immer bereit war, alle unsere Vorschläge voll zu unterstützen, schuf er die nahezu unbegrenzten Möglichkeiten für das Experimentieren am MPQ.

Durch den Einsatz von Andreas Huber, der ab November 1995 mit allen Gliedmaßen sämtliche Hebel und Ventile der keuchenden und zischenden Wasserstoffapparatur völlig alleine bediente, wurde klar, daß wir auf dem richtigen Weg zur ersten phasenkohärenten Messung waren.

Mit dem Beginn der Doktorarbeiten von Jörg Reichert und Bruno Gross, der eine Phase der chronischen personellen Unterbesetzung beendete, wurden die vorher nur sporadisch funktionierenden Absolutfrequenzmessungen zur Routine.

Marco Prevedelli war auch nach seinem Weggang nach Florenz immer eine große Hilfe. Er hat mir quasi im Fernstudium viele wichtige Details der Frequenzkette erklären können.

Martin Weitz möchte ich dafür danken, daß er am Ende doch immer Recht hatte. Nicht jeder Doktorand hat das Glück, mit jemandem wie Martin arbeiten zu können, der bisher noch auf jede meiner physikalischen Fragen eine Antwort wußte.

Ohne die Betreiber der Frequenzkette der PTB, Herr B. Lipphardt und Herr G. Kramer, wäre dieses Experiment völlig undenkbar gewesen. Durch sie wurde nicht nur die Kalibrierung unseres Methanstandards ermöglicht, sie haben uns auch durch viele Tips, Leihgaben und Schaltpläne an entscheidenden Stellen weitergeholfen.

Prof. S. N. Bagayev, Sasha Dmitriyev und André Ohm vom Institut für Laserphysik in Novosibirsk möchte ich für die Hilfe beim Betreiben unseres Methanstandards, der an ihrem Institut gebaut wurde, bedanken.

Dmitry Tyurikov vom P. N. Lebedev Institut in Moskau möchte ich danken für die Möglichkeit, unseren Methanstandard mit dem seinen vergleichen zu können und für die Bereitstellung der Rohdaten für die Kalibrierung seines Standards. Von Helmut Brückner habe ich gelernt, wie man widerspenstige Elektronik mit Beschwörungsformeln, die im wesentlichen aus bayrischen Schimpfwörtern bestehen, mühelos wieder flott kriegt. Ohne seinen Sachverstand wäre ich mit meinen bescheidenen Elektronikkenntnissen absolut chancenlos gewesen.

Trotz, oder gerade wegen der Sprachbarriere war die Zusammenarbeit mit unseren Technikern Wolfgang Simon, Charly Linner und Claudia Schenker sowie den Sekretärinnen Frau Hecht und Gabriele Gschwendtner sehr erfrischend.

Von Motonobu Kourogi habe ich gelernt, wie man OFC–Generatoren aufbaut und betreibt, und wie man auf dem Oktoberfest vier Maß Bier trinkt und trotzdem am nächsten Tag noch drei Lock–Boxen lötet.

Außerdem gilt mein Dank:

Thomas Andreae, Robert Wynands und Wolfgang König, von denen ich die Frequenzkette "geerbt" habe; Dietrich Leibfried für so manche mit Psychoenergie geladene Diskussion; Jochen Walz der in verzweifelten Situationen immer noch einen "RF–Gimmick" aus der Trickkiste ziehen konnte; Krzysztof Pachucki für die Einweihung in die Mysterien der Quantenelektrodynamik; Claus Zimmermann für so manche, erhellende Diskussion.

Lebenslauf

Geburtsdatum: Geburtsort: Staatsangehörigkeit: Familienstand:	25.9.1962 Bayreuth deutsch ledig
August 1969	- Einschulung.
Mai 1983	- Abitur am Weidig-Gymnasium, Butzbach/Hessen.
Januar 1984 bis März 1985	- Grundwehrdienst.
August 1985 bis Juli 1987	- Tischlerlehre mit Abschluß als Geselle.
WS 1987/88 bis SS 1993	- Physikstudium an der Justus-Liebig-Universität Gießen.
WS 1989/90	- Vordiplom in Physik.
WS 1990/91 bis SS 199	 Studium an der University of Washington in Seatt- le/USA.
WS 1990/91 bis SS 199	3 - Diplomarbeit über "Linienprofile der kohärenten Vorwärtsstreuung (CFS) und der Atom-Absorp- tions-Spektroskopie (AAS) unter Berücksichtigung der Hyperfeinstruktur" am I. Physikalischen Insti- tut der Justus-Liebig Universität Gießen am Lehr- stuhl von Prof. G. Hermann.
WS 1992/93 bis SS 199	3 - Betreuung des physikalischen Praktikums für Fort- geschrittene.
Oktober 1993 bis Februar 1	1994 - Wissenschaftliche Hilfskraft am I. Physikalischen Institut der Justus-Liebig Universität Gießen.
Seit März 1994	- Doktorarbeit am Max–Planck–Institut für Quan- tenoptik in Garching am Lehrstuhl von Prof. T. W. Hänsch.