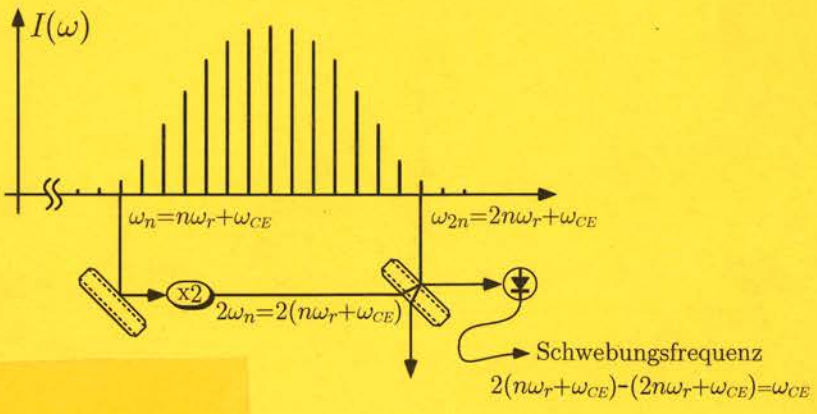
MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR QUANTENOPTIK

Die Messung der Frequenz von Licht mit modengekoppelten Lasern

Thomas Udem



MPQ-Report 293

MPQ 293 Februar 2004

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

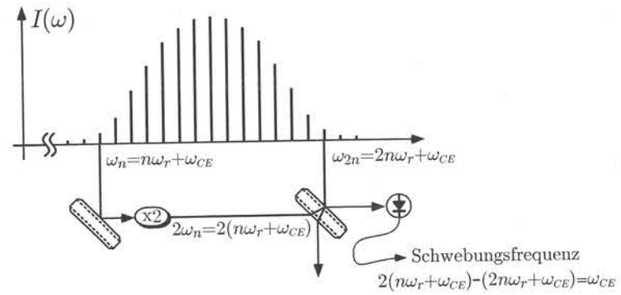
This MPQ-Report has been printed as author's manuscript
All rights reserved

Max-Planck-Institut für Quantenoptik
85740 Garching, Bundesrepublik Deutschland

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR QUANTENOPTIK

Die Messung der Frequenz von Licht mit modengekoppelten Lasern

Thomas Udem



MPQ 293

Februar 2004

Zusammenfassung

Durch die Einführung von Frequenzkämmen hat sich die Messung von optischen Frequenzen von einigen 100 Terahertz (1 THz = 10^{12} Hz) drastisch vereinfacht. Ein solcher Frequenzkamm von äquidistanten cw-Lasermoden kann als Maßstab im Frequenzraum verwendet werden, um damit große Frequenzdifferenzen zu bestimmen. Durch das Messen der Frequenzlücke zwischen verschiedenen Harmonischen desselben Lasers kann dessen Absolutfrequenz bestimmt, und gleichzeitig sämtliche Moden des Frequenzkamms kalibriert werden. Auf diese Weise gelingt es, Oszillatoren mit sehr verschiedenen Frequenzen phasenkohärent aneinander zu binden. Das Besondere an diesem Verfahren ist, dass diese Konvertierung auch zwischen Radiofrequenzen und optischen Frequenzen gelingt. Durch die Auswahl einer bestimmten Mode des Frequenzkamms, von denen es einige 100 000 geben kann, ist es möglich, quasi jede beliebige optische Frequenz aus einer vorgegebenen Radiofrequenz zu synthetisieren. Dieser optische Synthesizer arbeitet dabei phasenkohärent. Die sich sehr schnell ändernde Phase der optischen Frequenz, relativ zur Radiofrequenz, lässt sich zu jedem Zeitpunkt angeben. Idealerweise wird die Radiofrequenz aus einer Atomuhr abgeleitet und der Frequenzkamm mit einem Femtosekundenlaser erzeugt. Dadurch lässt sich eine bisher unerreichte Präzision der Frequenz im Optischen erzielen.

Verschiedene Testexperimente, die wir in Garching durchgeführt haben, ergaben eine obere Grenze für die Genauigkeit der Konvertierung, die weit unterhalb der Unsicherheit der derzeit besten Atomuhren liegt. Damit können nun optische Frequenzen mit einer Genauigkeit, die nur durch die verwendete Radiofrequenz begrenzt ist, synthetisiert werden. Selbst mit einem GPS-Empfänger können jetzt auch kleinere Labors hochpräzise spektroskopische Untersuchungen an Atomen und Molekülen durchführen. Wir haben auf diese Weise die $1S - 2S$ Übergangsfrequenz von $f_{1S2S} = 2\ 466\ 061\ 413\ 187\ 103\ (46)$ Hz in atomarem Wasserstoff mit einer Cäsiumfontänenuhr gemessen. Zusammen mit anderen Übergangsfrequenzen in atomarem Wasserstoff kann daraus ein verbesserter Wert für die $1S$-Lamb Verschiebung und der Rydberg-Konstante berechnet werden. Während der gemessene Wert der $1S$-Lamb Verschiebung eine der genauesten Tests der Quantenelektrodynamik (QED) erlaubt, ist die Rydberg-Konstante eine der wichtigsten Eckpfeiler für die Ausgleichsrechnung, mit deren Hilfe der wahrscheinlichste Satz aller Naturkonstanten bestimmt wird.

Neben Übergangsfrequenzen in Jod und einem einzelnen gespeicherten Indium Ion, wurde auch die Cäsium D_1 Linie genau vermessen. Aus dem Ergebnis lässt sich, zusammen mit der Rückstoßverschiebung dieser Linie, ein neuer Wert der Feinstrukturkonstante bestimmen. Auf diese Weise ist es zum ersten Mal gelungen, eine Genauigkeit im ppb-Bereich, ohne aufwendige und potentiell fehlerhafte QED Rechnungen, zu erreichen.

Das Synthesizer-Prinzip lässt sich umkehren, um damit extrem scharfe optische Resonanzen in eine zählbare Radiofrequenz zu konvertieren. Diese kann dann als Taktgeber für eine optische Uhr genutzt werden. Während eines Forschungsaufenthalts am NIST in Boulder Colorado, USA, habe ich bei der Realisierung der ersten optischen Uhr mitgewirkt. Die Genauigkeit des zu diesem Zweck gemessenen optischen Uhrenübergangs in einem einzelnen gespeicherten Quecksilber Ion war zum ersten Mal durch die bestmögliche Realisierung der SI-Sekunde limitiert. Damit ist diese, nach der $1S - 2S$-Frequenz im Wasserstoff, die zur Zeit genaueste bekannte atomare Übergangsfrequenz. Die optischen Uhren haben eine prognostizierte Genauigkeit, welche die besten heute zur Verfügung stehenden Atomuhren um bis zu drei Größenordnungen übersteigt. Seit der Demonstration der Frequenzkammtechnologie durch unser Labor in Garching haben deswegen in so gut wie allen Standardinstituten der Industrieländer die Arbeiten daran begonnen. Dies ist wohl auch darauf zurück zu führen, dass sich die optischen Synthesizer außerdem bestens zur Darstellung des Meters eignen.

Neue Anwendungen der phasenkohärenten Kontrolle von Licht ergeben sich in der Kurzzeitspektroskopie und der nichtlinearen Optik. Die gleichen Mechanismen, die wir zur Stabilisierung der Frequenzkämme entwickelt haben, stabilisieren die Phase zwischen der Einhüllenden und der Trägerwelle eines Pulszuges. Für nichtlineare Effekte hoher Ordnung und sehr kurzen Pulsen ist dies ein wichtiger Parameter. In Zusammenarbeit mit der Gruppe von Prof. F. Krausz von der TU Wien, ist es jetzt gelungen, die Phase zwischen Pulseinhüllende und Trägerwelle nicht nur zu stabilisieren, sondern absolut zu messen. Zusammen mit anderen Pulsdiagnoseverfahren ist es dadurch jetzt möglich, Pulse mit genau bekanntem zeitlichen Verlauf des elektrischen Feldes zu erzeugen. Mit derart kontrollierten Pulsen lässt sich das Spektrum hoher Harmonischer bis in den weichen Röntgenbereich kontrollieren.

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **1**

2 Frühere Methoden zur optischen Frequenzmessung **5**

2.1 Harmonische Frequenzketten 5

2.2 Der optische Phasenregelkreis 7

2.3 Messung der Phasenstabilität 9

2.4 Elektrooptische Frequenzkämme 11

2.5 Intervallteilerketten 13

3 Modengekoppelte Laser als Kammgeneratoren **15**

3.1 Ableitung des Modenkamms aus den Resonator-Randbedingungen 15

3.2 Ableitung des Modenkamms aus dem Pulszug 17

3.3 Pulszug mit konstanter Trägerfrequenz 19

3.4 Der Modenkamm durch Pulswiederholung 21

3.5 Funktionsweise eines Kerr-Linsen modengekoppelten Lasers 24

4 Überprüfung des Frequenzkamms **27**

4.1 Schwebungssignale mit dem Modenkamm 27

4.2 Überprüfung der Äquidistanz der Moden 30

4.3 Überprüfung der Identität von Modenabstand und Repetitionsrate 33

4.4 Externe Kammverbreiterung in Einmoden Fasern 34

5 Spektroskopie an Cäsium **37**

5.1 Messung Cäsium D_1 Linie 37

5.2 Bestimmung der Feinstruktur Konstante 41

6 Spektroskopie an einzelnen ^{133}In Ionen **45**

6.1 Messung des $5s^2\ ^1S_0 \rightarrow 5s5p\ ^3P_0$ Übergangs in $^{133}In^+$ 45

7 Der erste optische Synthesizer **49**

7.1 Kontrolle des Frequenzkamms 49

7.2 Interferometrische Bestimmung des CE-Phasenschlupfs 51

7.3 "self-referencing" des Frequenzkamms 52

8 Spektroskopie am atomaren Wasserstoff **55**

8.1 Das Wasserstoff-Spektrometer 55

8.2 Messung mit einer kommerziellen Atomuhr 57

8.3 Messung mit einer Fontänenuhr 58

8.4 Rydberg-Konstante und Lamb-Veschiebung 60

8.5 Isotopieverschiebung und Deutron Strukturradius 63

9 Der kompakte optische Synthesizer **65**

9.1 Externe Kammverbreiterung in mikrostrukturierten Fasern 65

9.2 "self-referencing" mit nur einem Laser 69

9.3 Differenz Frequenzkamm 72

9.4 Vergleichstest zwischen optischen Synthesizern 75

10 Die erste optische Atomuhr **77**

10.1 Der NIST-Kalzium Standard 77

10.2 Der NIST-Quecksilber Standard 79

10.3 Messung von Frequenzverhältnissen 81

11 Anwendungen der optischen Uhren und Synthesizer **87**

12 Zeitraum Implikationen **91**

12.1 CE-Phasen abhängige Erzeugung von Attosekunden Pulsen 92

12.2 Einzelpuls Messung Bestimmung der CE-Phase Änderung 94

12.3 Rekonstruktion des Pulsfeldes, Bestimmung der CE-Phase 97

13 Anhang **99**

13.1 Der vollständige Versuchsaufbau des ersten optischen Synthesizers 99

13.2 Der vollständige Versuchsaufbau zur Bestimmung der $1S - 2S$-Frequenz . 100

13.3 Pressestimmen (Auswahl) 103

13.4 Patente 109

13.5 Auswahl der wichtigsten Veröffentlichungen 110

1. Einleitung

Betrachtet man die erreichbare Messgenauigkeit verschiedener physikalischer Größen, so stellt man fest, dass sich Zeitspannen und Frequenzen am genauesten bestimmen lassen. Für andere physikalischen Größen, wie etwa Länge, Masse oder Ladung, verfügen wir nur über sehr viel ungenauere Messgeräte. Eine Frequenz ist die Anzahl der Zyklen einer periodisch veränderlichen Größe pro Zeiteinheit und ihre Messung besteht demnach aus einem Zählvorgang und einer Zeitmessung. Wenn man sich nicht verzählt, dann ist eine Frequenzmessung also im Prinzip so genau, wie sich die Zeitspanne, während der die Oszillationen gezählt werden, bestimmen lässt. Damit ist eine Frequenzmessung einer Zeitmessung völlig äquivalent. Um das große Potenzial der Zeit- bzw. Frequenzmessung zu nutzen, versucht man, auch andere physikalische Größen auf eine Zeit oder Frequenz zurückzuführen. Das einfachste Beispiel einer solchen Rückführung ist wohl die 1983 erfolgte Neudefinition des Meters über die Lichtgeschwindigkeit[1]. Damals wurde der Wert der Vakuumlichtgeschwindigkeit c_o per Definition festgelegt und damit die Bestimmung der Wellenlänge λ einer elektromagnetischen Welle auf eine Messung der Frequenz ω zurückgeführt. Durch diesen Kunstgriff lässt sich die Länge $\lambda = 2\pi c_o/\omega$ aus der Frequenz ω ableiten, ohne dass bei dieser Umrechnung die Unsicherheit der Lichtgeschwindigkeit zu Buche schlagen würde. Diese Möglichkeit war schon lange vor der Neudefinition bekannt. Um jedoch die intrinsische Genauigkeit nutzen zu können, muss eine möglichst kurze Wellenlänge, zum Beispiel die von sichtbarem Licht, verwendet werden, damit sich eine möglichst feine Einteilung des Meters ergibt. Realisiert wird solch ein Meterstab dann mit Hilfe eines Interferometers. Die Neudefinition des Meters erfolgte erst, als es technisch möglich wurde, die sehr hohen Frequenzen von Licht (einige hundert THz = einige 10^{14} Hz) zu zählen. Die Entwicklung dieser ultraschnellen Zähler ist der Hauptgegenstand dieser Arbeit.

Aus der Anwendung der optischen Zähler in unserem Labor für die hochauflösende Spektroskopie und zum Überprüfen der Quantenelektrodynamik [1], ergab sich die Möglichkeit der Realisierung der ersten optischen Uhr [2, 3]. Jede Uhr beruht auf einem periodischen Vorgang, der möglichst gleichmäßig abläuft, und einem Zähler. Die jetzige Definition der SI Sekunde beruht auf der Cäsiumatomuhr, bei der die Perioden bei der Präzession des Valenzelektronenspins um den Kernspin gezählt werden. Der Sekundenzeiger einer solchen Uhr wird jeweils nach 9 192 631 770 Perioden um eine Einheit vorgestellt. Vergleicht

[1] Die Ausnutzung des Josephson Effekts zur Realisierung von Spannungsnormalen ist ein weiteres Beispiel.

man die verschiedenen Uhrentypen wie etwa Sonnenuhren, Pendeluhren, Quarzuhren und Cäsiumuhren, so fällt auf, dass diese umso genauer gehen, je schneller der verwendete periodische Vorgang ist. Lässt man systematische Effekte außer Acht, so ist genau dieses Verhalten zu erwarten; anschaulicher Weise weil die häufigeren Zeitmarken eine feinere Einteilung des Zeitintervalls erlauben [4]. Seit den fünfziger Jahren ist man mit der Uhrenfrequenz bei den eben genannten 9, 19263177 GHz angelangt. Seitdem wird diskutiert, wie sich die Uhrenfrequenz weiter, zum Beispiel bis in das Optische, steigern lässt. Als "Pendel" für solche Uhren kommen einzelne gespeicherte Ionen in Betracht, die für diesen Zweck 1982 von H. Dehmelt vorgeschlagen wurden [5]. Das Uhrwerk einer solchen Uhr stellte bisher jedoch die größte Herausforderung dar, weil es in der Lage sein muss, diese optischen Schwingungen zu zählen. Für die praktische Realisierbarkeit einer solchen Uhr wurde ein kompakter und verlässlich arbeitender Zähler und Synthesizer[2] für optische Frequenzen gebraucht, wie er in dieser Arbeit beschrieben wird. Die Darstellung der Zeit, wie sie von den Standardinstituten durchgeführt wird, beruht auf Uhren, die auch nach Jahren des kontinuierlichen Betriebs bis auf Bruchteile einer Mikrosekunde synchronisiert bleiben. Für die neuartigen optischen Uhren werden relative Unsicherheiten bis herab zu etwa 10^{-18} abgeschätzt [6]. Das ist etwa 1000 mal so genau wie die besten bisherigen Cäsiumuhren und entspricht auf der Erdoberfläche einer Gravitationsrotverschiebung zwischen zwei Uhren, die sich in ihrem Abstand zum Erdmittelpunkt um nur einen Zentimeter unterscheiden. Mit einer derartigen Präzision könnten neue, hoch genaue Tests der Quantenelektrodynamik oder der Relativitätstheorie durchgeführt werden. Außerdem würden solche Uhren eine empfindlichere Suche nach einer eventuellen zeitlichen Veränderung von Naturkonstanten [7, 8, 9, 10, 11, 12, 13] erlauben.

Seit der Entwicklung des Lasers vor über vierzig Jahren haben sich die hochauflösende Spektroskopie und die Kurzzeitspektroskopie komplett unabhängig voneinander entwickelt. Es galt der Grundsatz, dass man nur mit einem schmalbandigen Laser schmale Übergänge vermessen kann. An dieser generellen Auffassung haben auch die isolierten Kontakte zwischen den beiden Teilgebieten [14, 15, 16, 17] nicht viel geändert. Der Fortschritt der letzten drei Jahre in der Frequenzkammtechnologie hat diese Situation drastisch geändert. Mit den in dieser Arbeit beschriebenen Methoden ist es nun möglich, sowohl Lichtpulse mit präzise wiederholbaren elektrischem Feld zu erzeugen [18, 19], als auch einen optischen Synthesizer [1, 20, 21, 22, 23, 24, 25] zu konstruieren, der die Vermessung von optischen Frequenzen mit einer Präzision, die nur durch die verwendete Atomuhr begrenzt ist, ermöglicht. Die Beobachtung von Effekten, die von der genauen Form des elektrischen Feldes und nicht nur von der Pulseinhüllenden abhängen [26, 27], gelingt nun [28], und das seit mehr als dreißig Jahren im Raum stehende Problem der einfachen Rückführung einer optischen Frequenz auf eine zählbare Radiofrequenz, ist gelöst.

[2] In der Radiofrequenztechnik ist ein Synthesizer ein Gerät, das zum Beispiel eine 10 MHz Referenz, in eine beliebige andere Frequenz phasenkohärent konvertiert. Ein optischer Synthesizer kann demnach eine 10 MHz Referenz in eine beliebige optische Frequenz konvertieren.

Der Schlüssel zu dieser Entwicklung ist die Kontrolle der relativen Phase φ zwischen der Trägerwelle und der Pulseinhüllenden [29] von kurzen Lichtpulsen aus einem Femtosekundenlaser. Diese gibt die Position des zentralen Wellenzyklus relativ zum Pulsmaximum an. Diese Phase ist erst seit kurzem einer direkten Messung zugänglich [28]. Für die meisten Anwendungen genügt der Zugriff auf deren Puls-zu-Puls Änderung $\Delta\varphi$. Die theoretische [29, 21] Analyse und experimentelle [30, 25] Bestätigung ergibt, dass eine Stabilisierung dieses Phasenschlupfs die Frequenzen der einzelnen longitudinalen Moden des Femtosekundenlasers präzise festlegen. Auf Grund der Ergebnisse in Referenz [30] ist in unserem Garchinger Labor im Februar 1999 der erste optische Synthesizer gebaut worden [20, 22]. Mit ihm wurden die Übergangsfrequenz zwischen den $1S$ und $2S$ Niveaus des atomaren Wasserstoffs genau vermessen [1]. Obwohl keine Experimente in dieser Richtung unternommen wurden, war damit auch zum ersten Mal die Phase zwischen der Trägerwelle und der Pulseinhüllenden stabilisiert[3].

[3] Der genaue Wert, auf dem die Phase φ dabei gehalten wird, konnte zu diesem Zeitpunkt noch nicht angegeben werden.

2. Frühere Methoden zur optischen Frequenzmessung

2.1 Harmonische Frequenzketten

Harmonische Frequenzketten arbeiten mit in Reihe geschalteten Frequenzvervielfachern, die jeweils aus einem Oszillator und einem nichtlinearen Bauteil zur Vervielfachung seiner Frequenz bestehen. Mit einer solchen harmonischen Frequenzkette wird letztendlich eine Radiofrequenz, die aus einer Atomuhr abgeleitet wird, in eine optische Frequenz konvertiert. Durch die dadurch hergestellte phasenstarre Verbindung zwischen den beiden Frequenzdomänen reicht es, wenn man die langsamere der beiden (die Radiofrequenz) genau kennt oder zählen kann, um die schnellere optische Frequenz abzuleiten. Die Grundlage der Frequenzvervielfachung bilden dabei verschiedene nichtlineare Effekte, die Oberschwingungen zu einer harmonischen Schwingung hinzufügen. Weil die Nichtlinearitäten, insbesondere für höhere Frequenzen, schwach sind, wird nach jedem Verdoppelungsschritt ein Verstärker (sog. Transferoszillator) benötigt, um genügend Leistung für die nächste Stufe zur Verfügung zu stellen. Ab dem ferninfraroten Spektralbereich kommt nur noch die Frequenzverdoppelung in Betracht, weil die entsprechenden Nichtlinearitäten in Kristallen zu klein sind.

Als A. Javan und Mitarbeiter im Jahre 1967 die erste Frequenzkette bis 871 GHz [31] gebaut haben und K. M. Evenson und Mitarbeiter 1973 bis 88 THz vordringen konnten [32], waren dies sicher die schwierigsten optischen Experimente jener Zeit. Typischerweise füllten sie mehrere Labors und funktionierten nur sporadisch und dann nur für wenige Minuten oder Sekunden störungsfrei. Somit waren diese Zähler für eine hoch genaue Uhr, die man über einen längeren Zeitraum kontinuierlich betreiben muss, ungeeignet. Unglücklicherweise hat sich an dieser aufwendigen Technologie bis Ende der 90er Jahre nichts Wesentliches geändert, so dass sich alle harmonischen Frequenzketten, die weltweit existieren oder existiert haben, schnell auflisten lassen (siehe folgende Referenzen: [31, 32, 33, 34, 35, 36, 37, 38, 39, 40]). Erst 1996 ist es gelungen, mit dieser Technologie bis in den sichtbaren [39] und kurz darauf bis in den Vakuum UV Bereich vorzudringen [41]. Die hauptsächliche Anwendung bestand darin, eine möglichst gut reproduzierbare optische Referenzfrequenz zu kalibrieren, um sie anderen Labors zugänglich zu machen. Diese kalibrierten, so genannten sekundären Frequenzstandards wurden dann zur Realisierung des Meters und, vor 1983, zur Bestimmung der Lichtgeschwindigkeit verwendet. Dieses Verfahren war bald genau genug, um durch den Wert der Lichtgeschwindigkeit

aus Wellenlängenmessungen begrenzt zu sein. Durch die oben erwähnte Neudefinition des Meters, über die Festlegung der Lichtgeschwindigkeit, wurde dieses Hindernis beseitigt. Für wissenschaftliche Anwendungen wurden die sekundären Frequenzstandards als Ausgangspunkt für weitere Frequenzketten verwendet, um andere optische Frequenzen zu bestimmen [42, 43, 44, 45, 41].

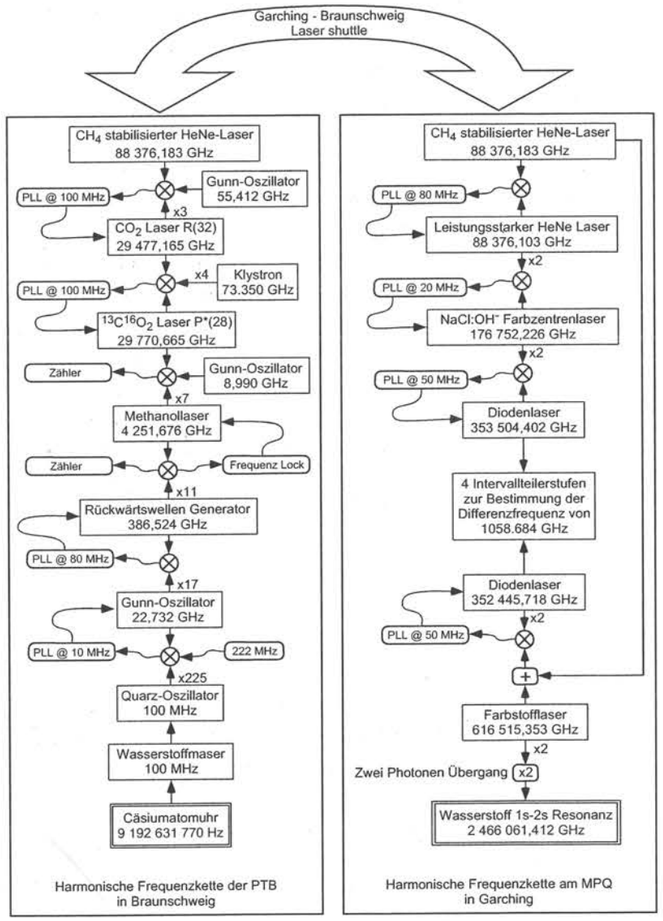


Abbildung 2.1: *Eine harmonische Frequenzkette, die 1997 zur Messung der* $1S - 2S$*-Übergangsfrequenz in atomarem Wasserstoff eingesetzt wurde [41, 39]. Das Ausgangssignal bei* $9,192\,631\,77$ *GHz einer Cäsiumuhr wird in mehreren Schritten bis* $2\,466,061\,412$ *THz multipliziert.*

In der Abbildung 2.1 ist die harmonische Frequenzkette dargestellt, die wir 1997 zur Messung der $1S - 2S$-Übergangsfrequenz in atomarem Wasserstoff eingesetzt haben [29, 41, 39]. Das Signal einer Cäsiumuhr bei $9,192\,631\,77$ GHz wird hier schrittweise bis $2\,466,061\,412$ THz multipliziert. Die Frequenz-Vervielfachung bei jedem Schritt ist als Faktor neben dem vertikalen Pfeil angegeben. Nach jeder Vervielfältigung wird die relative Phase zum nächsten Oszillator zunächst gemessen ($\otimes$-Symbol) und dann idealerweise stabilisiert (siehe Abschnitt 2.2). Weil die Kette der Oszillatoren das gesamte elektromagnetische Spektrum von 100 MHz bis zum Vakuum-UV überstreicht, wird in jedem Schritt eine grundsätzlich andere Technologie bezüglich der verwendeten Oszillatoren und der nichtlinearen Bauteile benötigt. Dies hat zur Folge, dass der Aufwand für jeden Schritt in etwa einer Doktorarbeit entspricht. Der gesamte Aufbau füllte zwei große optische Labors, unseres in Garching (rechte Seite) und eines bei der *Physikalisch Technischen Bundesanstalt* (PTB) in Braunschweig (linke Seite). Das Verbindungsstück stellte ein methanstabilisierter Helium-Neon Laser bei $88,376$ THz ($3,39$ μm) dar, der zwischen Braunschweig und Garching transportiert wurde. Die Frequenzlücke von $\Delta f = 1\,058,684$ GHz ≈ 1 THz auf der rechten Seite wurde mit vier optischen Intervallteilerstufen (siehe Abschnitt 2.5), bestehend aus sechs weiteren Lasern (nicht dargestellt), in eine Radiofrequenz konvertiert und gezählt. Außer der Komplexität hatten diese harmonischen Frequenzketten den großen Nachteil, dass man sie im Wesentlichen nur für eine einzige optische Frequenz verwenden konnte. Dies wäre zwar für eine optische Uhr keine wesentliche Einschränkung, schon aber, wenn es darum geht, in einem Forschungslabor verschiedene interessante optische Übergangsfrequenzen genau zu vermessen. Eine schöne Übersicht über die letzten 40 Jahre optische Frequenzmessung gibt die Referenz [46].

2.2 Der optische Phasenregelkreis

Die einfachste Methode, optische Differenzfrequenzen zu messen, ist die Erzeugung von Schwebungssignalen. Bei sorgfältiger Überlagerung zweier Laserstrahlen mit den optischen Frequenzen ω_1 und ω_2 liefert ein Photodetektor das folgende zur Intensität proportionale Signal:

$$\left|\vec{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \vec{E}_2 e^{-i\omega_2 t + i\varphi}\right|^2 = E_1^2 + E_2^2 + 2\vec{E}_1 \cdot \vec{E}_2 \cos((\omega_2 - \omega_1)t - \phi) \qquad (2.1)$$

Der zeitlich konstante Phasenunterschied ϕ ist durch die Wahl des Zeitnullpunktes und der Weglänge 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 diese als Schwebungssignal auf eine von außen vorgegebene Radiofrequenz, den so genannten Lokaloszillator, stabilisiert werden. Die ersten Experimente, mit Schwebungssignalen zwischen verschiedenen ferninfrarot Lasern und Harmonischen von Mikrowellen, wurden bereits in den sechziger Jahren von A. Javan

und Mitarbeitern durchgeführt [31] und in den 70er Jahren weiter perfektioniert und auf den Submillimeter Wellenlängenbereich ausgedehnt [47, 48].

Damit sich bei der Stabilisierung der Schwebungssignale kleine Frequenzabweichungen nicht aufintegrieren, wird üblicherweise die Phase zwischen dem Lokaloszillator und dem Schwebungssignal konstant gehalten, d.h. die Frequenz des Schwebungsignals wird auf die Frequenz des Lokaloszillators stabilisiert[1]. Durch die Phasenregelung wird sichergestellt, dass Störungen, die zum Beispiel zu einem bestimmten Zeitpunkt zu einer erhöhten Frequenz führen würden, zu einem späteren Zeitpunkt durch eine etwas niedrigere Frequenz ausgeglichen werden. Für eine Phasenregelung wird ein Phasendetektor benötigt, der idealerweise eine Spannung erzeugt, die proportional zur Phasendifferenz der Eingangssignale (Schwebungssignal und Lokaloszillator) ist. Die Ausgangsspannung des Phasendetektors wird dann mit Hilfe einer Regelschleife verwendet, um die Frequenz eines der zum Schwebungssignal beitragenden Oszillatoren zu regeln. Diese Technik funktioniert nicht nur für die Laser in der Frequenzkette, sondern auch für alle anderen Oszillatoren im Radiofrequenzbereich, für die sie ursprünglich erfunden wurde. Phasenregelkreise sind seit langem Standard in der Radiofrequenztechnik, so dass auf eine umfangreiche Literatur (siehe zum Beispiel Referenz [49]), die sich auch auf optische Phasenregelkreise anwenden lässt, zurückgegriffen werden kann. Mit dem eingeschalteten Phasenregelkreis kann zu jedem Zeitpunkt die relative Phase zwischen den beiden Oszillatoren (Lasern), die das Schwebungssignal erzeugen, angegeben werden.

Als einfachster Phasendetektor werden Mischer verwendet, die eine Spannung proportional zum Produkt der beiden Eingangsspannungen erzeugen. Besitzen die Eingangssignale eine sinusförmige Zeitabhängigkeit, so erzeugt der Mischer Signale bei der Summen- und der Differenzfrequenz der Eingangssignale. Nach einem Tiefpassfilter erhält man für kleine Phasenabweichungen $\Delta\varphi \ll 2\pi$ zwischen dem Schwebungssignal und dem Lokaloszillator ($\sin(\Delta\varphi) \approx \Delta\varphi$) eine Spannung die proportional zu $\Delta\varphi$ ist.

Ein Phasendetektor, der größere Phasenabweichungen zulässt, kann mit einem digitalen Vorwärts- Rückwärtszähler realisiert werden. Dieser besteht aus einem Zählerbaustein, dessen Speicherinhalt durch jeden Puls an einem der zwei Eingänge um jeweils eine Einheit erhöht bzw. verringert wird. Der Inhalt des Zählerbausteins ist demnach konstant, falls es in einem gegebenen Zeitintervall genauso viele Pulse an beiden Eingängen gibt. Ein Digital zu Analog Wandler und ein Tiefpassfilter, der über die schnellen Schaltvorgänge des Zählerbausteins mittelt, erzeugt dann eine Spannung, die der Phase zwischen dem Schwebungssignal und dem Lokaloszillator proportional ist. Ein solcher Phasendetektor wurde von Marco Prevedelli in unserem Labor entwickelt [50] und bei fast allen hier

[1] Man könnte auch versuchen, die Phase des Schwebungssignals konstant zu halten, also das Schwebungssignal auf 0 Hz regeln. Diese Methode arbeitet jedoch bei weitem nicht so zuverlässig, weil die Schwebungssignale bei niedrigen Frequenzen meistens zu stark rauschen.

beschriebenen Experimenten eingesetzt. Wegen des großen Detektionsbereichs, der nur durch die Anzahl der Bits im Zählerbaustein begrenzt ist, arbeitet dieser Phasendetektor äußerst zuverlässig und benötigt nur eine relativ kleine Regelbandbreite zum Nachstellen des Schwebungssignals. Der Nachteil dieser Methode sind die relativ großen Restphasenfehler, die einige Zyklen betragen können. Für optische Frequenzmessungen spielt dies jedoch meistens keine Rolle: Bei einer Frequenz von 3×10^{14} Hz ergibt eine Restphasenfluktuation von zum Beispiel einem Zyklus eine relative Unsicherheit von nur 3×10^{-15} für eine Messzeit von einer Sekunde. Weil sich Phasenfluktuationen bei eingeschalteter Regelung zu Null mitteln, verringert sich diese Unsicherheit umgekehrt proportional zur Messzeit, so dass bereits nach drei Sekunden eine Genauigkeit ergibt, wie sie nur von den derzeit besten Atomuhren [51] erreicht wird, die dafür allerdings etwa eine Stunde Mittelungszeit benötigen[2]. Diese Tatsache ist der intrinsische Grund für die hohe Präzision, die sich mit einer Phasenregelung, im Gegensatz zu einer Frequenzregelung, erzielen lässt.

Anstelle eines optischen Phasenregelkreises können die Phasenabweichungen zwischen den Oszillatoren auch zu jedem Zeitpunkt gemessen werden. Um die Datenmenge gering zu halten wird dafür gewöhnlich ein elektronischer Zähler verwendet, wie dies in der Abbildung 2.1 an mehreren Stellen angedeutet ist. Auch auf diese Weise lässt sich zu jedem Zeitpunkt der Frequenzabstand zwischen zwei Oszillatoren angeben.

2.3 Messung der Phasenstabilität

Wie bei jeder anderen Regelung auch, kann aus einem funktionierenden Phasenregelkreis nicht geschlossen werden, dass die beiden Phasen, die geregelte und die Referenzphase des Lokaloszillators, identisch sind. Vielmehr gibt es bei geschlossener Regelschleife im Allgemeinen Fluktuationen, die schneller als die verwendete Regelbandbreite des Phasenregelkreises sind. Dies kann bei Verwendung eines digitalen Vorwärts- Rückwärtszählers, wie bereits erläutert, besonders ausgeprägt sein. Im diesen Sinne sind zwei Frequenzen genau dann phasenstabilisiert, wenn sie für sehr lange Zeiten die gleiche Anzahl von Zyklen haben.

Um die Stabilität zweier Signale gegeneinander zu charakterisieren gibt es im Prinzip mehrere Möglichkeiten, wie die rms-Fluktuation oder die Standardabweichung vom Mittelwert. Diese haben jedoch das Problem, dass sie konstante Driften nicht berücksichtigen können, ihre Werte divergieren. Dies kann zwar, per Definition bei einer Phasenregelung, nicht der Fall sein, sehr wohl aber beim Vergleich der Frequenzen zweier Oszillatoren. Deswegen beschreibt man Instabilitäten gewöhnlich mit der so genannten Allan-Instabilität [52] $\sigma_y(\tau)$. Diese divergiert für keine der technisch auftretenden Rauschsorten

[2] Dies gilt für die derzeit stabilste Cäsiumuhr [51].

und lässt sich universell auch auf jede andere zeitabhängige physikalische Größe anwenden. Die Allen-Instabilität gemittelt über die Zeit τ ist durch

$$\sigma_y^2(\tau) = \frac{1}{M-1} \sum_{k=1}^{M-1} \frac{(y_{k+1} - y_k)^2}{2} \tag{2.2}$$

definiert, wobei y die Größe ist, deren Allan-Instabilität gemessen werden soll und y_k der k-te, über τ gemittelte Messwert einer M Werte umfassenden Messreihe ist. Mathematisch ist die Allan-Instabilität der Mittelwert der Standardabweichungen zweier jeweils benachbarter Werte y_k. Falls die Frequenzstabilität zweier Oszillatoren gegeneinander gemessen werden soll, so können als y_k die Ablesewerte eines Zählers, der die Schwebungsfrequenz zwischen den Oszillatoren misst, verwendet werden. Die Mittelungszeit τ ist dabei einfach die Torzeit des Zählers.

Eine weitere wichtige Kenngröße für Phasenregelkreise ist das Signal-zu-Rausch-Verhältnis des Schwebungssignals (vergleiche Kapitel 4.1). Diese ist meistens durch das Schrotrauschen des Laserlichts begrenzt. Für einen gegebenen Phasendetektor und ein gegebenes Signal-zu-Rausch-Verhältnis lässt sich die mittlere Zeit zwischen zwei "cycle slip" Ereignissen berechnen, bei denen der Phasendetektor an die Grenze seines Detektionsbereichs stößt und eine oder mehrere Zyklen übersprungen oder ausgelassen werden [53]. Da bereits bei relativ kleinem Signal-zu-Rausch-Verhältnis diese Zeitspanne, die sich aus dem Schrotrauschen des Laserlichts berechnet, sehr lang sein kann, ist die in der Praxis zu erreichende Zeit zwischen zwei "cycle slip" Ereignissen durch technisches Rauschen (Störsignale etc.) beschränkt. Im Gegensatz zu einer anderen Arbeit [54] finden wir mit unseren Phasenregelkreisen, dass "cycle slips" in bestimmten Fällen nahezu ausschließlich dasselbe Vorzeichen besitzen. Es ist also nicht davon auszugehen, dass diese sich für lange Messzeiten heraus mitteln.

Um die höchste Präzision der Phasenregelkreise zu erreichen hat es sich daher bewährt, die "cycle slip" Ereignisse zu detektieren und die betreffenden Daten zu verwerfen [55, 3][3]. Als Detektionsmechanismus für "cycle slips" haben wir redundante Phasenmessungen verwendet. Diese kann zum Beispiel ein gleichzeitig zum Phasenregelkreis mitlaufender Radiofrequenzzähler sein. Zeigt dieser eine vom Lokaloszillator verschiedene Frequenz an, so hat entweder der Zähler oder der Phasenregelkreis einen Fehler gemacht. Der Messpunkt ist in diesem Fall zu verwerfen. Die gleiche Methode funktioniert auch mit zwei parallel arbeitenden Zählern. Wichtig ist in beiden Fällen, dass die redundanten Systeme möglichst unterschiedlich arbeiten, zum Beispiel eine andere Bandbreite verwenden, um die Wahrscheinlichkeit, dass diese den *gleichen* Fehler *gleichzeitig* machen, zu minimieren.

[3] Eine nachträgliche Korrektur der Daten erweist sich als problematisch, weil die Phasenregelung während des "cycle slips" hochgradig chaotisch reagiert und daher meistens nicht nur ein Zyklus verloren geht.

Denn nur so kann ein "cycle slip" Ereignis fälschlicherweise zu den auszuwertenden Daten gerechnet werden. Andererseits interpretiert diese Methode fälschlicherweise einige der Messpunkte als "cycle slips". Dies ändert jedoch nichts am Ergebnis, sondern verschlechtert lediglich die Statistik, macht also eine längere Gesamtmesszeit notwendig.

2.4 Elektrooptische Frequenzkämme

Größere Frequenzintervalle kann man seit Anfang der 90er Jahre mit optischen Frequenzkämmen messen. Die Abbildung 2.2 skizziert die Methode. Ein idealer optischer Frequenzkamm besteht aus möglichst vielen Moden, die einen möglichst konstanten Abstand zueinander haben. Dieser Kamm lässt sich dann wie ein Lineal im Frequenzraum verwenden, um große Frequenzlücken zu messen. Dies geschieht, indem man Schwebungssignale zwischen zwei Dauerstrich oder CW-Laser ("continous wave"), die die Lücke aufspannen, und den benachbarten Moden des Frequenzkamms erzeugt. Die Frequenzlücke ergibt sich aus der Summe der beiden Schwebungsfrequenzen und einem ganzzahligen Vielfachen des Modenabstands. Kennt man die Frequenzen der beiden Dauerstrich-Laser schon besser als einen Modenabstand, zum Beispiel durch die grobe Wellenlängenmessung, dann lässt sich die Anzahl der Moden in der Frequenzlücke daraus eindeutig bestimmen.

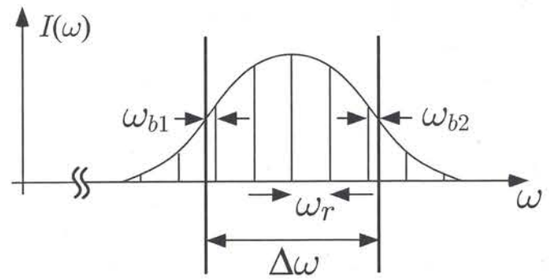


Abbildung 2.2: *Eine große optische Frequenzlücke kann mit einem Frequenzkamm vermessen werden, indem man die Anzahl der Moden n in der Lücke mit dem Modenabstand ω_r multipliziert, und die Schwebungsfrequenzen ω_{b1} und ω_{b2} mit den die Lücke aufspannenden Lasern bestimmt: $\Delta\omega = n\omega_r + \omega_{b1} + \omega_{b2}$. Wichtig ist hierbei, dass die Moden, von denen hier der Klarheit wegen nur einige gezeigt sind, möglichst äquidistant im Frequenzraum sind.*

In den 90er Jahren wurden die größten Frequenzintervalle von einigen THz mit sehr schnellen und effizienten elektro-optische Modulatoren, also Kristallen, deren Brechungsindex von einem angelegten Radiofrequenzfeld abhängt, überbrückt. Durch Phasenmodulation

mit dem Frequenzhub ω_h werden dabei Frequenzseitenbänder im Abstand von Vielfachen der verwendeten Modulationsfrequenz ω_m einem Dauerstrich-Laser mit der Trägerfrequenz ω_c aufgeprägt

$$E_o \cos\left(\omega_c t + M \sin(\omega_m t)\right) = E_o \sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_n(M) \cos(\omega_c t + n\omega_m t) \tag{2.3}$$

wobei $J_n(M)$ die n-te Besselfunktion und $M = \omega_h/\omega_m$ der Modulationsindex ist. Die momentane Frequenz ergibt sich aus der Zeitableitung der Phase $\omega_c + \omega_h \sin(\omega_m t)$, wodurch die Bedeutung des Frequenzhubs klar wird. Bis auf $J_o(M = 0) = 1$ verschwinden alle Besselfunktionen bei $M = 0$, und der Modulationsindex gibt in etwa an, wie viele Seitenbänder auf jeder Seite des Trägers entstehen. Um einen möglichst breiten Frequenzkamm durch diese Phasenmodulation zu erzeugen, mussten also Modulatoren mit großem Modenabstand ω_m und/oder großem Modulationsindex entwickelt werden. Der erste in Garching eingesetzte Modulator dieser Art hatte nur einen sehr kleinen Modulationsindex und hat deswegen nur ein blaues und ein rotes Seitenband erzeugt, die aber um 84 GHz vom Träger entfernt waren [56]. Mit diesem ist eine genaue Messung der Isotopieverschiebung der $1S - 2S$-Übergangsfrequenz in atomarem Wasserstoff gelungen. Bei späteren Versionen solcher Modulatoren sind die erzeugten Seitenbänder, durch einen zusätzlichen optischen Resonator, resonant überhöht worden [57]. Dazu ist es notwendig, dass die Modulation bei jedem Durchlauf des modulierten Lichts mit der richtigen Phase vorgenommen wird, damit sich ihre Wirkung aufsummiert. Weil sich die einer Lichtwelle aufgeprägte Modulation mit der Gruppengeschwindigkeit v_g durch den Kristall bewegt, ist diese Bedingung erfüllt, wenn sich die Phase des elektrischen Feldes der Mikrowelle nach einer Gruppenumlaufzeit um ein ganzzahliges Vielfaches von 2π geändert hat. Die erreichten Breiten solcher Frequenzkämme lagen im Bereich von etwa 4 THz [57]. Der begrenzende Faktor ist die Anpassung der Gruppengeschwindigkeit, die über einen großen Spektralbereich nicht konstant ist (Gruppengeschwindigkeitsdispersion GVD) und die dadurch bedingte inkohärente Überlagerung aufeinander folgender Modulationszyklen. Die Folge ist ein abruptes Abbrechen des Kamms bei einer bestimmten spektralen Breite, die durch die GVD des Kristalls bedingt ist [57]. Diese Limitierung wurde in der Folge durch eine Kompensation der GVD überwunden [58]. Eine andere Methode war, den Modulator statt als Phasenmodulator als Amplitudenmodulator zu betreiben. Die erzeugten Pulse wurden dann einem optischen Verstärker zugeführt und anschließend in einer Glasfaser, deren GVD weitgehend kompensiert war, durch Selbstphasenmodulation (SPM) spektral verbreitert. Mit dieser Methode konnten die Frequenzkämme von bis zu 30 THz [59] erzeugt werden. Außerdem wurde mit aktiven Kammgeneratoren experimentiert [60]. Die Kombination Pulsbetrieb, optische Verstärkung, GVD-Kompensation und spektrale Verbreiterung durch SPM ist in einem modengekoppelten Laser bereits ideal kombiniert, wie in Kapitel 3 gezeigt wird.

2.5 Intervallteilerketten

Bereits Ende der 80er Jahre kam die Idee für eine konzeptionell ganz anders geartete Frequenzkette auf [61], für die sich die Frequenzkämme als extrem nützlich erweisen sollten, weil durch sie die Messung einer absoluten optischen Frequenz ω auf das Messen einer Frequenzdifferenz reduziert wird. Man stelle sich vor, statt ω den Abstand zwischen dieser Frequenz und seiner eigenen Harmonischen 2ω zu messen. Wegen $2\omega - \omega = \omega$ ist die Größe dieser Lücke identisch mit der zu messenden Frequenz. Um Frequenzlücken von einigen 100 THz messbar zu machen, wurden so genannte Intervallteilerstufen vorgeschlagen [61, 62]. Bei einer optischen Intervallteilerstufe wird die Summenfrequenz zweier Eingangslaser bei der Frequenz $\omega_1 + \omega_2$ in einem nichtlinearen Kristall erzeugt. Die zweite Harmonische eines dritten Lasers $2\omega_3$ wird auf diese phasenstabilisiert, so dass auch die Frequenzen identisch sind, also $2\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ oder $\omega_3 = (\omega_1 + \omega_2)/2$ gilt. Damit oszilliert der dritte Laser (ω_3) genau in der Mitte des Frequenzintervalls, das von den ersten beiden Lasern aufgespannt wird (ω_1 und ω_2) und teilt somit dieses Intervall in zwei gleiche Teile.

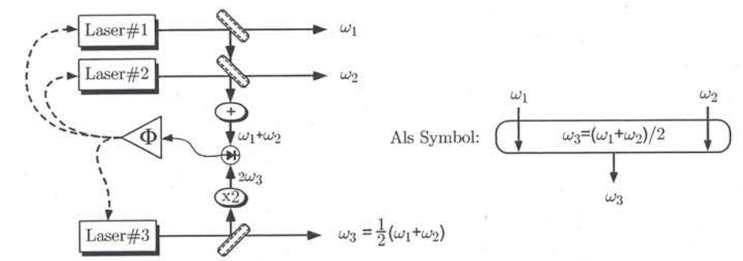


Abbildung 2.3: *Prinzip des optischen Intervallteilers: Mit Hilfe eines Phasenregelkreises (siehe Abschnitt 2.1) wird einer der Laser so stabilisiert, dass die Summenfrequenz der ersten beiden Laser $\omega_1 + \omega_2$ gleich der zweiten Harmonischen des dritten $2\omega_3$ wird. Dann gilt $\omega_3 = (\omega_1 + \omega_2)/2$, das heißt ω_3 ist das arithmetische Mittel der Frequenzen der anderen beiden Laser und halbiert somit das Frequenzintervall $\Delta\omega = \omega_2 - \omega_1$.*

Eine Kette von n solcher Intervallteilerstufen reduziert die ursprüngliche Frequenzlücke um einen Faktor 2^n, so dass so der Orginalvorschlag 16 Intervallteilerstufen ausreichen würden um 486 nm auf die 9, 2 GHz einer Cäsiumuhr zurück zu führen. Nun ist eine Kette von 16 Intervallteilern auf den ersten Blick nicht weniger komplex als eine harmonische Frequenzkette mit zum Beispiel 16 Frequenzverdoppelungen. Hier ist aber zu bedenken, dass alle Laserfrequenzen innerhalb einer optischen Oktave liegen, so dass im Wesentlichen dieselbe Technik für alle Teilerstufen zum Einsatz kommen kann (zum Beispiel ausschließlich Diodenlaser). Eine solche Kette mit 4 Intervallteilerstufen wurde erstmals

in unserem Labor in Garching realisiert und zur Bestimmung der in Abbildung 2.1 dargestellten Frequenzlücke von $\Delta f \approx 1$ THz verwendet [29, 41]. Zusammen mit den damals besten Frequenzkammgeneratoren reduzierte sich die Anzahl der zur Bestimmung einer optischen Frequenz notwendigen Teilerstufen auf etwa vier oder fünf, so dass in einigen Labors die Arbeiten an verschiedenen Varianten von Teilerstufenketten begonnen wurden [29, 63, 64]. Auch in unserem Labor wurde mit der Arbeit an der in Abbildung 2.4 dargestellten Variante begonnen. Im Gegensatz zu den harmonischen Frequenzketten konnten hier die Wellenlängen der Laser in bestimmten Grenzen gewählt werden. Bei der Auswahl wurde darauf geachtet, dass ausschließlich kompakte Laserdioden zum Einsatz kommen würden und effiziente Kristalle für die notwendigen nichtlinearen Prozesse zur Verfügung stehen. Außerdem wurden, in Anlehnung an den ursprünglichen Vorschlag von T.W.Hänsch [61], möglichst Wellenlängen verwendet, die nahe an Übergangsfrequenzen im Wasserstoffatom sind. So lässt sich mit dem 972 nm Laser der $2S - 4S$ zwei Photonen Übergang anregen. Außerdem kann mit den zweiten Harmonischen der 1555 nm und 1481 nm Laser und der vierten Harmonischen des 972 nm Lasers die $2S - 8S$, $2S - 16S$ und der $1S - 2S$-Übergang angeregt werden. Parallel zu den Bemühungen verschiedene Varianten von Intervallteilerketten zu realisieren, wurde versucht, die größte direkt messbare Frequenzlücke weiter zu erhöhen, d.h. die Frequenzkämme breiter zu machen. Mit jedem Faktor 2, der gewonnen werden konnte, sparte man eine potentielle Intervallteilerstufe ein. Interessanterweise wuchs die größte messbare Frequenzlücke schneller als die Arbeiten an den Teilerstufenketten vorangingen.

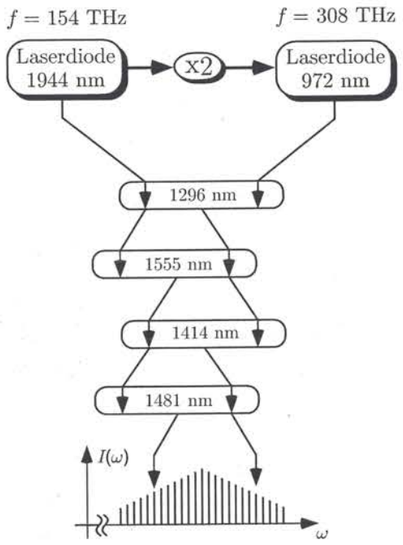


Abbildung 2.4: *Eine Intervallteilerstufenkette an der in unserem Labor gearbeitet wurde. Eine Laserdiode bei* 1944 *nm* ($\omega = 154$ *THz) wird zu* $2\omega = 308$ *THz (*972 *nm frequenzverdoppelt. Die Frequenzlücke* $2\omega - \omega$ *sollte mit einer Kette von Intervallteilerstufen auf* 19,25 *THz reduziert werden, um sie einer direkten Messung mit einem elektrooptischen Kammgenerator zugänglich zu machen.*

3. Modengekoppelte Laser als Kammgeneratoren

Die Strategie zur Erzeugung der bislang breitesten Frequenzkämme aus Kammgeneratoren unter Verwendung von optischen Verstärkern und der Selbstphasenmodulation, ist bei einem modengekoppelten Laser bereits auf ideale Weise kombiniert. In einem solchen Laser addieren sich die longitudinalen Moden, so dass sich ein kurzer Puls ergibt. Dieser Puls läuft zwischen den Endspiegeln des Laserresonators umher und man erhält nach jedem Umlauf eine Kopie des Pulses am Auskoppelspiegel. Das Spektrum eines Moden gekoppelten Lasers besteht demnach aus einem Kamm von Laserfrequenzen, die mit den aktiven Moden identifiziert werden können. Das Anfang der 90er Jahre erfundene Verfahren der Kerr-Linsen Modenkoppelung ermöglicht mit einem Titan-Saphir-Kristall als Lasermedium und resonatorinterner Kompensation der Gruppengeschwindigkeitsdispersion auf recht einfache Weise die Erzeugung von Pulsen von nur wenigen Femtosekunden Dauer.

Im kalten Laserresonator sind wegen der Dispersion im Lasermedium und den restlichen optischen Komponenten wie Spiegeln die Moden nicht äquidsitant im Frequenzraum angeordnet, wie dies für präzise Frequenzmessungen gefordert ist. Wie gleich gezeigt werden soll, ordnet jedoch der Prozess des Modenkoppelns die Moden streng periodisch, also mit gleichem Abstand auf der Frequenzachse an.

3.1 Ableitung des Modenkamms aus den Resonator-Randbedingungen

Die Moden eines Lasers müssen den Randbedingungen des Resonators mit der Länge L genügen:

$$2k(\omega_n)L = n2\pi + \Delta\Phi_n \tag{3.1}$$

Hierbei ist n eine große ganze Zahl, die in dieser Formel die Anzahl der Halbwellen im Resonator angibt. Außerdem ist $\Delta\Phi_n$ eine zusätzliche Phasenverschiebung, die durch Beugung (Guoy Phase) und durch die dielektrischen Schichten der Resonatorspiegel verursacht wird und möglicherweise von der Wellenlänge, also von n, abhängt. Diese Phasenverschiebung ist in der Praxis schwer zu bestimmen. Sie führt dazu, dass die Frequenzen der

Lasermoden ω_n nicht einfach ein ganzzahliges Vielfaches des so genannten "freier Spektralbereichs" $2\pi c/2Ln_b(\omega_n)$ sind:

$$\omega_n = (2\pi n + \Delta\Phi_n)\frac{c}{2Ln_b(\omega_n)} \tag{3.2}$$

Diese Größe ist, nicht zuletzt wegen ihrer Wellenlängenabhängigkeit, für Präzisionsanwendungen ungeeignet und wird daher im Folgenden vermieden.

Um den Abstand zwischen benachbarten Moden unter Berücksichtigung der Dispersion genauer zu untersuchen, ist die folgende Entwicklung des Wellenzahlvektors um eine zentrale Mode m nützlich:

$$2L\left[k(\omega_m) + k'(\omega_m)(\omega_n - \omega_m) + \frac{k''(\omega_m)}{2}(\omega_n - \omega_m)^2 + ...\right] = 2\pi n + \Delta\Phi_n \tag{3.3}$$

Den Modenabstand $\omega_r \equiv \omega_{n+1} - \omega_n$ erhält man, indem diese Gleichung für n von derselben Gleichung für $n+1$ abgezogen wird:

$$k'(\omega_m)\omega_r + \frac{k''(\omega_m)}{2}\left((\omega_{n+1} - \omega_m)^2 - (\omega_n - \omega_m)^2\right) + ... = 2\pi/2L + \Delta\Phi_{n+1} - \Delta\Phi_n \tag{3.4}$$

Einen konstanten Modenabstand, wie bei den Kammgeneratoren, erhält man, falls dieser Ausdruck, nach ω_r aufgelöst, unabhängig von n ist. Dies ist der Fall, falls alle Beiträge in der Entwicklung von $k(\omega)$, bis auf den konstanten Term $k(\omega_m)$ und den Gruppengeschwindigkeits Term $v_g^{-1} = k'(\omega_m)$, exakt verschwinden. Außerdem darf die Differenz $\Delta\Phi_{n+1} - \Delta\Phi_n$ nicht von n abhängen. Die zentrale Aussage ist nun, dass die Terme, die einen nicht äquidistanten Frequenzkamm bewirken würden, dieselben sind, die auch einen gespeicherten Puls verformen bzw. zerfließen lassen. Wobei eine im Vergleich zu den optischen Frequenzen winzige Unregelmäßigkeit, von zum Beispiel 1 Hz, den Puls bereits nach etwa 1 sec zerstören sollte. Die Beobachtung einer konstanten Pulseinhüllenden ist daher ein experimentelles Indiz für das Verschwinden dieser Terme. Der Modenabstand $\omega_r = 2\pi v_g/2L$ ergibt sich sehr anschaulich aus der inversen Pulsumlaufzeit $T^{-1} = v_g/2L = \omega_r/2\pi$ und ist somit identisch mit der Pulswiederholrate[1]. Diese ist experimentell äußerst leicht zugänglich. Die Willkür bei der Wahl von ω_m verschwindet, wenn man statt $v_g^{-1} = k'(\omega_m)$ zu berechnen, einen experimentellen Wert für ω_r verwendet.

Im Experiment beobachtet man auch nach Stunden kein Zerfließen eines einmal gespeicherten Pulses. Dieses Wellenpaket hat also Soliton-Eigenschaften. Offensichtlich zieht das Verkoppeln der Moden zu einem Puls die nicht ganz regelmäßig angeordneten Moden

[1]Der freie Spektralbereich ist in fast allen Lehrbüchern als die inverse Phasenumlaufzeit $v_p/2L$ mit $v_p = c/n_b(\omega)$ anstelle der inversen Gruppenumlaufzeit $v_g/2L$ definiert und berücksichtigt daher nicht die Dispersion.

des kalten Laserresonators auf ein streng periodisches Gitter im Frequenzraum. Dadurch ergibt sich eine weitere, schwer zu kontrollierende Frequenzverschiebung [65] in Gl. (3.2), die verschieden ausfällt, je nachdem, wie die Irregularitäten ausgeglichen werden. Daher schreiben wir allgemeiner statt Gl. (3.2)

$$\boxed{\omega_n = n\omega_r + \omega_{CE}} \tag{3.5}$$

mit einem zunächst unbekannten Frequenzoffset ω_{CE}. Die Moden wollen wir so nummerieren, dass $0 \leq \omega_{CE} \leq \omega_r$ gilt. Die Kernaussage von Gl. (3.5) ist, dass alle Moden den gleichen Abstand zu ihren nächsten Nachbarn haben (n ist eine ganze Zahl), und dass dieser Abstand durch die leicht zu messende Pulswiederholrate gegeben ist. Des weiteren ist der sich so ergebende Frequenzkamm um ω_{CE} gegen die Harmonischen der Pulswiederholrate verschoben. Wie im Folgenden gezeigt werden soll, ist dies alles, was für den Einsatz in der Frequenzmetrologie benötigt wird. Für hochpräzise Anwendungen ist es daher notwendig, diese Eigenschaften experimentell so genau wie möglich zu verifizieren (siehe Kapitel 4).

3.2 Ableitung des Modenkamms aus dem Pulszug

Die äquidistante Kammstruktur lässt sich auch unabhängig von ihrer Erzeugung verstehen, wenn man annimmt, dass die (komplexe) Pulseinhüllende $A(t)$ streng periodisch ist und die Pulswiederholrate $\omega_r = 2\pi/T$ durch $A(t) = A(t-T)$ definiert ist. Weiterhin nehmen wir an, dass sich das elektrische Feld $E(t)$, gemessen zum Beispiel am Auskoppelspiegel, als Produkt aus Pulseinhüllende $A(t)$ und Trägerwelle $C(t)$ schreiben lässt.

$$E(t) = A(t)C(t) + c.c. \tag{3.6}$$

Innerhalb des Laserresonators verschiebt sich die Einhüllende gegen die Trägerwelle mit jedem Umlauf um einen bestimmten Betrag, weil sich erstere mit der Gruppengeschwindigkeit der Einhüllenden und letztere mit der Phasengeschwindigkeit der Trägerwelle bewegt. Das elektrische Feld $E(t)$ ist demnach nicht streng periodisch mit T. Um das durch den Pulszug erzeugte Spektrum zu bestimmen, muss das folgende Fourier-Integral berechnet werden:

$$\tilde{E}(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{+\infty} E(t)e^{-i\omega t}dt \tag{3.7}$$

Separate Fourier Transformationen von $A(t)$ und $C(t)$ sind durch

$$\tilde{A}(\omega) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \delta(\omega - m\omega_r)\,\tilde{A}_m \tag{3.8}$$

$$\tilde{C}(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{+\infty} C(t)e^{-i\omega t}dt \tag{3.9}$$

gegeben, wobei $\tilde{A}_m$ die Koeffizienten der Fourier-Reihe sind, wie es sie nur für eine streng periodische Funktion geben kann.

Eine zeitliche Variation der instantanen Frequenz während des Pulses, ein so genannter "chirp", kann durch eine komplexwertige Einhüllende berücksichtigt werden. Dieser "chirp" kann eine beliebige Zeitabhängigkeit aufweisen, solange er periodisch mit der Pulswiederholrate ist. Ein nicht periodischer "chirp" würde entweder für große Zeiten divergieren und damit beliebig große oder kleine Frequenzkomponenten erzeugen, oder aber sich als Rauschen der Kamm-Offsetfrequenz ω_{CE} bemerkbar machen. Während der erste Fall physikalisch unsinnig erscheint, kann man im zweiten Fall ω_{CE} stabilisieren, wie im Kapitel 7.3 gezeigt wird. Es ist also vernünftig, die strenge Periodizität der Einhüllenden auch für einen "gechirpten" Pulszug anzunehmen.

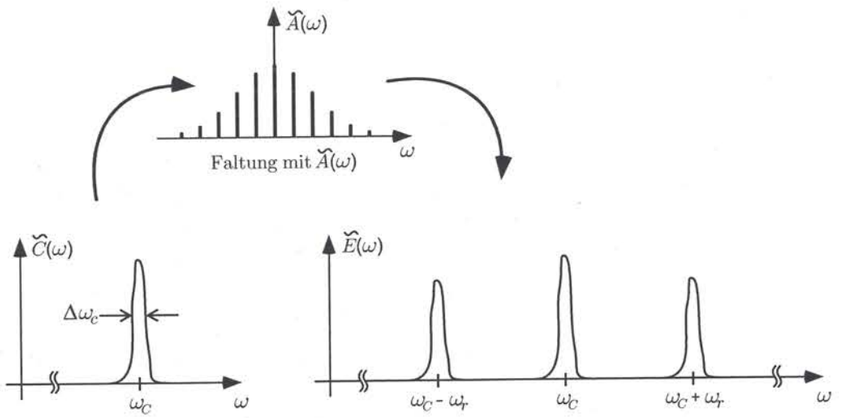


Abbildung 3.1: *Ist das Spektrum der Trägerwelle bei ω_c (links) sehr viel schmaler als die Pulswiederholrate $\Delta\omega_c \ll \omega_r$ so ergibt die Faltung mit dem Spektrum der Einhüllenden (oben) nach Gl. (3.10) die Kammstruktur auf der rechten Seite.*

Mit dem Faltungstheorem ergibt sich die Fourier Transformierte von $E(t)$ aus den Fourier Tranformierten von $A(t)$ und $C(t)$:

$$\begin{aligned} \tilde{E}(\omega) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{A}(\omega')\tilde{C}(\omega-\omega')d\omega' + c.c. \\ &= \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \tilde{A}_m \tilde{C}\left(\omega - m\omega_r\right) + c.c. \end{aligned} \tag{3.10}$$

Diese Summe repräsentiert ein periodisches Spektrum. Falls die spektrale Breite der Trägerwelle $\Delta\omega_c$ sehr viel kleiner als die Pulswiederholrate ist, ergibt sich ein Modenkamm aus identischen Spektrallinien um die Trägerfrequenz ω_c, wie die Abbildung 3.1 zeigt. Weil die Frequenz der Trägerwelle kein ganzzahliges Vielfaches der Pulswiederholfrequenz zu sein braucht, ergibt sich dieselbe Struktur wie bereits durch Gl. (3.5) beschrieben.

3.3 Pulszug mit konstanter Trägerfrequenz

Ein einfaches Beispiel für einen Pulszug, der eine anschauliche Deutung der Kamm-Offsetfrequenz in Gl. (3.5) erlaubt, besteht aus einer monochromatischen Trägerwelle $C(t) = e^{i\omega_c t}$ mit einer delta-Funktion als Spektrum $\tilde{C}(\omega) = \sqrt{2\pi}\delta(\omega - \omega_c)$ und einer reellen Einhüllenden $A(t)$. Die Fourier Transformierte des elektrischen Feldes aus Gl. (3.6) lässt sich in diesem Fall direkt angeben:

$$E(t) = A(t)e^{i\omega_c t} + c.c. = \sum_m \tilde{A}_m e^{i(m\omega_r + \omega_c)t} + c.c. \tag{3.11}$$

Die Trägerfrequenz ω_c stellt demnach die zentrale Frequenz des Modenkamms dar, dessen Breite in etwa durch die inverse Pulsdauer gegeben ist. Man kann dies als eine durch die Einhüllende modulierte Trägerwelle verstehen, die dadurch Seitenbänder aufgeprägt bekommt. Die Summe enthält die gleichen Frequenzen $\omega_m = m\omega_r + \omega_c$ wie in Gl. (3.5), lediglich mit anderer Nummerierung. Für dieses einfache Beispiel hat die Kamm-Offsetfrequenz ω_{CE} eine einfache Interpretation. Wie die Abbildung 3.2 anhand einer Gauß-förmigen[2] Einhüllenden zeigt, schlüpft die Trägerphase nach jedem Resonatorumlauf gegen die Einhüllende um einen Winkel $\Delta\varphi$. Dieser Effekt wurde zuerst in meiner Doktorarbeit [29] beschrieben und dort als Schlupffrequenz bezeichnet. Später wurde die Bezeichnung "carrier-envelope offset" Frequenz, oder CE-Frequenz, eingeführt [66]. Der aus $\Delta\varphi = \arg(C(t+T)) - \arg(C(t)) = \omega_c T$ berechnete CE-Phasenschlupf ist für einen realen Laser sehr viel größer als 2π. Die Einschränkung $0 \leq \Delta\varphi \leq 2\pi$, welche gleichbedeutend mit der Umnummerierung der Moden so wie in Gl. (3.5) ist, ergibt das anschauliche Bild aus Abbildung 3.2. Bei einem "ungechirpten" Pulszug ergibt sich demnach ein Puls-zu-Puls CE-Phasenschlupf von:

$$\Delta\varphi = \omega_{CE} T = 2\pi \frac{\omega_{CE}}{\omega_r} \tag{3.12}$$

[2]Streng genommen kann die Pulseinhüllende nicht perfekt Gauß-förmig sein, weil diese unendlich weit reicht, sich also mit allen anderen Pulsen überlagert. In der Näherung, dass die Pulslänge τ in $A(t) = E_o e^{-t^2/2\tau^2}$ sehr viel kürzer als die Pulswiederholzeit ist, ergibt sich ein Gauß-förmiger Frequenzkamm: $\tilde{A}_m = \tau E_o e^{-(m\omega_r)^2\tau^2/2}$ mit der inversen Pulsdauer als Breite im Frequenzraum.

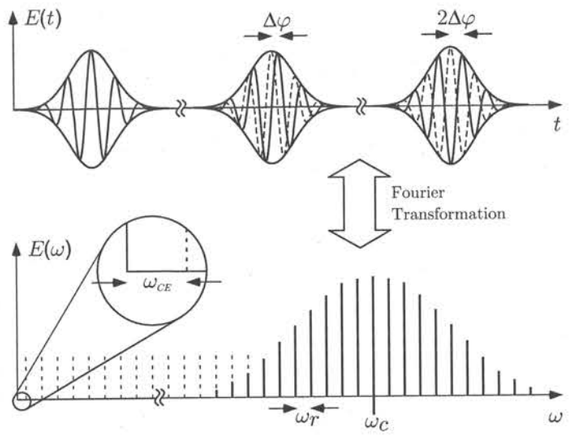


Abbildung 3.2: *Der obere Teil zeigt drei aufeinander folgende "ungechirpte" ($A(t)$ real) Pulse eines Pulszugs. Weil innerhalb des erzeugenden Laserresonators die Trägerwelle mit ihrer Phasengeschwindigkeit und die Einhüllende mit ihrer Gruppengeschwindigkeit propagiert, verschieben diese sich pro Umlauf um eine Phase $\Delta\varphi$ gegeneinander. Der Puls-zu-Puls "carrier-envelope" Phasenschlupf, der außerhalb des Resonators trotz Dispersion konstant bleibt, resultiert in einem Frequenzoffset von $\omega_{CE} = \Delta\varphi/T$. Der untere Teil der Abbildung zeigt das Spektrum eines unendlich langen Pulszuges mit einem Puls-zu-Puls CE-Phasenschlupf von $\Delta\varphi$. Man erkennt das bei der Extrapolation des Modenkamms (gestrichelte Moden) der Nullpunkt der Frequenzachse um ω_{CE} verfehlt wird.*

Eine weitere Möglichkeit, den CE-Phasenschlupf anzugeben, geht von der Zeitdifferenz ΔT zwischen den Umlaufzeiten der Trägerwelle und der Pulseinhüllenden aus. Letztere berechnet sich aus der Differenz der Phasengeschwindigkeit $v_{ph} = c/n_b(\omega_c)$ und der Gruppengeschwindigkeit:

$$v_g(\omega_c) = \left.\frac{\partial\omega}{\partial k(\omega)}\right|_{\omega_c} = \frac{c}{n_b(\omega_c) + \omega_c \left.\frac{\partial n_b(\omega)}{\partial\omega}\right|_{\omega_c}} \tag{3.13}$$

Multipliziert man diesen Zeitunterschied mit der Trägerfrequenz, so ergibt sich der CE-Phasenschlupf[3]:

$$\Delta\varphi = \omega_c \Delta T = \omega_c \left(\frac{L}{v_g(\omega_c)} - \frac{L}{v_{ph}}\right) = \frac{\omega_c^2 L}{c} \left.\frac{\partial n_b(\omega)}{\partial\omega}\right|_{\omega_c} = -2\pi L \left.\frac{\partial n_b(\omega)}{\partial\lambda}\right|_{\lambda_c} \tag{3.14}$$

[3]Mit dieser Wahl des Vorzeichens ist $\Delta\varphi$ für Saphir und BK7 positiv, weil in diesen Materialien die Trägerwelle schneller als die Einhüllende läuft.

Dieser Zusammenhang erlaubt es, den genauen CE-Phasenschlupf beim Durchgang eines Pulses durch ein Material der Dicke L mit dem Brechungsindex $n_b(\omega)$ mit Hilfe einer Sellmeir Gleichung [67] zu berechnen. Ein typischer Titan-Saphir Verstärker Kristall mit 2 mm Dicke zum Beispiel verursacht beim einmaligen Durchgang einen CE-Phasenschlupf von $\Delta\varphi = 54 \times 2\pi$ und ein Plättchen aus BK7 Glas von 50 μm Dicke genügt, um die CE-Phase um 2π zu verschieben. Außerhalb des Resonators ändert der Durchgang eines Pulszuges nichts an den Frequenzen des Kamms. Lediglich die Phasen der Moden verschieben sich um einen zeitlich konstanten Betrag. Innerhalb des Resonators wird diese Phasenverschiebung allerdings mit jedem Umlauf wiederholt. Dadurch ergibt sich die besprochene Frequenzverschiebung des Kamms. Es handelt sich beim Puls-zu-Puls CE-Phasenschlupf im eigentlichen Sinn um eine Frequenz, nämlich um den Phasenvorschub pro Pulsumlaufzeit: $\Delta\varphi/T = \omega_{CE}$, so diese Lesart von Gl. (3.12). Damit ist der CE-Phasenschlupf prinzipiell dem in der Einleitung erläuterten Potenzial für höchste Präzision für Frequenzmessungen zugänglich. Unabhängig von der Interpretation als CE-Phasenschlupf, die sicher für den allgemeinen "gechirpten" Puls problematisch ist, lässt sich die CE-Frequenz, wie sie durch Gl. (3.5) definiert ist, sehr genau bestimmen (siehe Kapitel 7).

3.4 Der Modenkamm durch Pulswiederholung

Um die besprochenen Eigenschaften des Spektrums eines Pulszuges herzuleiten, ist eigentlich keine Kenntnis über den Erzeugungsmechanismus benötigt worden. Die einzige Voraussetzung war, dass der Pulszug aus identischen Pulsen besteht, wobei eine Puls-zu-Puls Phasenverschiebung von $e^{i\Delta\varphi}$ zwar nichts an der Äquidistanz der Moden ändert, aber den gesamten Frequenzkamm verschiebt. Aus diesem Grund ist es instruktiv, einer Ableitung von Siegman [68] folgend[4], die Entstehung des Modenkamms für eine zunehmende Anzahl von Pulsen mit gleicher Gesamtenergie zu betrachten[5]:

$$E(t) = \frac{E_o}{\sqrt{N}} \sum_{m=0}^{N-1} e^{im\Delta\varphi} \mathcal{E}(t - mT) \tag{3.15}$$

Für die meisten Pulsformen konvergiert diese Reihe[6], wobei E_o für die Anzahl der betrachteten Pulse auf die wahre Feldamplitude normiert werden muss. Die Fouriertransformierte von $E(t)$ lässt sich aus der Fourier Transformation des Einzelpulses $\tilde{\mathcal{E}}(\omega)$ berechnen, wenn der Verschiebungssatz der Fouriertranformation

$$\mathcal{FT}\{\mathcal{E}(t-\tau)\} = e^{-i\omega\tau} \mathcal{FT}\{\mathcal{E}(t)\} \tag{3.16}$$

[4]Dieser hat jedoch den Puls-zu-Puls CE-Phasenschlupf nicht berücksichtigt.

[5]Weil am Ende der Rechnung nur Intensitäten berechnet werden, ist es vorteilhaft, ein komplexes elektrisches Feld zu verwenden.

[6]Nicht jedoch für Pulse, die wie $\propto 1/t$ jenseits des Pulsmaximums abfallen!

angewendet wird. Mit der Summenformel für geometrische Reihen ergibt sich weiter:

$$\tilde{E}(\omega) = \frac{E_o\tilde{\mathcal{E}}(\omega)}{\sqrt{N}} \sum_{m=0}^{N-1} e^{-im(\omega T-\Delta\varphi)} = \frac{E_o\tilde{\mathcal{E}}(\omega)}{\sqrt{N}} \frac{1-e^{-iN(\omega T-\Delta\varphi)}}{1-e^{-i(\omega T-\Delta\varphi)}} \tag{3.17}$$

Das sich ergebende Intensitätspektrum $I_N(\omega)$ für N Pulse lässt sich jetzt aus dem Intensitätsspektrum eines Pulses $I(\omega) \propto |\tilde{\mathcal{E}}(\omega)|^2$ berechnen:

$$I_N(\omega) = \frac{1-\cos(N(\omega T-\Delta\varphi))}{N(1-\cos(\omega T-\Delta\varphi))} \; I(\omega) \tag{3.18}$$

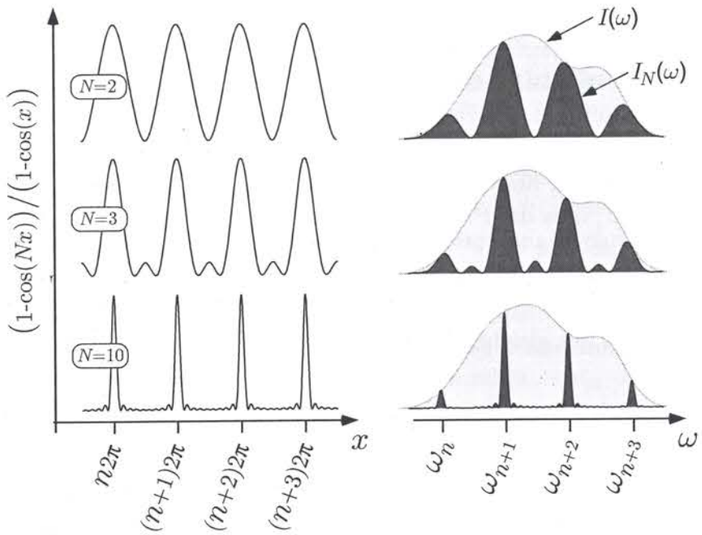


Abbildung 3.3: *Auf der linken Seite ist die auf den Peak normierte Funktion* $(1-\cos(Nx))/(1-\cos(x))$ *für einen Pulszug aus zwei, drei und zehn Pulsen zu sehen. Das Spektrum des Pulszuges auf der rechten Seite ergibt sich aus dem Produkt dieser Funktion mit dem Spektrum des Einzelpulses* $I(\omega)$*. Die Moden des sich ausbildenden Frequenzkamms liegen bei* $x = \omega_n T - \Delta\varphi = 2\pi n$ *mit ganzzahligen* n*. Daraus ergibt sich wie gehabt* $\omega_n = n\omega_r + \Delta\varphi/T$*.*

In der Abbildung 3.3 sind Spektren für eine verschiedene Anzahl von Pulsen dargestellt. Während das Intensitätsspektrum eines Einzelpulses ein Kontinuum darstellt, treten die Moden umso schärfer hervor je mehr Pulse der Pulszug hat. Das ist ähnlich wie beim Auflösungsvermögen eines Gitters, das mit der Anzahl der beleuchteten Linien zunimmt. Die spektrale Breite einzelner Moden lässt sich aus Gl. (3.18) für viele Pulse durch $\Delta\omega \approx \sqrt{24}/TN$ approximieren. Somit ist diese nach einer Sekunde, in der es $N = 1\ \mathrm{sec}/T$ Pulse gibt, mit $T \ll 1$ sec bereits auf $\sqrt{24}$ Hz ≈ 5 Hz gesunken und reduziert sich weiter umgekehrt proportional zur Beobachtungszeit. Dieser theoretische Wert ist bemerkenswert klein für eine optische Frequenz, er ignoriert allerdings andere Verbreiterungsprozesse wie akustische Vibrationen des Laserresonators. Im Grenzwert $N \to \infty$ nähern sich die Moden des Intensitätsspektrums für $x = \omega T - \Delta\varphi \approx 2\pi n$

$$\frac{1}{2\pi} \lim_{N\to\infty} \frac{1-\cos(Nx)}{N(1-\cos(x))} \approx \frac{1}{\pi} \lim_{N\to\infty} \frac{1-\cos(Nx)}{Nx^2} = \delta(x) \tag{3.19}$$

einer Delta-Funktion an. Das gesamte Spektrum besteht dann aus einer Serie von Delta-Funktionen, dem Frequenzkamm:

$$I_N(\omega) \to I(\omega) \sum_n \delta(\omega T - \Delta\varphi - 2\pi n) \tag{3.20}$$

Eine ähnliche Zusammensetzung des Signals aus vielen aufeinander folgenden Pulsen lässt sich beobachten, wenn man versucht, eine einzelne Mode mit Hilfe eines Spektrometers zu isolieren. Da jede der Moden eine kontinuierliche Welle darstellt, erwartet man am Ausgang des Spektrometers ebenfalls eine zeitlich konstante Welle, selbst dann, wenn zwischen den Pulsen der Auskoppelspiegel des Lasers, zum Beispiel mit einem schnellen Modulator, blockiert wird. Dieses nicht ganz intuitive Bild erklärt sich aus der für jedes Spektrometer geltenden Beziehung $\Delta\nu\Delta\tau = 1$ zwischen seiner zeitlichen $\Delta\tau$ und spektralen Auflösung $\Delta\nu$. Als einfaches Beispiel stelle man sich die Interferenz von N Strahlen, zum Beispiel durch das Ausleuchten von ebensovielen Linien eines Gitters vor, die man in k-ter Ordnung beobachtet. Das Auflösungsvermögen eines solchen Apparates ist durch $\nu/\Delta\nu = \lambda/\Delta\lambda = kN$ bzw $\Delta\nu = c/Nk\lambda$ gegeben, und die Bragg-Bedingung für die Beugung verlangt, dass der Weglängenunterschied zwischen den interferierenden Lichtstrahlen gerade $k\lambda/2$ ist. Weil die Pulse nicht an einem Ort, sondern über die Länge $2L_g = 2Nk\lambda/2$ verteilt reflektiert werden, verlängert sich die Pulsdauer um $\Delta\tau = 2L_g/c = Nk\lambda/c$, woraus in der Tat $\Delta\nu\Delta\tau = 1$ folgt. Um eine Mode selektieren zu können, muss also, anschaulich gesprochen, jeder Puls soweit "verschmiert" werden, dass er mit dem darauf folgenden Puls überlagert. Daher geht das Licht am Ausgang des Spektrometers auch zwischen den Pulsen nicht aus. Um eine Mode eines modengekoppelten Lasers mit der Resonatorlänge L und dem Modenabstand $\Delta\nu = \omega_r/2\pi \approx c/2L$ mit einem Gitter auflösen zu können, muss dieses also mindestens so lang wie der Laseresonator sein. Solche Gitter könnten wahrscheinlich nur für die kürzesten Laseresonatoren beschafft werden. Glücklicherweise

benötigt man diese hohe Auflösung in der Praxis nicht, wie im Kapitel 4.1 gezeigt wird. Bei der Verwendung eines Fabry-Pérot Interferomters zur Modenselektion[7] wäre es dagegen relativ leicht, eine solche Auflösung zu bekommen, jedoch gelingt die Stabilisierung des Resonators auf eine Mode des Lasers nur mit zusätzlichen Tricks [69, 70], wie im Abschnitt 5.1 gezeigt wird.

3.5 Funktionsweise eines Kerr-Linsen modengekoppelten Lasers

In diesem Abschnitt soll kurz auf die hier interessierenden Aspekte der Funktionsweise des Kerr-Linsen modengekoppelten Lasers [71, 72, 73, 74, 75] eingegangen werden. Dieser Lasertyp, basierend auf einem Titan-Saphir oder einem Cr:LiSAF Kristall, ist bisher bei allen optischen Frequenzmessungen eingesetzt worden. Der mit Abstand am häufigsten, für Kurzpulsanwendungen verwendete Kristall, ist Titan-Saphir mit einem für das Modenkoppeln notwendigen breiten Verstärkungsprofil von etwa 700 nm bis 1000 nm. Im Resonator eines solchen Lasers wird die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD), und manchmal auch Dispersion höherer Ordnung, kompensiert. Wie im Abschnitt 3.1 erläutert, regularisiert dies den Modenabstand des kalten Resonators. Die Praxis zeigt, dass die spektrale Breite und damit die Pulslänge auf den Frequenzbereich ausgedehnt werden kann, über welche diese Kompensation gelingt [76, 77]. Für diese Kompensation gibt es im Wesentlichen zwei Möglichkeiten, die in der Abbildung 3.4 dargestellt sind. Zum einen gibt es so genannte "gechirpte" Spiegel [78]. Diese haben, wie konventionelle Spiegel, dielektrischen Schichten, die aber keine konstante Schichtdicken von $\lambda/2$ aufweisen, sondern so angeordnet sind, dass verschiedene Frequenzen in verschiedenen Schichttiefen reflektiert werden[8]. Die "gechirpten" Spiegel können eine GVD von bis zu -100 fs^2 pro Reflex haben. Betragsmäßig deutlich größere Werte erhält man mit Prismenpaaren. Dabei ist die GVD eines Prismenpaars aus Quarzglas, deren Oberflächen im Brewsterwinkel durchstrahlt werden durch 299 fs^2 $- l_p \times 2160$ fs^2/m gegeben, wobei l_p der Abstand der Prismenspitzen ist [79]. Weil die Prismen einen Mindestabstand haben müssen, um eine negative GVD zu bewirken (hier $l_p > 138$ mm), ist es mit prismenbetriebenen Lasern unmöglich, sehr hohe Repetitionsraten zu erhalten.

Wichtig bei der Konstruktion eines solchen Lasers ist, dass die GVD des kalten Laserresonators etwas negativ ist. In diesem Fall lässt sich, im Zusammenwirken mit dem von der Intensität des umlaufenden Pulses $I(t)$ abhängigen Brechungsindex des Laserkristalls, ein

[7] Die "Zeitverschmierung" ergibt sich hier durch die endliche Photonenspeicherzeit. Auch hier leitet man leicht die Bedingung $\Delta\nu\Delta\tau = 1$ her.

[8] Der Zusammenhang Frequenz/Eindringtiefe muss dabei einen quadratischen Term aufweisen, um eine von Null verschiedene GVD zu besitzen.

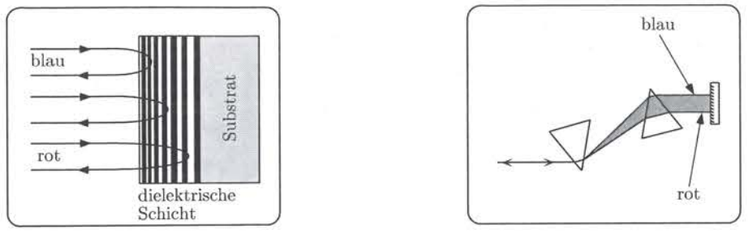


Abbildung 3.4: *Zur Kompensation der Gruppengeschwindigkeitsdispersion innerhalb eines Laserresonators können, als Endspiegel eingesetzt, "gechirpte" Spiegel (links) oder Prismenpaare (rechts) dienen. Beide weisen eine frequenzabhängige Gruppenlaufzeit auf (obwohl aus der Abbildung nur die frequenzabhängige Phasenlaufzeit geschlossen werden kann.).*

nichtzerfließendes Wellenpaket (Soliton) erzeugen. Die Intensitätabhängigkeit wird üblicherweise durch folgende Gleichung ausgedrückt

$$n(I) = n_o + I(t)n_2 \tag{3.21}$$

und bewirkt eine Selbstphasenmodulation (SPM). Unter bestimmten Bedingungen können sich die SPM und die GVD genau kompensieren und es entsteht ein Soliton [80], also ein nicht zerfließendes Wellenpaket. Diese Kompensation ist dabei in gewissen Grenzen selbstanpassend: Ändert sich zum Beispiel die Pulsintensität, hat dies eine Anpassung des Spektrums zufolge, so dass sich über höhere Ordnungen der Dispersion die perfekte Kompensation wieder einstellt. Obwohl der kalte Laserresonator eigentlich eine negative GVD hat, werden die Moden durch die Solitonbildung auf ein genau äqudistantes Gitter gezogen. Die effektive GVD, die auch alle nichtlinearen Effekte berücksichtigt, muss also nach dem im Abschnitt 3.1 Gesagten sehr präzise verschwinden. Die genaue mathematische Beschreibung der Solitonen ist schwierig. Daher mag ein mechanisches Analogon, wie in Abbildung 3.5, hilfreich sein.

Um ein Soliton in einem solchen Laser zu erzeugen, reicht es nicht, die physikalische Voraussetzung, wie eben erläutert, bereit zu stellen. Es muss weiter dafür gesorgt werden, dass ein umlaufendes Soliton geringere Verluste hat, als ein nach wie vor möglicher CW-Betrieb des Lasers. Dies gelingt durch die Ausnutzung einer weiteren Auswirkung des intensitätsabhängigen Brechungsindex. Durch die von der Strahlachse aus radial abfallende Intensität bildet sich eine so genannte Kerr-Linse im Laserkristall. Diese ist nur im gepulsten Betrieb, durch die damit verbundene hohe Spitzenintensität, von Bedeutung. Der Laserresonator wird so konzipiert, dass er sehr nah an einem bezüglich radialer Aufweitung des Lasermodes instabilen Bereich arbeitet. Die zusätzliche Kerr-Linse lässt den

Abbildung 3.5: *Die dargestellten Läufer sind eigentlich verschieden schnell, so dass die Gruppe "zerfließen" würde (Dispersion). Weil sie sich aber auf einer weichen Unterlage bewegen und etwas einsinken (intensitätsabhängiger Brechungsindex), laufen die schnellen Läufer ständig bergauf und die Langsamen ständig bergab. Auf diese Weise bleibt die Gruppe zusammen.*

Resonator dann stabiler werden. Daher die Bezeichnung Kerr-Linsen Modengekoppelung. Gestartet wird der Pulsbetrieb dann meistens durch eine mechanische Störung, wie etwa die schnelle Verschiebung eines Spiegels entlang der Strahlachse.

Alternativ kann man sich das Modenkoppeln auch als gegenseitiges "injection-locking" vorstellen. Durch den intensitätsabhängigen Brechungsindex werden auf jede Mode Modulationsseitenbänder, gemäß Gl. (2.3) mit der Frequenz des umlaufenden Pulses, ausgeprägt. Weil die Modulationsfrequenz mit dem Modenabstand identisch ist, wird dadurch Energie aus jeder Mode in die umliegenden Moden gekoppelt. Diese erhalten dadurch eine kleine zusätzliche Verstärkung, falls sie mit der richtigen Phase auf dem regelmäßigen Gitter der Moden schwingen. Kleine Unregelmäßigkeiten in diesem Gitter werden durch diese Extraverstärkung ausgeglichen. Auf der anderen Seite haben Moden, die sich nicht diesem kollektiven Diktat fügen, einen höheren Verlust durch die Kerr-Linse, wie eben erläutert. Die Koppelung der Moden kann dabei so intensiv werden, dass eine Lasertätigkeit auch außerhalb des Titan-Saphir Verstärkungsprofils zu beobachten ist, wo die Modulationsseitenbänder die einzige optische Verstärkung [81].

4. Überprüfung des Frequenzkamms

Die Idee, modengekoppelte Laser als Frequenzkamm-Generatoren zu verwenden stammt eigentlich schon aus den 70er Jahren. Im Jahre 1978 haben T. W. Hänsch und Mitarbeiter, damals noch mit einem Pikosekunden Laser, die 4d Feinstrukturaufspaltung in Natrium von 1028 GHz vermessen [16]. Zu dieser Zeit waren die zur Verfügung stehenden Pulsdauern bei weitem nicht ausreichend für absolute optische Frequenzmessungen, wie ich sie in Kapitel 7 beschreiben werde. Nach der Einführung der Kerr-Linsen-Modenkoppelung Anfang der 90er Jahre waren die Kämme schon sehr viel breiter. Doch es gab begründete Zweifel, dass ein solcher Modenkamm eine Radiofrequenz in einem Schritt phasenkohärent bis ins Optische multiplizieren kann. J. L. Hall (JILA, Boulder CO/USA) beschreibt das in einem 2000er Übersichtsartikel [46] wie folgt:

I expected that amplitude noise would lead to random intensity-dependent phase shifts. Then one would only have phase-noise fuzz at such a high harmonic ($\sim 10^6$) of the repetition rate. Luckily, I was wrong!

Betrachtet man die gesamte Rauschleistung eines Oszillators, so erhöht sich diese um einen Faktor m^2 falls dessen Frequenz um den Faktor m vervielfältigt wird [82], so dass der notwendige Multiplikationsfaktor von etwa 10^6 ein Ansteigen der gesamten Rauschleistung um 120 dB (!) bewirken sollte. Eine theoretische Analyse [83] stellte zudem fest, dass es selbst mit den rauschärmsten Radiofrequenzoszillatoren nicht gelingen sollte, diesen in einem Schritt bis ins Optische zu multiplizieren, ohne die Trägerwelle vollständig im Rauschen zu verlieren ("carrier-collapse"). Möglicherweise waren diese Einwände der Grund für das lange Zögern, diese Laser ernsthafter für optische Frequenzmessungen einzusetzen.

4.1 Schwebungssignale mit dem Modenkamm

Die erste entscheidende Frage war also zunächst, ob sich in dem emittierten Spektrum unseres Femtosekundenlasers überhaupt Moden finden ließen. Dieser Test kann sehr schnell mit den im Abschnitt 2.1 beschriebenen Schwebungen erbracht werden. Für Pikosekundenpulse war dies eigentlich schon aus den Experimenten, die T. W. Hänsch und sein Team in den 70er Jahren an der Stanford University in Stanford CA/USA durchgeführt hatten [16], klar. Damals wurden zwar keine Schwebungssignale aufgenommen, sondern mit dem Frequenzkamm direkt spektroskopiert, aber auch dieses sollte nur mit sauber

getrennten Moden im Spektrum möglich sein. Die ersten Schwebungssignale mit einem Modenkamm wurden dann im Team von A. I. Ferguson zwischen einem CW- und einem 10 ps-Farbstofflaser aufgenommen [84]. Da diese Laser aktiv modengekoppelt wurden, das heißt, ihre Pulswiederholrate war von einer Radiofrequenzquelle vorgegeben, hätte zu dem Zeitpunkt eigentlich klar sein müssen, dass die oben angesprochene Vervielfältigung des Radiofrequenzrauschens anders funktioniert.

Bei unseren ersten Schwebungsversuchen mit Kerr-Linsen modengekoppelten Femtosekundenlasern im Jahre 1994 ergab sich dasselbe Bild. Wir konnten auf Anhieb klare Schwebungsignale mit einem CW-Laser beobachten. Es stellte sich sofort heraus, dass sich der "carrier-collapse" [83] tatsächlich einstellte, falls die Pulswiederholrate mit einer zu großen Regelbandbreite auf eine Radiofrequenzquelle stabilisiert wurde. Die Abwesenheit des Effekts bei ausgeschalteter Regelschleife verdeutlicht, warum die einfache Beschreibung der Wirkung des modengekopplten Lasers als phasenstarrer Frequenzmultiplizierer nicht korrekt ist. Der Laser hat eine gewisse Eigenstabilität und wirkt daher als schweres Schwungrad im Optischen, wodurch schnelle Frequenzänderungen unmöglich gemacht werden, es sei denn, man wirkt mit einer hohen Regelbandbreite auf den Laser ein. Als optimale Regelbandbreite stellte sich dabei eine Frequenz heraus, mit der zu erwartende akustische Störungen von einigen hundert Hz, wie sie typischerweise im Labor auftreten, ausgeregelt werden können. Tatsächlich kann die freilaufende Repetitonsrate eines Femtosekundenlasers für Mittelungszeiten, die kürzer als die Periode dieser akustischen Schwingungen sind, sehr viel stabiler als ein guter Synthesizer sein [85]. Diese Eigenschaft hat andere Gruppen dazu veranlasst, sie als hochwertigen Ersatz für Radiofrequenzquellen in Betracht zu ziehen [86, 87]

Um ein Schwebungssignal zwischen einem CW-Laser und einer Mode des Modenkamms mit einem möglichst hohen Signal-zu-Rausch Verhältnis zu erzeugen, verwenden wir gewöhnlich den in Abbildung 4.1 dargestellten Aufbau. Dazu werden beide Laserstrahlen zunächst auf einem Strahlteiler mit der Transmission t und der Reflektion $r = (1-t)$ überlagert. Danach werden mit einem Gitter m Moden in der Nähe des CW-Lasers selektiert, wodurch den Photodetektor die gesamte Lichtleistung $tmP_n + (1-t)P_{CW}$ erreicht, wobei P_n die innerhalb der Auflösung des Gitters $m\omega_r$ als konstant angenommene Leistung pro Mode und P_{CW} die Leitung des CW-Lasers ist. In der Detektionsbandbreite B_w des Photodetektors mit der Quanteneffizienz η ergibt sich daraus das schrotrauschbegrenzte Signal-zu-Rausch Verhältnis der Detektion [21, 88]:

$$S/N = \frac{\eta}{h\nu B_w} \frac{tP_n(1-t)P_{CW}}{tmP_n + (1-t)P_{CW}} \tag{4.1}$$

In der Praxis hat es sich bewährt, mit dem in der Abbildung 4.1 dargestellten einstellbaren Strahlteiler, das auf einem Radiofrequenz Spektrumanalysator ablesbare Signal-zu-Rausch Verhältnis zu optimieren. Rechnerisch ergibt sich das optimale Strahlteilungsverhältnis zu $t_{opt} = \sqrt{P_{CW}}/(\sqrt{mP_n}+\sqrt{P_{CW}})$. Mit diesem und der zusätzlichen Bedingung

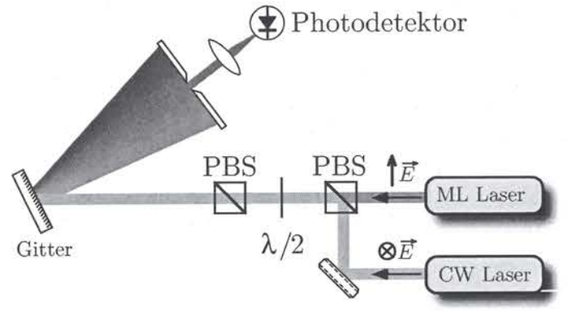


Abbildung 4.1: *Um ein gutes Signal-zu-Rausch Verhältnis für ein Schwebungssignal zwischen einem CW-Laser und einer Mode eines modengekoppelten Lasers (ML-Laser) zu erhalten, werden beide Laser zunächst mit einem polarisierenden Strahlteiler (PBS) überlagert. Damit die beiden elektrischen Felder überhaupt interferieren können, müssen diese dann auf eine gemeinsame Achse projiziert werden. Dies geschieht mit einem zweiten Polarisator und einem $\lambda/2$-Plättchen, die zusammen einen einstellbaren Strahlteiler für die Überlagerung darstellen. Um das Schrotrauschen durch nicht verwendete Moden zu reduzieren wird ein Gitter verwendet.*

an die Auflösung des Gitters von $m \ll P_{CW}/P_n$ ergibt sich ein Signal-zu-Rauschverhältnis, das nur durch das Schrotrauschen des als schwächer angenommenen Signals P_n begrenzt ist [21]:

$$(S/N)_{opt} = \frac{\eta P_n}{\hbar\omega_n B_w} \tag{4.2}$$

Als einfache Regel gilt daher, dass das Gitter genug Moden aus dem Spektrum entfernen muss, damit die Gesamtleistung der verbleibenden Moden kleiner als die Leistung des CW-Lasers ist. Dies ist eine Forderung, die sich insbesondere in den Flanken des Modenkamms bereits mit einem sehr kleinen Gitterauflösungsvermögen erfüllen lässt[1]. Typischerweise reicht es daher, ein Gitter mit 1800 Linien pro mm auf ein bis zwei mm auszuleuchten, mit einer Linse auf den Photodetektor zu fokussieren und diesen als Apertur zu verwenden. Auf diese Weise erzeugen wir gewöhnlich Schwebungssignale mit einem Signal-zu-Rausch Verhältnis von über 40 dB in einer Auflösungsbandbreite von 400 kHz. Dies ist mehr als genug für ein sicheres Verfolgen der Phase durch einen Phasenregelkreis oder einen Radiofrequenzzähler, wie in Abschnitt 2.1 erläutert wurde.

[1] Man rechnet leicht nach, dass man ein Gitter mit einer Größe von mindestens L benötigt, um eine einzelne Mode aus einem Frequenzkamm zu selektieren der von einem Laser mit der Resonatorlänge L erzeugt wird. Glücklicherweise ist es nicht notwendig mit einer solchen, im Allgemeinen recht aufwendigen Optik, zu arbeiten.

Wegen des begrenzten Auflösungsvermögens des Gitters ergibt sich mit jeder der m Moden ein Schwebungssignal, von denen nur diejenige, die innerhalb der Bandbreite des Photodetektors liegen, registriert werden. Eine weitere Selektion lässt sich mit einem Tiefpassfilter erreichen. Um mit einem Phasenregelkreis einen Diodenlaser auf eine der Moden zu stabilisieren, haben wir einen 40 MHz Tiefpass und einen 40 MHz Lokaloszillator verwendet. Weil die Repetitionsraten in all unseren Experimenten mindestens 75 MHz betrug, lässt ein solcher Filter, starke Dämpfung im Stoppband vorausgesetzt, nur ein Schwebungssignal durch, falls der Diodenlaser nah genug an eine der Moden gestimmt wird.

4.2 Überprüfung der Äquidistanz der Moden

Nachdem sichergestellt war, dass unser Femtosekundenlaser tatsächlich einen detektierbaren Frequenzkamm emittiert, war die nächste entscheidende Frage, ob sich dieser für hochpräzise Messungen einsetzen lässt, bzw., ob die Modellvorstellungen des Kapitels 3 einer sehr genauen Überprüfung standhalten würde. Für optische Frequenzmessungen sind genau zwei Eigenschaften des Frequenzkamms kritisch: Der Modenabstand muss über die gesamte verwendete Bandbreite konstant sein und er muss leicht zu messen sein. Gleichung 3.5 bringt genau dieses zum Ausdruck. Die Behauptung, eines allen Moden gemeinsamen Frequenzversatzes ω_{CE} ist nur eine weitere Sprechweise für den identischen Abstand der Moden untereinander. Die zweite wichtige Eigenschaft, ebenfalls durch Gl. (3.5) zum Ausdruck gebracht, ist, dass dieser Modenabstand identisch mit der leicht zu messenden Pulswiederholrate ω_r ist.

Die ersten Untersuchungen dieser Eigenschaften wurden mit dem in Abbildung 4.2 skizziertem Experiment in unserem Labor durchgeführt [30]. Drei Diodenlaser (bei 870,9 nm, 822,8 nm und 846,2 nm) wurden mit Hilfe des in Abbildung 4.1 dargestellten Aufbaus, zur Schwebung mit den Moden eines modengekoppelten Lasers (Coherent Mira 900, Pulslänge 73 fs, Repetitionsrate $\omega_r \approx 2\pi \times 76$ MHz) gebracht. Die Moden wurden dabei so ausgewählt[2], dass die Frequenz der mittleren Mode gerade mit dem arithmetischen Mittel der Frequenz der beiden äußeren Moden übereinstimmt. Offensichtlich ist diese Übereinstimmung dann möglich, wenn die verwendeten Moden auf einem äquidistanten Gitter angeordnet sind. Die Schwebungsfrequenzen zwischen Laserdioden und Frequenzkamm wurden mit den im Abschnitt 2.2 beschriebenen digitalen Phasendetektoren auf eine externe Radiofrequenz von 20 MHz stabilisiert. Das Vorzeichen der Regelung wurde dabei für die beiden äußeren Diodenlaser entgegengesetzt gewählt, so dass der eine Diodenlaser 20 MHz oberhalb und der andere 20 MHz unterhalb der ausgewählten

[2]Die grobe Auswahl geschah dabei mit einem Wavemeter. Die richtige Mode wurde dann durch Probieren (mehrmaliges ein- und ausschalten des Phasenregelkreises) gefunden.

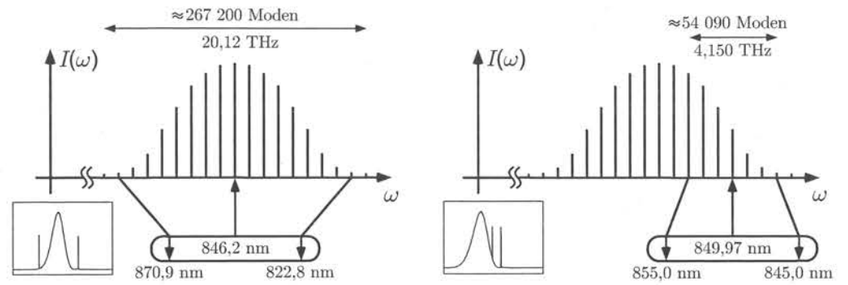


Abbildung 4.2: *Die gleichmäßige Verteilung der Moden auf der Frequenzachse wurde mit einer optischen Intervallteilerstufe (siehe Abbildung 2.3) überprüft. Bei regelmäßiger Anordnung der Moden sollte jeweils genau zwischen zwei entfernten Moden eine weitere Mode liegen (bei ungerader Anzahl der Moden zwischen den beiden entfernten Moden). Während der Aufbau auf der linken Seite unempfindlich gegenüber etwaiger symmetrischer Unregelmäßigkeiten ist, ist der auf der rechten Seite dargestellte durch die kleinere Frequenzlücke etwas weniger sensitiv. Zur besseren Orientierung ist zusätzlich das gemessene Spektrum des Frequenzkamms dargestellt, in das die Positionen der äußeren Diodenlaser eingezeichnet wurde.*

Mode betrieben wurde. Zusätzlich wurde mit den Diodenlasern eine Intervallteilerstufe betrieben wie sie in Abschnitt 2.5 bereits vorgestellt wurde. Diese erzeugte eine weitere Schwebung zwischen der Summenfrequenz der beiden äußeren Diodenlaser und der zweiten Harmonischen des mittleren Diodenlasers. Unabhängig von der Vorzeichenwahl des Lokaloszillators des mittleren Diodenlasers wird diese bei 40 MHz erwartet, falls die Anzahl der Moden zwischen den beiden äußeren Laserdioden ein ungerade Zahl ist und die Moden auf einem äquidistanten Gitter angeordnet sind. Wir haben diese Schwebungsfrequenz der Intervallteilerstufe mit einem Hewlett Packard 53132A Radiofrequenzzähler gemessen. Dieser hat bei einer Torzeit von einer Sekunde eine Auflösung von 1 mHz und für größere Torzeiten eine um die Torzeit verringerte Auflösung. Der Zähler verwendete dieselbe Cäsiumuhr als Zeitbasis, die auch als Referenz für die Synthesizer dienten, welche die 20 MHz Lokaloszillatoren lieferten. Parallel zur Phasenregelung der drei Diodenlaser wurde jeweils ein Radiofrequenzzähler verwendet um das korrekte Arbeiten der Regelung zu überprüfen (siehe Abschnitt 2.3). Falls einer der Zähler einen Wert lieferte, der sich um die "cycle slip" Schwelle von den vorgegebenen 20 MHz Lokaloszillatoren unterschied, wurde dieser für die Auswertung verworfen. Bei einer Zähler-Torzeit von einer Sekunde erwies sich eine "cycle slip" Schwelle von 0,5 Hz als ausreichend. Der Mittelwert der Frequenzmessungen änderte sich durch eine weitere Verringerung der Schwelle nicht signifikant. Bei Messungen mit längerer Torzeit machen sich übersprungene oder zusätzliche Zyklen entsprechend weniger im Ablesewert des Zählers bemerkbar, weil sich diese auf

Tor-zeit	mittlere Abweichung von 40 MHz	relative Abweichung	gültige Messungen	"cycle slip" Schwelle	"cycle slips"
1 s	$-0,6 \pm 2.4$ mHz	$1,2 \times 10^{-16}$	8442	0,5 Hz	202
10 s	$-1,93 \pm 0.73$ mHz	$9,5 \times 10^{-17}$	2936	50 mHz	257
100 s	$0,54 \pm 0.67$ mHz	$3,4 \times 10^{-17}$	338	5 mHz	179

Tabelle 4.1: *Ergebnisse des Tests auf Äquidistanz der Moden eines modengekoppelten Lasers mit Hilfe des Aufbaus in Abbildung 4.2. Ein weit jenseits des Mittelwerts liegender Datenpunkt (825 mHz) mit einer Torzeit von 100 Sekunden wurde aus der Auswertung genommen, ohne dass das Kriterium für einen "cycle slip" erfüllt war.*

ein größeres Zeitintervall beziehen. Deswegen wurde die "cycle slip" Schwelle umgekehrt proportional zur Torzeit verringert. Der modengekoppelte Laser war bei diesen Messungen freilaufend, das heißt weder ω_r noch ω_{CE} wurden aktiv stabilisiert. Das Ergebnis der Messungen ist in der Tabelle 4.1 zusammengefasst. Das gewichtete Mittel der Ergebnisse für die verschiedenen Torzeiten ergibt eine Abweichung von $-0,59 \pm 0,48$ mHz von den erwarteten 40 MHz. Damit ergibt sich für die Äquidistanz der Moden, bezogen auf die Frequenzlücke von 20 THz, eine relative Genauigkeit von $3,0 \times 10^{-17}$.

Zu den möglichen systematischen Effekten zählt die spezifizierte (worst case) Systematik der Zähler (4 mHz, 0,4 mHz und 40 μHz für eine Torzeit von 1, 10 und 100 Sekunden) und zusätzliche Zeitabhängigkeiten durch Änderung der Labortemperatur und der damit verbundenen Änderungen der Spiegelabstände. Dieser Effekt könnte bis zu 6 mHz betragen, falls sich die Labortemperatur konstant mit einem Kelvin pro Stunde in eine Richtung geändert hätte. Da die Daten über einen Zeitraum von mehreren Tagen aufgenommen wurden, spielt dieser Effekt wohl eine untergeordnete Rolle. Bei dieser Messung wurde außerdem nur ein Zähler für das Schwebungssignal der Intervallteilerstufe eingesetzt, so dass es wegen des endlichen Signal-zu-Rausch Verhältnises zu sporadischen Fehlinterpretationen dieses Zählers gekommen sein könnte.

Für einen weiteren Test, der auf der rechten Seite der Abbildung 4.2 skizziert ist, wurde die vermessene Frequenzlücke auf 4,15 THz reduziert und alle Diodenlaser auf einer Seite des Modenkamms stabilisiert. Das Experiment wurde wie mit der 20 THz Lücke durchgeführt, allerdings nur mit einer Torzeit von 10 Sekunden. Mit 1703 gültigen Datenpunkten und ungültigen 326 Datenpunkten, die das "cycle slip" Kriterium nicht erfüllt haben, und somit verworfen wurden, ergab sich eine Abweichung von $0,70 \pm 0,61$ mHz von den erwarteten 40 MHz und damit eine relative Genauigkeit von $1,7 \times 10^{-16}$.

4.3 Überprüfung der Identität von Modenabstand und Repetitionsrate

Wie bereits erwähnt, ist die zweite Bedingung für den Einsatz von modengekoppelten Lasern für optische Frequenzmessungen mit höchster Präzision, die Identität von Modenabstand und Repetitionsrate. Um auch diese Eigenschaft zu überprüfen, haben wir einen zweiten Frequenzkamm verwendet, der wie im Abschnitt 2.4 beschrieben, durch einen schnellen elektrooptischen Modulator erzeugt wurde. Da eine Intervallteilerstufe bereits installiert war, bot sich an, diese wie in der Abbildung 4.3 dargestellt zu verwenden, um die effektive Frequenzlücke und damit die Messgenauigkeit zu verdoppeln. Der elektrooptische Frequenzkammgenerator wurde mit einer Frequenz von $f_{mod} = 6,321\ 4$ GHz betrieben. Es wurden 328 Moden verwendet, um den mittleren Diodenlaser der Intervallteilerstufe präzise = 2,073 319 2 THz oberhalb des 855 nm Diodenlasers zu stabilisieren. Die Lokaloszillatoren für die Stabilisierung des Frequenzkammgenerators auf den 855 nm-Diodenlaser und der Stabilisierung des 850 nm-Diodenlasers auf den Frequenzkammgenerator waren jeweils 50 MHz. Daher war die Frequenzdifferenz dieser beiden Diodenlaser $328 \times f_{mod} - 100$ MHz = 2,073 319 2 THz. Des weiteren wurde für dieses Experiment die Pulswiederholrate auf 76,5 MHz, mit Hilfe eines Piezo-montierten Resonatorspiegels stabilisiert. Als Lokaloszillator diente ein Hewlett-Packard Synthesizer (Model 8360), der bei 7,65 GHz betrieben wurde und somit die hundertste Harmonische der Pulswiederholrate stabilisierte. Dadurch wurde der Rauschbeitrag des Synthesizers herabgesetzt. Als Zeitbasis verwendete dieser, wie alle anderen Zähler und Lokaloszillatoren in diesem Experiment, dieselbe Cäsiumuhr. Wegen der sehr kurzen Pulsdauer können fast beliebig hohe Harmonische der Pulswiederholrate detektiert werden, soweit dies die Bandbreite des verwendeten

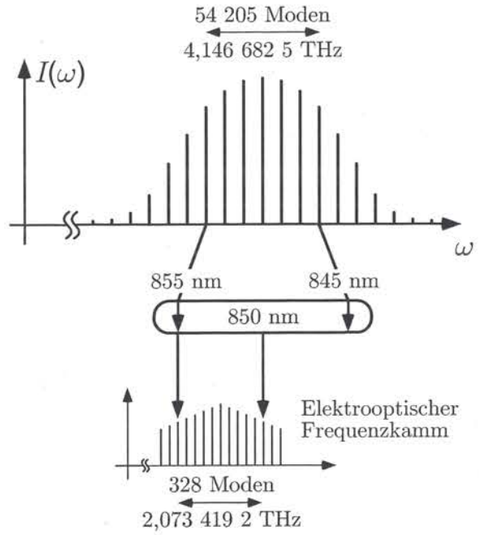


Abbildung 4.3: *Die Identität von Modenabstand und Repetitionsrate wurde überprüft, indem der Modenkamm, eines modengekoppelten Lasers mit einem Modenkamm aus einem schnellen elektooptischen Modulator erzeugt, verglichen wurde. Die Intervallteilerstufe steigerte dabei die Messgenauigkeit um einen Faktor zwei.*

Photodetektors zulässt. Wird der 845 nm Diodenlaser genau 54 205 Moden oberhalb des 855 nm Diodenlaser stabilisiert, so ergibt sich, rein rechnerisch, eine Schwebungsfrequenz von 44, 1 MHz zwischen dem mittleren Diodenlaser und der nächstgelegenen Mode des modengekoppelten Lasers. Mit insgesamt 1859 gültigen Datenpunkten mit einer Zählertorzeit von 10 Sekunden und 166 als potenzielle "cycle slip" verworfenen ergab sich ein Mittelwert $2,2 \pm 2,5$ mHz für die Abweichung von den erwarteten 44, 1 MHz. Das bestätigt die Identität von Modenabstand und Repetitionsrate mit einer relativen Unsicherheit von höchstens $6,0 \times 10^{-16}$.

Mit diesen Messungen war klar, dass sich modengekoppelte Femtosekundenlaser für die höchste Präzision, die selbst die besten verfügbaren Cäsiumuhren übertrifft, eignen. Da diese Experimente mit einem 73 fs Laser durchgeführt wurden, obwohl zu dieser Zeit bereits Pulse mit weniger als einem Zehntel Dauer erzeugt werden konnten, schien es als sicher, dass man diese Technologie ohne weiteres von der Messung von 20 THz Frequenzlücken auf 200 THz erweitern konnte. Einige Gruppen, einschließlich der von J. L. Hall, der am Anfang des Kapitels zitiert wurde, haben daraufhin ebenfalls begonnen, diese Laser für optische Frequenzmessungen einzusetzen [89].

4.4 Externe Kammverbreiterung in Einmoden Fasern

Auch ohne einen Laser zu beschaffen, der kürzere Pulse erzeugt, ließ sich die für uns messbare Frequenzlücke noch deutlich vergrößern. Selbst mit den zu dieser Zeit verfügbaren 73 fs Pulsen, werden sehr hohe Intensitäten erreicht, so dass sich eine Reihe nichtlinearer Effekte beobachten lassen. Ein Effekt, der im Zusammenhang mit Frequenzkämmen wichtig ist, ist die Vierwellenmischung. Im Frequenzraum wird dieser Prozess als Wechselwirkung dreier Frequenzen und einer daraus resultierenden Vierten beschrieben. Möglich sind im Prinzip alle Summen- und Differenzfrequenzen von jeweils drei Moden. Nennenswerte Effizienz erreicht man bei ausgedehnten Proben gewöhnlich nur durch Anpassung der Propagationsgeschwindigkeiten der beteiligten Wellen. Für einen nicht zu breiten Frequenzkamm ist dies trotz Dispersion annäherungsweise erfüllt, falls jeweils zwei Moden addiert und vom Ergebnis eine dritte Mode abgezogen wird. Werden zum Beispiel die Moden mit der Modenzahl n_1, n_2 und n_3 auf diese Weise miteinander gekoppelt, so ergibt sich eine neue Mode bei $n' = n_1 + n_2 - n_3$:

$$n_1\omega_r + \omega_{CE} + n_2\omega_r + \omega_{CE} - (n_3\omega_r + \omega_{CE}) = n'\omega_r + \omega_{CE} \tag{4.3}$$

Man macht sich leicht klar, dass dieser Prozess zu neuen Moden außerhalb des bestehenden Frequenzkamms führt, und dass diese auf dem erweiterten Gitter der ursprünglichen Moden liegen. Effektiv fügt die Vierwellenmischung also weitere Moden zu einem bestehenden Frequenzkamm hinzu.

Die Beschreibung dieses Prozesses im Zeitraum führt auf die Selbstphasenmodulation (siehe Gl. (3.21)). Nach einer Probenlänge l ergibt sich, unter Vernachlässigung der Dispersion, eine Phasenverschiebung von

$$\Phi_{NL}(t) = -n_2 I(t)\omega_c l/c \qquad \text{mit } I(t) = |A(t)|^2 \tag{4.4}$$

Die optische Weglänge im Material hängt also von der momentanen Intensität ab und ist daher mit der Frequenz ω_r moduliert. Aus dieser zeitabhängigen Phasenverschiebung ergibt sich eine Frequenzmodulation von $\dot{\Phi}_{NL}(t)$. Bei Quarzglas[3] mit $n_2 > 0$ produziert die ansteigende Pulsflanke neue Frequenzen auf der roten Seite des Frequenzkamms ($\dot{\Phi}_{NL}(t) < 0$) und die fallende Flanke auf der blauen Seite. Dies erzeugt, ganz ähnlich wie im Abschnitt 2.4, zusätzliche Modulationsseitenbänder um jede Mode des ursprünglichen Kamms und im Abstand vom Vielfachen der Modulationsfrequenz ω_r. Die Selbstphasenmodulation modifiziert die Phase der Pulseinhüllenden wie folgt:

$$A(t) \longrightarrow A(t)e^{i\Phi_{NL}(t)}. \tag{4.5}$$

Weil $\Phi_{NL}(t)$ dieselbe Periodizität wie $A(t)$ hat, ist die Ableitung der Modenstruktur aus Abschnitt 3.2 auch für den Pulszug nach der Selbstphasenmodulation gültig. Auch andere Effekte wie Dispersion oder höhere Ordnungen der Nichtlinearität sollten an dieser Periodizität nichts ändern, weil anzunehmen ist, dass diese sich für alle Pulse gleich auswirken.

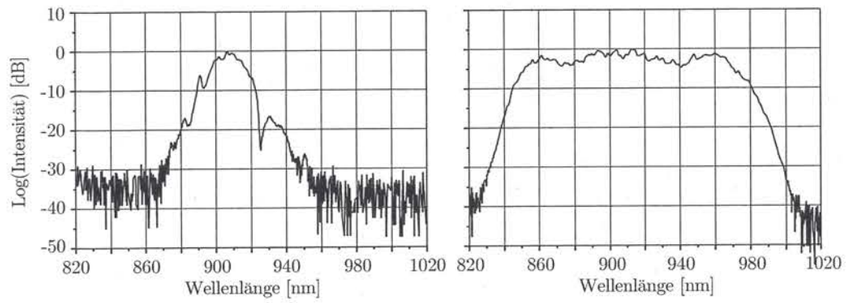


Abbildung 4.4: *Das Spektrum unseres Coherent Mira 900 vor (links) und nach der Vierwellenmischung (rechts). Die einzelnen Moden sind nicht aufgelöst. Die Faser (Newport FS-F) war 40 cm lang. Beide Spektren sind am Ausgang der Faser aufgenommen. Für das Linke wurde eine mittlere Leistung von 4 mW und für das Rechte 225 mW durch Justieren bzw. Dejustieren eingestellt. Für die niedrige mittlere Leistung beobachtet man kaum Vierwellenmischung, also im Wesentlichen das Spektrum das Lasers.*

[3] Für Quarzglas ist $n_2 = 2.5 \times 10^{-16}$ cm^2/W.

Um diesen Effekt zu nutzen, koppelt man den Strahl des modengekoppelten Lasers am besten in eine einmodige Glasfaser [59]. Dadurch erreicht man nicht nur die zeitliche Fokussierung der Strahlleistung sondern auch die räumliche Fokussierung über eine längere Strecke. Das Ergebnis einer solchen Kammverbreiterung ist in der Abbildung 4.4 dargestellt.

Allerdings war auch bei diesem einfachen Modell zunächst Skepsis angebracht, wenn es um die denkbar höchste Präzision geht. Aus diesem Grund haben wir das Experiment, das auf der linken Seite der Abbildung 4.2 dargestellt ist, mit dem durch die Glasfaser verbreiterten Frequenzkamm wiederholt [90]. Wir haben dabei Moden verwendet, die gar nicht vom Laser, sondern erst in der Glasfaser erzeugt wurden. Die aufgespannte Frequenzlücke betrug 44, 2 THz (von 850, 606 nm bis 972, 538 nm) und die erreichte Genauigkeit betrug, wegen der größeren Frequenzlücke, sogar $2,5 \times 10^{-18}$. Wie in den anderen Experimenten gab es keine statistisch signifikante Abweichung von der perfekten Äquidistanz der Moden.

5. Spektroskopie an Cäsium

Selbst ohne die Möglichkeit, die Kamm-Offsetfrequenz ω_{CE} zu messen, waren die Kerr-Linsen-modengekoppelten Laser vielversprechende Kammgeneratoren. Es wären wahrscheinlich nur zwei bis drei Teilerstufen für eine Frequenzintervallteiler Kette, wie sie die Abbildung 2.4 zeigt, nötig gewesen, um eine absolute Frequenzmessung, also die Rückführung auf eine Cäsiumuhr, durchzuführen. Die erste optische Frequenzmessung relativ zu einer anderen genau bekannten optischen Frequenz, wurde daraufhin in unserem Labor durchgeführt [70]. Als interessanten Kandidaten für eine solche Messung wurde uns von Steve Chu (Stanford University, Stanford CA/USA) die ^{133}Cs D_1 Linie vorgeschlagen, die, wie im übernächsten Abschnitt erläutert, eine genaue Bestimmung der Feinstrukturkonstanten ermöglicht.

5.1 Messung Cäsium D_1 Linie

Die ersten optischen Frequenzmessungen mit einem Femtosekunden-Frequenzkamm wurden mit demselben Laser, wie im letzten Kapitel beschrieben, in unserem Labor durchgeführt. Dabei wurde der Frequenzabstand von 18 THz der Cäsium D_1 Linie bei 335 THz (895 nm) zu einem methanstabilisierten HeNe Laser bei 88, 4 THz (3, 39 μm) bestimmt. Dieser Laser wurde in der Gruppe von S. N. Bagayev (Institute of Laser Physics, Novosibirsk, Rußland) [91] gebaut und gehört zu den am besten reproduzierbaren Frequenzstandards im Optischen. Der Laser ist, im Gegensatz zu anderen Modellen dieses Typs, transportierbar und mehrfach an der *Physikalisch Technischen Bundesanstalt* in Braunschweig kalibriert worden. Daher ist seine Frequenz mit einer relativen Unsicherheit von $2,6 \times 10^{-13}$ bekannt. Wie in der Abbildung 5.1 dargestellt, wird zunächst die Frequenz dieses Lasers in zwei Schritten vervierfacht. Als Transferoszillator diente ein Farbzentrenlaser, der auf die zweite Harmonische des HeNe Lasers stabilisiert wurde und genügend Leistung für eine zweite Verdoppelung bereitstellte. Die naheliegende Methode wäre nun gewesen, den 848, 1 nm Diodenlaser auf die zweite Harmonische des Farbzentrenlasers zu stabilisieren. Weil jedoch zum Zeitpunkt des Experiments keine Methode zur Verfügung stand, die beiden Freiheitsgrade des Frequenzkamms ω_r und ω_{CE} unabhängig voneinander zu regeln, wurde ein etwas kompliziertes Verfahren verwendet. Die beiden Diodenlaser wurden zunächst auf zwei Moden des Frequenzkamms stabilisiert. Dann wurde das Schwebungssignal zwischen dem 848, 1 nm Diodenlaser und der zweiten Harmonischen des Farbzentrenlasers dazu verwendet, den Frequenzkamm, einschließlich der auf ihn stabilisierten

Diodenlaser, zu stabilisieren. Die Stellgröße im modengekoppelten Laser war hierbei wieder ein Resonatorspiegel, der auf einer Piezokeramik montiert war. Die durch ein Anlegen einer Spannung veränderbare Resonatorlänge bewirkt eine Verschiebung der Moden um einen Beitrag proportional zur Frequenz der Mode. Daher ergibt sich neben einer Verschiebung des gesamten Frequenzkamms auch eine Änderung der Pulswiederholrate. Während der letzte Effekt bereits im letzten Kapitel zur Stabilisierung der Pulswiederholrate eingesetzt wurde, ist die Verschiebung des Frequenzkamms hier der gewünschte Effekt. Weil diese Verschiebung gleichzeitig die Pulswiederholrate ändert, wurde diese während der Messung für jeden Datenpunkt mit aufgezeichnet. Die Regelbandbreite der Piezokeramik war auf etwa 10 kHz beschränkt. Um dennoch die Phase des 848,1 nm Diodenlasers auf die zweite Harmonische des Farbzentrenlasers stabilisieren zu können, wurde ein Phasendetektor, wie er im Abschnitt 2.2 beschrieben wurde, mit einem Detektionsbereich von ±2048 Zyklen verwendet. Realisiert wurde dieser, indem ein durch-128 Frequenzteiler zwischen dem Schwebungssignal und einem ±16-Zyklen Phasendetekotor [50] geschaltet wurde.

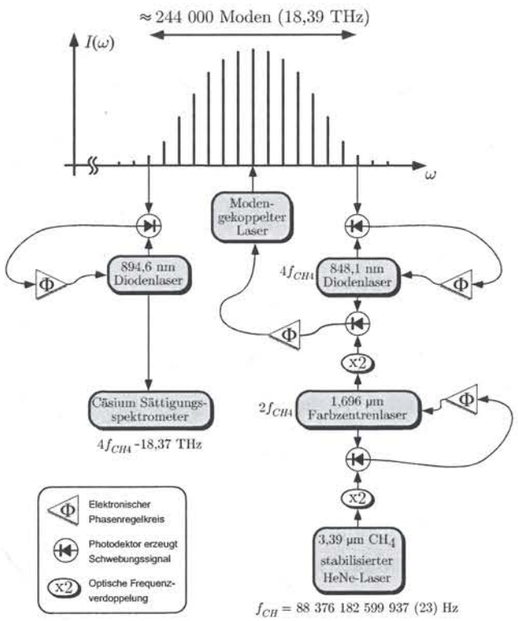


Abbildung 5.1: *Frequenzkette die zur Bestimmung der Frequenz der Cäsium D_1 Linie relativ zu einem methanstabilisierten HeNe Laser verwendet wurde. Eine Faser zur externen Kammverbreiterung wurde für dieses Experiment nicht benötigt.*

Mit allen Phasenregelkreisen aktiviert, steht die Frequenz des Spektroskopielasers f_{895} mit der Frequenz des methanstabilisierten HeNe Lasers f_{CH4} in folgender Beziehung:

$$f_{895} = 4f_{HeNe} - nf_r \pm 128f_{LO} - 280\ \text{MHz} \tag{5.1}$$

wobei $f_r = \omega_r/2\pi$ die Pulswiederholrate, f_{LO} die Lokaloszillatorfrequenz des Phasenregelkreises, der den Frequenzkamm regelt, ist. Der zusätzliche Frequenzoffset von 280 MHz setzt sich aus den restlichen Lokaloszillatoren zusammen.

Ein weiteres Problem bei dieser Messung bestand darin, dass der bis zu diesem Zeitpunkt genaueste Literaturwert der Cäsium D_1 Frequenz [92] eine Unsicherheit von 15 MHz hatte und damit sehr nah an $f_r/2 \approx 37$ MHz lag. Damit war die eindeutige Zuweisung der Modenzahl n aus dieser Messung zweifelhaft. Auch das Auflösungsvermögen eines zu diesem Zeitpunkt verwendeten Wavemeters war nicht ausreichend, um aus der Vermessung der Wellenlänge der Diodenlaser die Modenzahl eindeutig zu identifizieren[1].

Aus diesem Grund haben wir den Frequenzkamm mit einem Fabry-Pérot Interferometer gefiltert [69]. Das Interferometer wurde dabei so eingestellt, dass es einen freien Spektralbereich von genau $20f_r$ hatte. Dies ist durch Beobachtung der Transmission durch das Interferometer möglich, wie sie in der Abbildung 5.2 dargestellt ist. Wegen der großen Anzahl der Moden im Frequenzkamm, lässt sich die Intensität nach dem Interferometer durch die im Mittel transmittierte Leistung einer zufällig herausgegriffenen Mode beschreiben. Diese Zahl ist durch das Integral über eine Periode der normierten Transmissionsfunktion gegeben. Es ergibt sich unabhängig von der Länge des Interferometers eine konstante Transmission von $\pi/2F$, wobei F die Finesse des Interferometers ist. Dies gilt jedoch nicht, falls das Verhältnis des freien Spektralbreichs und des Modenabstands eine kleine ganze Zahl ist, wie es in der Abbildung 5.2 illustriert ist. Die Filter-Funktion des Interferometers ist auch im Zeitraum sehr anschaulich: Zwischen jedem Puls aus dem Laser läuft der im Interferometer gespeicherte Puls genau 20 mal um. Damit ergibt sich eine um diesen Faktor erhöhte Pulswiederholfrequenz am Ausgang des Interferometers. Dieser so erzeugte Frequenzkamm mit einem Modenabstand von 1,5 GHz, hatte wegen der schlechten Einkoppelung in das Interferometer, nicht genügend Leistung um die Diodenlaser darauf zu stabilisieren. Die Schwebungssignale konnten jedoch auf einem Radiofrequenz-Spektrumanalysator beobachtet werden. Daten wurden nur aufgenommen, wenn beide Schwebungssignale zwischen den Diodenlasern und dem 1,5 GHz Frequenzkamm sichtbar waren. Auf diese Weise war sichergestellt, dass n immer ein Vielfaches von 20 war. Dies war ausreichend, um zusammen mit unserem Wavemeter die Modenzahl eindeutig zu bestimmen.

[1] Die Modenzahl kann auch durch eine Änderung von f_r, um Δf_r und einer daraus resultierenden Verschiebung der Cäsium Resonanz um $n \times \Delta f_r$ bestimmt werden. Allerdings muss, um die Fälle n und $n+1$ unterscheiden zu können, Δf_r deutlich größer sein als die optische Resonanz aufgelöst werden kann [93]. Im vorliegenden Fall hätte dies Bedeutet, dass Δf_r mindestens einige MHz hätte betragen müssen. Dies wäre mit einer unpraktisch großen Änderung der Laserresonatorlänge verbunden gewesen.

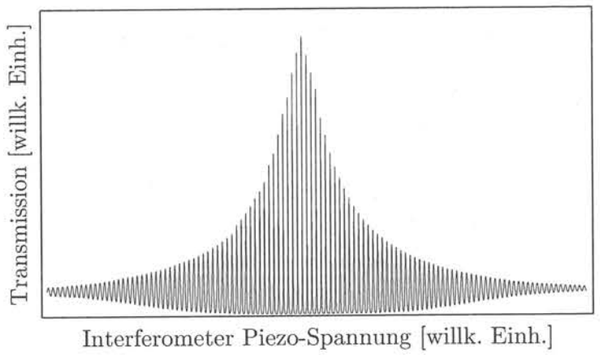


Abbildung 5.2: *Die gemessene Transmission eines Frequenzkamms mit $f_r \approx 75$ MHz durch ein Fabry-Pérot Interferomter mit einem freien Spektralbereich von $20 f_r \approx 1,5$ GHz als Funktion der Interferomter-Länge. Die maximale Transmission wird erreicht, wenn das Interferometer genau jede zwanzigste Mode passieren lässt. Beim Verstellen der Interferomter Länge um ein halben freien Spektralbereich befinden sich die Transmissions-Maxima genau zwischen den Moden des Frequenzkamms. Bei größerer Verstimmung ändert sich auch der freie Spektralbereich etwas. Daher kann es nicht mehr zu einer gleichzeitigen Transmission einer großen Anzahl von Moden kommen. Die Einhüllende des abgebildeten Transmissionsmusters reduziert sich auf den konstanten Wert $\pi/2F \approx 0.005$.*

Das Cäsium Spektrometer bestand aus einer magnetisch abgeschirmten 7,5 cm langen Glaszelle, die bei Raumtemperatur gehalten wurde. Um den Doppler-Effekt erster Ordnung zu unterdrücken, wurden zwei gegenläufige Strahlen mit etwa 10 μW/cm^2 verwendet und die Änderung der Transmission des einen Stahls durch die Anwesenheit des anderen Strahls detektiert (Sättigungsspektroskopie) [94]. Dies findet statt, falls der Pumpstrahl die Besetzungen innerhalb des Grundzustands Hyperfeinniveaus für Atome ändert, auf die auch der andere Strahl abgestimmt ist. Die gleichzeitige Resonanz findet für eine gleich große Dopplerverschiebung für beide Strahlen satt, das heißt, für Atome die in Richtung der Laserstrahlachse ruhen. Um ausschließlich diese ruhenden Atome zu detektieren, wurde mit einem "chopper" der Pumpstrahl periodisch unterbrochen und das Signal im anderen Strahl bei der "chopper"-Frequenz mit einem Lock-in Verstärker registriert. Um den Spektroskopielasers auf die Übergangsfrequenz zu stimmen bzw. diese abzutasten, wurde die Lokaloszillatorfrequenz f_{LO} durch gestimmt und das Vorzeichen nach Bedarf geändert. Insgesamt beobachtet man auf diese Weise vier Hyperfein Komponenten[2] des

[2]Die "cross-over" Resonanzen sind, wegen der großen Hyperfeinaufspaltung des angeregten Zustands, nicht sichtbar.

einzigen stabilen Isotops ^{133}Cs von denen eine, zusammen mit den beteiligten Niveaus, in der Abbildung 5.3 dargestellt ist.

Insgesamt wurden 112 Linien aller vier Hyperfeinkomponenten aufgenommen und daraus ein Wert für den Hyperfeinzentroid ausgerechnet:

$$f_{D1} = 335\,116\,048\,807\,(41)\ \text{kHz} \tag{5.2}$$

Die Unsicherheit von 41 kHz ist dominiert vom residuellen Zeeman-Effekt durch nicht vollständig abgeschirmte Magnetfelder. Dieser Wert stimmt gut mit einer älteren Messung [92] überein, ist jedoch fast drei Größenordnungen genauer [70]. Des Weiteren wurde aus den gemessenen Komponenten ein neuer Wert für die Hyperfeinaufspaltung des $6P_{1/2}$ abgeleitet:

$$\Delta f^{HFS}_{6P_{1/2}} = 1\,167\,688\,(81)\ \text{kHz} \tag{5.3}$$

der ebenfalls in guter Übereinstimmung mit einem früheren Wert [95] und etwa 4 mal so genau ist.

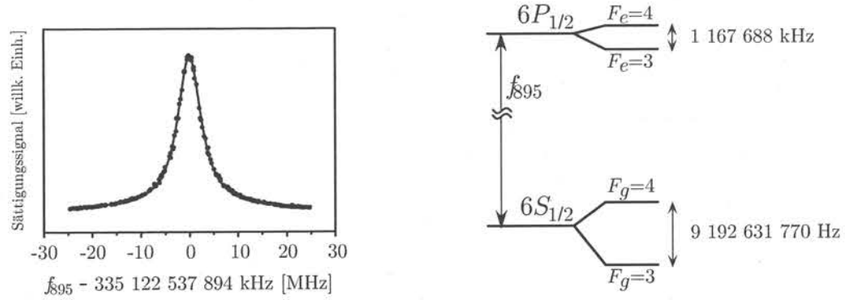


Abbildung 5.3: *Links: Die $F_g = 4 \rightarrow F_e = 4$ Hyerfeinkomponente. Die optische Frequenz wurde aus den Messdaten mit Hilfe von Gl. (5.1) bestimmt. Die durchgezogene Linie ist das Ergebnis der Anpassung einer Lorentz-Kurve an die Messdaten (ausgefüllte Kreise). Die beobachtete Linienbreite von 6 MHz ist etwas breiter als die natürliche Linienbreite. Rechts: Termschema der beteiligten Hyperfeinniveaus.*

5.2 Bestimmung der Feinstruktur Konstante

Der bisher genaueste Wert für die Feinstrukturkonstante α stammt aus einer Messung des g-Faktors des freien Elektrons. Diese Größe lässt sich auch mit Hilfe der Quantenelektro-

dynamik (QED) sehr genau berechnen. Das Ergebnis enthält die Feinstrukturkonstante als Parameter, woraus diese durch Anpassung an den experimentellen Wert bestimmt wird. Die Berechnungen sind sehr aufwendig und wurden bisher im Wesentlichen nur von einer Person durchgeführt [96], was problematisch im Hinblick auf die Verlässlichkeit des Wertes angesehen wird.

Weil die Feinstrukturkonstante für die Beschreibung aller elektromagnetischen Phänomene benötigt wird, gibt es naturgemäß eine Vielzahl von Möglichkeiten diese zu messen. Allerdings reicht bisher keine dieser Messmethoden an die Genauigkeit des $g-2$ Werts heran. Außerdem sind die Ergebnisse der verschiedenen Methoden nicht besonders konsistent. Daher wird seit einiger Zeit nach einer Methode gesucht, die Feinstrukturkonstante (mit nur einigen 10^{-9} relativen Fehler) und ohne aufwendige QED Berechnungen zu bestimmen. Dieses Problem ist jetzt unter Zuhilfenahme der im letzten Abschnitt beschriebenen Übergangsfrequenz der Cäsium D_1 Linie und der in Kapitel 8 dargestellten Messung der Rydberg-Konstante gelöst worden.

Die Feinstrukturkonstante und die Rydberg-Konstante sind über folgende Beziehung miteinander verknüpft:

$$R_\infty = \frac{m_e c \alpha^2}{2h} \tag{5.4}$$

Die Rydberg-Konstante ist bis auf $7,6 \times 10^{-12}$ bekannt (siehe Kapitel 8 oder Referenzen [97, 98]). Zusammen mit der Lichtgeschwindigkeit c, die ja einen definierten Wert besitzt, ist sie, gemessen am zu erwartenden Fehler in α, quasi unendlich genau bekannt. QED-Rechnungen gehen in dieser Auswertung beim Berechnen des Zusammenhangs zwischen den Wasserstoff-Energien und der Rydberg-Konstante ein. Diese sind jedoch auf dem benötigten Niveau an Präzision von einer Reihe von Autoren bestens verifiziert. Die Idee ist, m_e/h zu messen und dann α aus der Rydberg-Konstante zu bestimmen. Weil sich Massenverhältnisse von atomaren Partikeln sehr präzise durch ihre Zyklotron-Frequenz in Penningfallen bestimmen lassen [99, 98], kann statt der Elektronmasse auch das Verhältnis einer anderen atomaren Masse zum Planck'schen Wirkungsquantum gemessen werden. Dieses Verhältnis wird für das Cäsium Atom in der Gruppe von S. Chu mit Hilfe eines Atominterferometers bestimmt [100, 101, 102]. Das Ergebnis dieser Messung ist die Rückstoßverstimmung[3] der D_1 Linie $f_{rec} = f_{D1}^2 h/2m_{Cs}c^2$, welche neben dem gewünschten Wert für $2m_{Cs}/h$ auch noch die Übergangsfrequenz f_{D1} aus Gl. (5.2) enthält. Damit ergibt sich der folgende Ausdruck für α:

$$\alpha^2 = \frac{2R_\infty}{c}\frac{h}{m_e} = 2R_\infty \times \frac{2cf_{rec}}{f_{D_1}^2} \times \frac{m_p}{m_e} \times \frac{m_{Cs}}{m_p} \tag{5.5}$$

[3]Die Energie für den Rückstoß des Atoms beim Übertragen des Photonenimpulses bei der Absorption, speist sich aus der atomaren Übergangsenergie. Letztere erscheint somit bei einem freien Atom um die Rückstoßenergie verringert.

Bemerkenswert daran ist nun, dass jeder Term auf der rechten Seite sich einzig aus Frequenzmessungen ableitet und somit, wie in der Einleitung erläutert, ein sehr hohes Präzisionspotenzial zu erwarten ist. Nach unserer Vermessung der Cäsium D_1 Resonanz und einer genauen Bestimmung des Massenverhältnises m_{Cs}/m_p [99], ist die dominierende Unsicherheit nun durch die Messung der Rückstoßverstimmung gegeben. Mit dem bisher genauesten Wert für f_{rec} ergibt sich das in der Abbildung 5.4 dargestellte Bild.

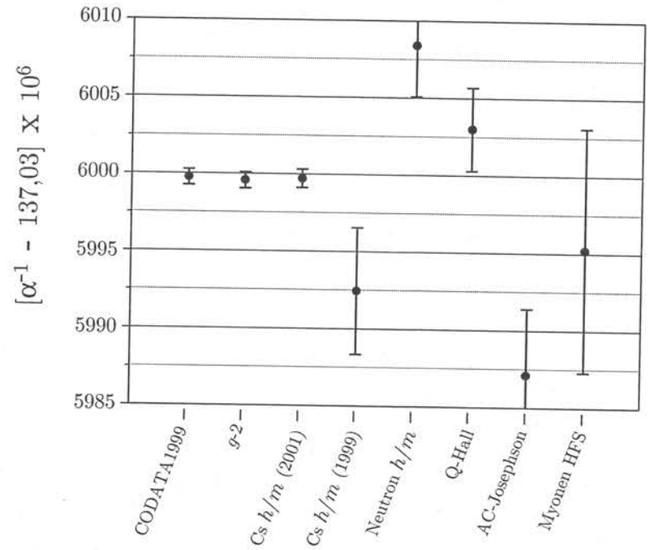


Abbildung 5.4: *Die Feinstrukturkonstante, gewonnen mit verschiedenen Messmethoden [98]. Der von CODATA99 empfohlene Wert ist im Wesentlichen identisch mit dem aus der Messung des g-Faktors des freien Elektrons und Positrons. Der nach Gl. (5.5) bestimmte Wert aus m_{Cs}/h ergibt sich aus der bisher genauesten Messung von f_{rec} [100] zu* 137,035 999 71 (60) *und ist damit die erste unabhängige Bestätigung des $g-2$ Werts mit vergleichbarer Genauigkeit. Der 1999er Wert stammt aus der hier beschriebenen Arbeit [70] und der Wert von 2001 stammt aus der Doktorarbeit von J. Hensley [100]. Andere Messungen gehen auf die Bestimmung m_n/h für Neutronen, den Quanten-Hall Effekt, den AC-Josephson Effekt und der Hyperfeinstruktur des Myoniums zurück [98].*

6. Spektroskopie an einzelnen ^{133}In Ionen

6.1 Messung des $5s^2\ ^1S_0 \rightarrow 5s5p\ ^3P_0$ Übergangs in $^{133}In^+$

Durch die im Abschnitt 4.4 beschriebene Kammverbreiterung in einer einmodigen Glasfaser (siehe Abbildung 4.4), wurden mit dem Aufbau in Abbildung 5.1 neue Frequenzen zugänglich, die bis zu 50 THz von der vierten Harmonischen des methanstabilisierten He-Ne Laser entfernt liegen. Auf diese Weise wurde der so genannte Uhrenübergang in einem einzelnen in einer Paul-Straubel Falle gespeicherten Indium Ion vermessen [103], das in der Gruppe von H. Walther (ebenfalls am MPI für Quantenoptik) betrieben wird [6].

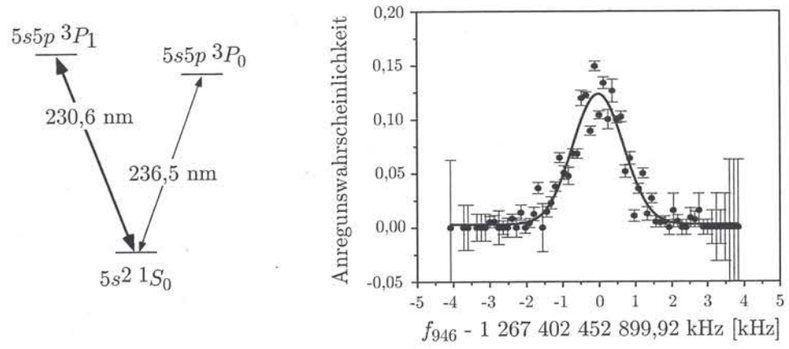


Abbildung 6.1: *Links: Der verwendete Teil das Niveau-Schemas des $^{115}In^+$ Ions. Weil der Hüllendrehimpuls verschwindet gibt es trotz eines Kernspins von $I = 9/2$ keine Hyperfeinaufspaltung. Der starke Übergang bei $260,3$ nm wird zum Kühlen des Ions verwendet und der schmale, Dipol-verbotene Übergang bei $236,5$ nm dient als optische Referenz Frequenz (Uhrenübergang). Rechts: Gemessene Anregungswahrscheinlichkeit pro 30 Hz Intervall während eines 15 ms dauernden Anregungsversuchs bei 1 mW/cm^2 mit angepasster Gauß-Funktion.*

Die Abbildung 6.1 zeigt auf der linken Seite das Termschema der verwendeten Niveaus des Ions, welches mit Hilfe des relativ starken Kühlübergangs ($5s^2\ ^1S_0 \rightarrow 5s5p\ ^3P_1$) in

den quantenmechanischen Grundzustand der Falle gekühlt wird. Der schwache und damit sehr scharfe (0,8 Hz natürliche Linienbreite) Uhrenübergang[1] wird mit einem 946,2 nm Nd:YAG Laser angeregt, welcher zu diesem Zweck in der Frequenz vervierfacht wird. Ein Übergang zu dem metastabilen $5s5p\ ^3P_0$ Niveau wird äußerst sensitiv, wie dies bei nur einem Ion geboten ist, mit der so genannten "shelving"-Technik [5] durch das Ausbleiben der sehr zahlreichen Photonen, die auf dem Kühlübergang gestreut werden, detektiert. Um den Uhrenübergang relativ zu unserem methanstabilisierten HeNe Laser mit dem in der Abbildung 5.1 dargestellten Aufbaus zu messen, wurde der 894,6 nm Diodenlaser durch einen Diodenlaser bei 946,2 nm ersetzt, welcher mit dem Nd:YAG Laser zur Schwebung gebracht wurde.

Die Abwesenheit der Hyperfeinwechselwirkung macht die Verwendung eines Rückpump-Lasers überflüssig. Ein weiterer großer Vorteil dieses Ions, ist die Abwesenheit der so genannten Quadrupolverschiebung, die bei anderen als Frequenzstandard verwendeten Ionen, durch Wechselwirkung des elektrischen Quadrupolmoments des oberen Uhrenniveaus mit dem nicht 100% kompensierten Feldgradienten am Speicherort des Ions, verursacht wird. Weil das metastabile Niveau einen verschwindenden Gesamtdrehimpuls hat, kann es auch kein Quadrupolmoment besitzen.

Die in der Abbildung 6.1 dargestellte Linie (Histogramm der Anregungswahrscheinlichkeiten), zeigt eine Linienbreite von 1,7 kHz und eine Linienform die in etwa einer Gauß-Funktion entspricht. Es kann davon ausgegangen werden, dass dies auf den verwendeten Uhrenlaser, der in der Zwischenzeit erheblich verbessert wurde [104], zurück zu führen ist. Um die Linienmitte und deren Unsicherheit mit Hilfe des Verfahrens von Levenberg-Marquardt zu erhalten, muss die Unsicherheit eines jeden Messpunkts bekannt sein. Weil die Anregungswahrscheinlichkeiten durch das Poisson-verteilte Schrotrauschen begrenzt ist, ergibt sich die Unsicherheit als die Wurzel der Anregungswahrscheinlichkeit. Für diese Zuordnung funktioniert leider kein Fit-Verfahren, das das Gauß'sche Fehlerquadrat minimiert, weil die Messpunkte ohne beobachtete Anregung (weit weg von der Linienmitte) eine Unsicherheit von Null bekommen, obwohl diese keine Information über die Lage der Linienmitte enthalten[2].

Um dieses Problem zu lösen, wurde der Unsicherheit der Messpunkte in Abbildung 6.1 als die inverse Zahl der Anregungsversuche in einem 30 Hz Intervall festgelegt[3]. Dieses Verfahren liefert zwar nicht die richtig skalierte Unsicherheit der Linienmitte, führt aber zu einer vernünftigen Wichtung der Datenpunkte. Mit insgesamt 21 Linien, wie sie die

[1] Diese Bezeichnung wird im Kapitel 10 klar werden.

[2] Wie man korrekt Poissonverteilte Messwerte für einen Fit wichtet, steht zum Beispiel in Referenz [105] auf Seite 111.

[3] Daher reichen die Fehlerbalken in Abbildung 6.1 bis zu negativen Anregungswahrscheinlichkeiten.

Abbildung 6.1 zeigt, ergab sich ein Mittelwert für den Uhrenübergang von [103]:

$$f_{In} = 1\ 267\ 402\ 452\ 899,92\ (23)\ \text{kHz} \tag{6.1}$$

Die Unsicherheit von 230 Hz berechnet sich zum einen Teil aus der Streuung der 21 Linienmitten, welche durch die Reproduzierbarkeit des HeNe Standards und der endlichen Statistik der Quantensprünge verursacht wurde, und zum anderen Teil aus der Unsicherheit, mit der die Frequenz des HeNe Standards bekannt war[4]. Systematische Effekte des Ionenstandards sind dagegen völlig zu vernachlässigen. Diese Messung war damit mehr als zwei Größenordnungen genauer als eine frühere Messung, die wir mit einem Jod-Stabilisierten HeNe Laser und einem elektrooptischen Frequenzkamm Generator durchgeführt hatten [106].

[4] Dieser Laser wurde nach den Arbeiten an Cäsium mit dem in Kapitel 8 beschriebenem Experiment neu kalibriert.

7. Der erste optische Synthesizer

7.1 Kontrolle des Frequenzkamms

Um den Frequenzkamm absolut zu stabilisieren, muss nach Gl. (3.5) die Repetitionsfrequenz ω_r und ω_{CE} unabhängig voneinander auf eine möglichst gut bekannte Radiofrequenz stabilisiert werden. Durch Ändern der Resonatorlänge werden beide Größen zu gleichen Anteilen geändert. Dies wird aus Gl. (3.12) ersichtlich, wenn man bedenkt, dass die zusätzliche Dispersion durch das Einfügen der zusätzlichen Strecke in Luft die CE-Phase φ und damit den CE-Phaseschlupf $\Delta\varphi$ unbeeinflusst lässt. Die Moden werden auf der Frequenzachse so verschoben, als seien sie auf einem bei 0 Hz befestigten Gummiband angebracht, an dem gezogen wird.

Um eine zweite verstellbare Größe zu erhalten, haben wir bei unserem Coherent Mira 900, der Prismen zur Kompensation der GVD verwendet (vergl. rechte Seite der Abbildung 3.4), den Spiegel am dispersiven Ende des Resonators leicht verkippt [107, 25]. Die Drehachse lag dabei in der Ebene der Spiegeloberfläche und senkrecht zur spektralen Aufweitung. Die Wirkung einer solchen Verkippung wird klar, wenn man sich den Ort der Achse auf der Spiegeloberfläche genau dort vorstellt, wo die Mode mit der Modenzahl n' reflektiert wird. In diesem Fall wird der Laserresonator für die Moden mit $n < n'$ kürzer und für $n > n'$ länger (oder umgekehrt, je nach Richtung der Verkippung), während sie für n' konstant bleibt. Wie in der Abbildung 7.1 dargestellt, bewegen sich die Moden auf der Frequenzachse dadurch wie die Rippen eines Akkordeonbalgs.

Im Zeitraum ist diese Wirkung ebenso verständlich, wenn man bedenkt, dass die Verkippung eine zusätzliche Umlauf-Phasenverschiebung, proportional zum Frequenzabstand zur Drehachse, bewirkt. Diese lineare spektrale Phase addiert sich direkt zur inversen Gruppengeschwindigkeit $v_g^{-1} = k'(\omega)$ (genauer Gruppenumlaufzeit) und damit auf die Repetitionsrate.

Es stellte sich heraus, dass bei dem verwendeten Laser, die zur Kontrolle des Frequenzkamms notwendige Verkippung, und der damit verbundenen Dejustage des Lasers kaum Auswirkungen auf die Ausgangsleistung hatte. Außerdem schien es nicht wichtig, dass die Drehachse des Spiegels tatsächlich in der Spiegeloberfläche liegt. Die beiden Freiheitsgrade, Resonatorlänge und Kippwinkel des Spiegels, sind zwar linear unabhängig, aber nicht

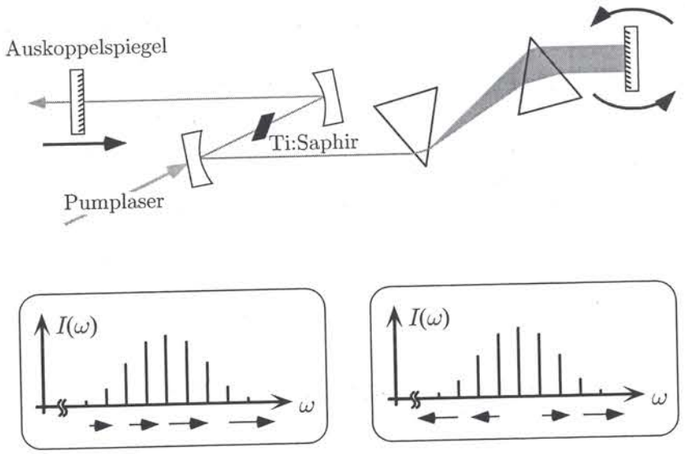


Abbildung 7.1: *Kontrolle der Repetitionsrate ω_r und der Kamm-Offsetfrequenz ω_{CE} nach Gl. (3.5) bei einem Kerr-Linsen-modengekoppelten Laser mit Prismen zu GVD Kompensation. Die Änderung der Resonatorlänge verschiebt alle Moden proportional zu ihrer Absolutfrequenz, während das Verkippen des Endspiegels am dispersiven Ende den Modenbstand ändert, wobei die Mode auf der Verkipp-Achse unbeeinflusst bleibt. Links unten ist die Wirkung der Verkürzung des Resonators auf die Moden schematisch dargestellt. Auf der rechten Seite ist die Wirkung der Verkippung zu sehen.*

orthogonal in dem Sinne, dass sie jeweils nur ω_r und ω_{CE} verstellen würden. Im Prinzip lässt sich diese Art der Steuerung auf elektronischem Wege orthogonalisieren [108]. Dies war jedoch in unserem Fall nicht notwendig, weil die Regelbandbreiten auf beiden Zweigen deutlich unterschiedlich gehalten wurden. Während die Kamm-Offsetfrequenz ω_{CE} relativ schnellen Schwankungen, deren Ursache noch nicht abschließend geklärt werden konnte, unterworfen ist, ist die Repetitionsrate von sich aus sehr stabil, so dass eine schnelle Regelung dort nur Rauschen des Lokaloszillators auf den Laser übertragen würde. Wir haben aus diesem Grund die Regelbandbreite des Kippspiegels, mit dem die Repetitionsrate stabilisiert wurde, auf etwa 100 Hz begrenzt. Um das Rauschen des Lokaloszillators weiter zu reduzieren, wurde nicht die Repetitionsrate direkt, sondern eine hohe Harmonische davon (meist die 100-ste bei 15,2 GHz) stabilisiert. Bei eingeschalteter Regelung der Repetitionsrate verschiebt dann die Änderung der Resonatorlänge den Frequenzkamm ohne den Modenabstand zu ändern. Diese Regelung hatte eine Bandbreite von einigen kHz. Die Wechselwirkung der beiden Regelkreise erwies sich, wegen der sehr unterschiedlichen Bandbreiten, als wenig störend.

7.2 Interferometrische Bestimmung des CE-Phasenschlupfs

Mit den bis hierher beschriebenen Techniken ist es zwar möglich, die Repetitionsrate ω_r und die Kamm-Offsetfrequenz ω_{CE} (nach Gl. (3.5)) zu stellen, messen aber lässt sich nur die Repetitionsrate. In der Tat stellte die Messung der Kamm-Offsetfrequenz eine große Herausforderung seit dem Beginn der Arbeiten an Femtosekunden-Frequenzkämmen in unserem Labor in Garching dar.

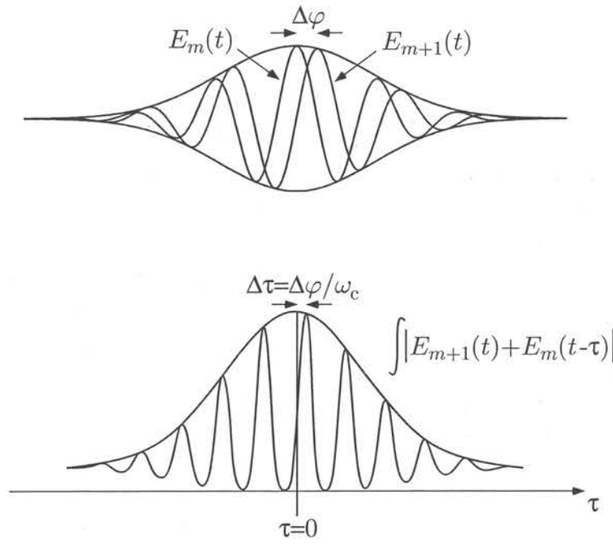


Abbildung 7.2: *Durch Messung der Intensitätsautokorrelation von aufeinander folgenden Pulsen (Pulse m und $m+1$) kann der Puls-zu-Puls CE-Phasenschlupf $\Delta\varphi$ als Verschiebung des Interferenzmusters gegenüber seiner Einhüllenden gemessen werden. Oben: zwei aufeinander folgende Pulse. Unten: deren Korrelation als Funktion der zeitlichen Verzögerung τ. Näheres in Referenz [109].*

Der Puls-zu-Puls CE-Phasenschlupf $\Delta\varphi$, und damit nach Gl. (3.12) im Prinzip auch die Kamm-Offsetfrequenz ω_{CE}, lässt sich mit Hilfe eines Kreuzkorrelators messen [109]. Dabei wird jeder Puls mit seinem Nachfolger und einer einstellbaren Verzögerung τ in einem nichtlinearen Kristall überlagert, der ein Signal proportional zum Quadrat der elektrischen Feldstärke erzeugt. Dieses Signal wird von einem Photodetektor aufgefangen, der dieses noch einmal quadriert. Für $\Delta\varphi = 0$, also Pulse mit identischem elektrischen Feld, ergibt sich die konventionelle symmetrische Intensitätsautokorrelations-Funktion. Für andere Werte verschieben sich, wie in der Abbildung 7.2 dargestellt, die Maxima der

Korrelationsfunktion gegenüber ihrer Einhüllenden. Mit einem solchen Kreuzkorrelator lässt sich also im Prinzip der Puls-zu-Puls CE-Phasenschlupf $\Delta\varphi$, und damit $\omega_{CE} = \Delta\varphi/T$ messen. Die Methode eignet sich jedoch nicht für hoch präzise Anwendungen wie das folgende Beispiel erläutert: Sollte etwa diese Verschiebung mit einer relativen Unsicherheit nur 10^{-3} gemessen werden können[1], so würde dies bei einer Repetitionsrate von 100 MHz gemäß $\omega_n = (n + \Delta\varphi/2\pi)\omega_r$ immerhin zu einer Unsicherheit der ω_n von 100 kHz führen.

7.3 "self-referencing" des Frequenzkamms

Um die Kamm-Offsetfrequenz mit hoher Präzision zu bestimmen, ist es notwendig, diese direkt mit einem Radiofrequenzzähler zu messen. Dazu werden Frequenzlücken zwischen *verschiedenen* Harmonischen *desselben* Lasers vermessen [29]. In der einfachsten Form wäre dies die Differenzfrequenz zwischen einem Laser ω und seiner eigenen Harmonischen 2ω. Wegen $2\omega - \omega = \omega$ ist damit eine Absolutfrequenz auf eine Frequenzlücke abgebildet worden. Die Idee geht im Wesentlichen auf einen älteren Vorschlag zurück [61, 110], der in der Abbildung 2.4 bereits dargestellt wurde. Das Problem bei dieser Variante ist offensichtlich, dass ein Frequenzkamm mit einer ganzen optischen Oktave als Breite benötigt wird.

Eine andere Methode wäre die Messung der Frequenzlücke zwischen ω_{aux} und $\omega_{aux} + \omega$, wobei ω_{aux} von einem zusätzlichen Laser emittiert wird, dessen Frequenz nicht bekannt sein muss [70]. Auch hier muss die Breite des Frequenzkamms so groß wie die zu messende Frequenz sein.

Eine etwas kompliziertere Variante, die aber dafür diese Einschränkung nicht besitzt, ist zum ersten Mal in unserem Labor, mit dem im Abschnitt 4.4 beschriebenen, etwa 50 THz breiten Frequenzkamm (Coherent Mira 900 mit einmoden Glasfaser), realisiert worden [20, 22, 1]. Wie in der Abbildung 7.3 vereinfacht dargestellt, wird zunächst von einem infraroten HeNe Laser bei der Frequenz ω_{HeNe} durch zweifache Frequenzverdoppelung die vierte Harmonische $4\omega_{HeNe}$ gebildet. Dieser Teil des Apparats ist identisch mit dem im Abschnitt 5.1 besprochenen, der zur Messung der Cäsium D_1 Resonanz eingesetzt wurde (vergleiche Abbildung 5.1). Im Unterschied zu diesem Experiment wurde der NeHe Laser jedoch nicht auf eine Methan-Resonanz stabilisiert, aber auf seine vierte Harmonische wurde nach wie vor eine Mode des Frequenzkamms phasenstabilisiert. Dies wurde durch das Regeln der Resonatorlänge erreicht, während die Pulswiederholrate mit dem Verkippen des Endspiegels auf eine Cäsiumuhr stabilisiert wurde (siehe Abbildung 7.1). Eine weitere Mode in der Nähe von $3,5\omega_{HeNe}$ wurde dann zu etwa $7\omega_{HeNe}$ frequenzverdoppelt. Danach wurde eine optische Intervallteilerstufe (ovales Symbol) verwendet, um

[1] Dies ist höchstens für sehr kurze Pulse realistisch.

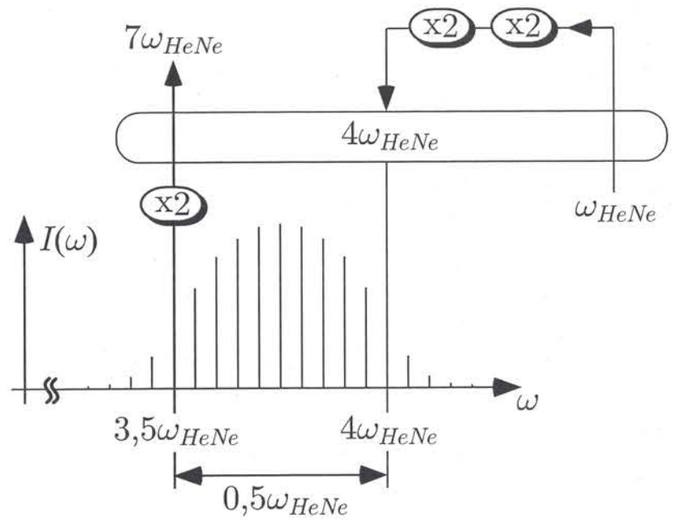


Abbildung 7.3: *Schema des ersten optischen Synthesizers. Es werden verschiedene Harmonische des infraroten (3, 39 μm) HeNe Lasers mit der Frequenz $\omega_{HeNe} \approx 2\pi \times 88,4$ THz gebildet. Der Frequenzunterschied zwischen dem 4-fachen und dem 3,5-fachen von ω_{HeNe} wird mit einem Frequenzkamm bestimmt. Damit ist die Frequenz $0,5\omega_{HeNe}$ auf die Atomuhr, welche den Modenabstand kontrolliert, zurückgeführt. Nachdem $0,5\omega_{HeNe}$ bekannt ist, ist auch ω_{HeNe} bekannt und die Frequenzen aller Moden im Frequenzkamm, die um ein Vielfaches des Modenabstands von $4\omega_{HeNe}$ versetzt sind. Der komplette Aufbau mit allen beteiligten Lasern ist in Anhang 13.1 dargestellt.*

die Frequenzen ω_{HeNe}, $4\omega_{HeNe}$ und $7\omega_{HeNe}$ auf exakt dieses Verhältnis festzulegen (siehe Abbildung 2.3). Dies geschah, indem der HeNe-Laser geregelt wurde. Damit ist der Kreis geschlossen und es gibt keinen frei laufenden Laser im System. Die Frequenzlücke $4\omega_{HeNe} - 3,5\omega_{HeNe} = 0,5\omega_{HeNe}$ wird in diesem Fall durch den Frequenzkamm auf die Atomuhr stabilisiert. Mit $0,5\omega_{HeNe}$ ist auch ω_{HeNe} sowie alle Moden des Frequenzkamms, die sich ja genau um Vielfache der Pulswiederholrate von ω_{HeNe} unterscheiden, auf die Atomuhr phasenstabilisiert.

Damit war es zum ersten Mal gelungen, mit einem modengekoppelten Laser eine phasenkohärente Verbindung zwischen dem Radiofrequenzbereich und dem Optischen herzustellen. Darüber hinaus standen etwa 600 000 Moden des Frequenzkamms zur Verfügung,

Wasserstoff-Spektrometer durchgeführt. Dieses besteht aus einem Farbstofflaser, dessen frequenzverdoppeltes Licht den $1S-2S$-Übergang in einem Doppler-freien Zweiphotonen-Prozess anregt [112] (siehe Abbildung 8.1). 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 auf einen optischen Resonator mit sehr hoher Güte stabilisiert. Mit Hilfe eines akusto-optischen Modulators (AOM) lässt sich der Farbstofflaser relativ zum Resonator verstimmen.

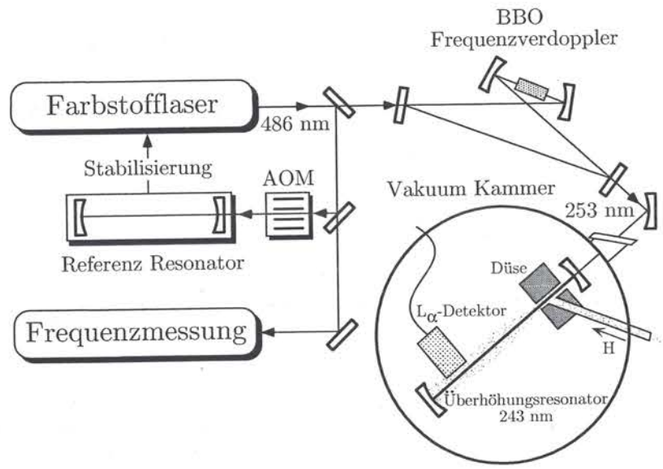


Abbildung 8.1: *Schema des Wasserstoff-Spektrometers zur Zweiphotonen-Anregung der $1S-2S$-Resonanz bei 243 nm. Die Atome treten aus einer gekühlten Düse aus und fliegen kollinear mit der stehenden Welle im Überhöhungsresonator für den Laserstrahl. Zur Detektion der metastabilen $2S$-Atome wurden diese mit einem elektrischen Quench-Feld mit dem schnell zerfallenden $2P_{1/2}$ Zustand gemischt, wodurch sie ein Lyman-α-Photon ($1S-2P$-Übergang) emittieren.*

Um eine in 1. Ordnung Doppler-freie Linie zu erhalten, werden zwei gegenläufige Laserstrahlen mit der jeweils halben Übergangsfrequenz verwendet. Um auch den Doppler-Effekt 2. Ordnung zu reduzieren werden die langsamen Atome im Strahl selektiv detektiert, indem die Fluoreszenz aus dem $2S$ Niveau erst nach dem Ablauf einer Zeitspanne τ nach dem Ausschalten des anregenden Lichts detektiert wird. Deshalb können nur Atome, die langsamer als $v = L/\tau$ sind, wobei L die Flugstrecke von der Düse zum Detektor ($L = 133$ mm) ist, zum Signal beitragen. Durch diese Selektion der kalten Atome wird außerdem die Durchflugsverbreiterung reduziert. Um eine von Streumagnetfeldern unabhängige Linie zu erhalten, wird die $F = 1, M_F = \pm 1 \rightarrow F = 1, M_F = \pm 1$ Komponente,

die mit den Zweiphotonen-Auswahlregeln verträglich ist, angeregt. Für diese Komponente besitzt der angeregte und der Grundzustand dieselbe Magnetfeldabhängigkeit. Die größte systematische Verschiebung der Linienmitte wird durch den AC-Stark Effekt verursacht, so dass für eine Reihe von Laserintensitäten gemessen und das Ergebnis zur Laserleistung Null extrapoliert wurde.

Die Absolutfrequenzmessung wurde mit dem optischen Synthesizer in Abbildung 7.3 durchgeführt. Wie schon aus Abbildung 2.1 ersichtlich, entspricht die Frequenz des Farbstofflasers in etwa der siebten Harmonischen des HeNe-Lasers $7f$. Wegen der Abweichung von etwa 2 THz musste jedoch der Aufbau in Abbildung 7.3 etwas modifiziert werden. Die meisten Details sind in der Referenz [22] dargestellt. Der Vollständigkeit wegen ist jedoch im Anhang 13.2 noch einmal der komplette Synthesizer mit allen verwendeten Lasern dargestellt. Es wurden insgesamt zwei Messreihen durchgeführt.

8.2 Messung mit einer kommerziellen Atomuhr

Bei der ersten Messreihe war der Frequenzkamm auf eine kommerzielle Cäsiumuhr (Hewlett Packard, Model 5071A) stabilisiert. Um die Genauigkeit dieser Uhr zu erhöhen, wurde diese über einen längeren Zeitraum mit dem kurzzeitig instabilen aber über längere Zeiten sehr genauen Zeitsignal des "Global Positioning Systems" (GPS) verglichen. Mit der in 10 Tagen aufgenommenen Datenmenge von typischerweise 35 Linien und 900 Sekunden Daten pro Messtag, ergaben sich die größten Beiträge zur Messunsicherheit aus der Extrapolation zur verschwindenden Laserleistung und der statistischen Streuung der Linienmitten. Beide Effekte sind die Folge der begrenzte Kurzzeit-Stabilität der Atomuhr. Um diesen Einfluss zu reduzieren wurde, wie in der Abbildung 8.2 dargestellt, zur Auswertung der Daten zunächst die Absolutfrequenz des Lichts im Referenz-Resonators des Wasserstoff-Spektrometers bestimmt. Über die gleichzeitig aufgezeichnete Frequenz des akusto-optischen Modulators (AOM) kann diese für jeden Datenpunkt in die Frequenz des Farbstofflasers umgerechnet werden. In Abbildung 8.2 erkennt man die langsame Drift des Resonators und die Streuung der Messwerte durch begrenzten Kurzzeit-Stabilität der Atomuhr. Zur Auswertung wurde zunächst ein Polynom vierter Ordnug an die dargestellten Kurven gefittet. Dieses wurde dann zusammen mit den AOM-Frequenzen und den Zeitmarken, die zusammen mit der Lyman-α-Fluoreszenz aufgenommen wurden, verwendet, um die Absolutfrequenz des Farbstofflasers zu berechnen. Auf diese Weise wird der Referenz-Resonator verwendet, um über die Kurzzeit-Schwankungen der Atomuhr zu mitteln. Er dient sozusagen als stabiles "Schwungrad". Rechnet man die Totzeit der Zähler ein, so ergibt sich im Optischen dieselbe Stabilität ($\sigma(\tau = 1\text{ sec}) = 6 \times 10^{-12}$) wie am Radiofrequenzende des optischen Synthesizers (die kommerzielle Cäsiumuhr ist auf $\sigma(\tau = 1\text{ sec}) = 5 \times 10^{-12}$ spezifiziert). Damit ist gezeigt, dass dieser optische Synthesizer, im Vergleich zu unserer kommerziellen Atomuhr, nur einen zu vernachlässigenden Beitrag

zur Instabilität während einer Sekunde Messzeit beiträgt, wenn deren Frequenz bis ins Optische multipliziert wird. Nach der Mittelung aller Daten ergab sich für das Hyperfeinzentroid des $1S-2S$-Übergangs $f_{1S2S} = 2\,466\,061\,413\,187,29(37)$ kHz [22, 113].

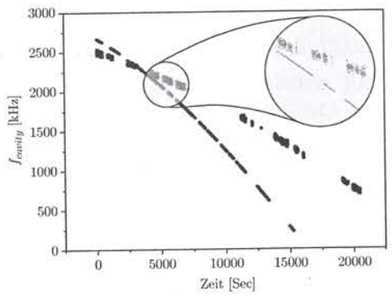


Abbildung 8.2: *Die Absolutfrequenz des Lichts im Referenz-Resonator (umgerechnet auf* 121 *nm) gemessen mit einer Zählertorzeit von einer Sekunde. Eine der Kurven wurde mit einer kommerziellen Atomuhr, die andere mit der im nächsten Abschnitt beschriebenen wesentlich stabileren Fontänenuhr aufgenommen. In der Vergrößerung erkennt man die deutlich unterschiedliche Streuung von* 15,4 *kHz bzw.* 740 *Hz (um ein gefittetes Polynom vierter Ordnug). Zur besseren Darstellung wurde von den Frequenzen* 2 466 063 158 100 *kHz (HP-Uhr) bzw.* 2 466 063 484 800 *kHz (Fontänenuhr) abgezogen.*

8.3 Messung mit einer Fontänenuhr

Um die Messgenauigkeit weiter zu steigern ist eine zweite Messreihe mit einer der genauesten Uhren der Welt, einer Cäsiumfontänenuhr, durchgeführt worden. Diese Uhr, welche in der Abbildung 13.3 zu sehen ist, wurde in der Gruppe von A. Clairon am *Laboratoire Primaire du Temps et des Fréquences* (BNM-LPTF) in Paris entwickelt [51] und für diese Messung nach Garching transportiert. Während unsere kommerzielle Cäsiumuhr nur für unrealistisch lange Messzeiten das verrauschte GPS-Zeitsignal bis auf etwa 10^{-14} relativer Unsicherheit mitteln kann, erreicht die Fontänenuhr diese Marke bereits nach etwa 400 Sekunden. Zum Zeitpunkt der Messung war die Allan-Instabilität [52] $2\times10^{-13}(\mathrm{Hz}\,\tau)^{1/2}$, wobei τ die Mittelungszeit ist (siehe Abschnitt 2.3). Mit ihr konnte die Unsicherheit der $1S-2S$-Frequenz nochmal um eine Größenordnung reduziert werden.

Die Datenaufnahme war wie im letzten Abschnitt beschrieben. Die aus der Abbildung 8.2 abgeleitete Instabilität im Optischen beträgt 3×10^{-13} und ist damit sehr nah bei der unabhängig gemessenen Stabilität der Uhr von 2×10^{-13} für eine Mittelungszeit von einer Sekunde. Während im letzten Abschnitt Lorentz-Funktionen an die Linien zur Auswertung angefittet wurden, war dies bei der gesteigerten Genauigkeit nicht mehr ausreichend.

Daher wurde ein, von Andreas Huber entwickeltes Linienform-Modell, das mit 7 Parametern die Linien für 12 verschiedene Verzögerungszeiten τ_d gleichzeitig anfittet, eingesetzt. Damit ist es möglich, unter Vernachlässigung aller anderen Unsicherheiten, die ungestörte $1S-2S$-Übergangsfrequenz mit einer Unsicherheit von 20 Hz zu finden [112].

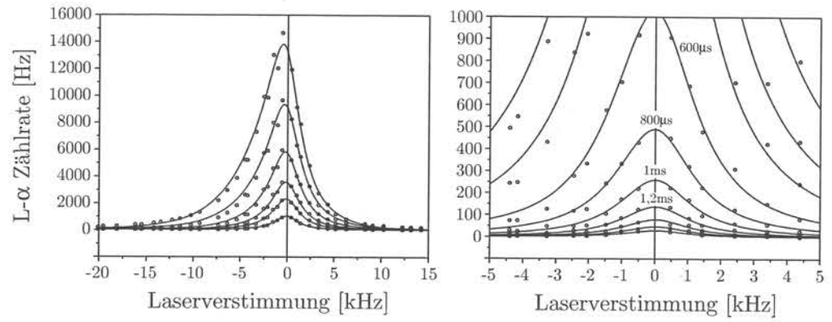


Abbildung 8.3: *Lyman-α Floureszens als Funktion der Laserfrequenz für verschiedene Verzögerungszeiten τ_d. Links: $\tau_d = 0, 100, 200, 300, 400$ und $600\mu s$ (von oben nach unten). Rechts: $\tau_d = 600, 800, 1000, 1200, 1400, 1600$ und $1800\mu s$. Man erkennt deutlich die Verringerung der Rotverschiebung durch den 2. Ordnung Doppler Effekt (Zeitdilatation) für größere Verzögerungen. Die eingezeichneten Kurven sind das Ergebnis eines Fits mit dem Linienform Modell von A. Huber, mit dessen Hilfe die ungestörte Übergangsfrequenz bestimmt wurde.*

Während der 10-tägigen Messphase wurden insgesamt 614 Linien, wie sie die Abbildung 8.3 zeigt, aufgenommen. Das Ergebnis für das Hyperfeinzentroid nach Mittelung aller Daten lautete [1]:

$$f_{1S2S} = 2\,466\,061\,413\,187\,103\,(46)\ \mathrm{Hz}$$

Die relative Unsicherheit der Fontänenuhr ist etwa 10^{-15} und die des optischen Synthesizers ist sogar noch kleiner, wie in Abschnitt 9.4 gezeigt wird. Daher ist die Messunsicherheit nun von der Wasserstoff-Spektrometrie dominiert. Der größte Beitrag von 36 Hz leitet sich aus der beobachteten Streuung der zu verschwindenden Laserleistung extrapolierten Linienmitten ab. Vermutlich ist dieser Effekt auf den relativ schnelldriftenden Referenz-Resonator und der damit verbundene Fehler in der Bestimmung der gemittelten Absolutfrequenz zurückzuführen. Der zweitgrößte Beitrag (20 Hz) ist die abgeschätzte Unsicherheit des Linienform-Modells.

In der Zwischenzeit sind von Marc Fischer, Claudia Niessl und Nicolai Kolachevski neue Resonatoren aufgebaut worden, die wesentlich stabiler sind. Außerdem wird an der Verbesserung des Linienform-Modells gearbeitet. In naher Zukunft ist daher eine Wiederholung

des Experiments geplant. Das Hauptinteresse gilt diesmal einer möglichen kleinen Änderung der $1S-2S$-Frequenz, die mit der Expansion des Universums zusammenhängen soll (siehe Kapitel 11). Als Beiprodukt der hier beschriebenen Messung wurde der methanstabilisierte HeNe Laser neu kalibriert[2]. Diese Kalibrierung stimmt bis auf $4,4 \times 10^{-13}$ mit einer älteren, die mit der harmonischen Frequenzkette der PTB durchgeführt wurde, überein. Daher stellt sie den ersten unabhängigen Test der neuen und alten Technik dar.

8.4 Rydberg-Konstante und Lamb-Veschiebung

Mit Hilfe von Übergangsfrequenzen im Wasserstoff lässt sich die Rydberg-Konstante und die Lamb-Verschiebung verschiedener Niveaus bestimmen. Während erstere einen wichtigen Eckpfeiler bei der Festlegung der wahrscheinlichsten Werte der Naturkonstanten, wie das durch eine Ausgleichsrechnung geschieht [115, 98], darstellt, liefert die $1S$-Lamb-Verschiebung einen der besten Tests der Quantenelektrodynamik (QED). Konventionell werden die Energien der Niveaus durch die Summe aus drei Termen beschrieben: Die Hyperfeinwechselwirkungen, welche für die die $1S$ und $2S$-Niveaus sehr genau bekannt sind, und die Dirac-Energien $R_\infty e(nl)$ [116], die alle Rückstoßkorrekturen[3] bis zur Ordnung $(Z\alpha)^4$ enthalten. Alles was nach Abzug dieser beiden Terme übrig bleibt ist per Definition die Lamb-Verschiebung L_{nl}. Dazu gehören neben den QED-Beiträgen (Zustandsabhängige Vakuum-Polarisation und Selbstenergie) auch Rückstoßkorrekturen höherer Ordnung und Kerngrößeneffekte. Die Lamb-Verschiebung der S-Zustände skaliert in etwa wie n^{-3} mit der Hauptquantenzahl und ist für P- und D-Zustände sehr viel kleiner. Aus diesem Grund ist die Lamb-Verschiebung des $1S$-Zustands die größte und damit auch interessanteste. Die Übergansfrequenzen der Hyperfeinzentroide im Wasserstoff, die bisher am genausten vermessen wurden, lassen sich durch folgende Gleichungen beschreiben:

$$\begin{aligned} f_{1S2S} &= R_\infty \left(e(2S) - e(1S)\right) + L_{2S} - L_{1S} \\ f_{2S8D} &= R_\infty \left(e(8D) - e(2S)\right) + L_{8D} - L_{2S} \\ f_{2S12D} &= R_\infty \left(e(12D) - e(2S)\right) + L_{12D} - L_{1S} \end{aligned} \tag{8.1}$$

Auf der linken Seite sind experimentelle Werte einzusetzen um einige der Größen auf der rechten Seite zu bestimmen. Welche dies sinnvollerweise sind, wird durch ihren gegenwärtigen Beitrag zur Unsicherheit bestimmt. Es stellt sich heraus, dass die Dirac-Energien, aufgrund der Unsicherheit[4] in R_∞, in etwa soviel zur gesamten Unsicherheit beitragen,

[2]Dieser wurde als Referenzwert für die vorher beschriebene Messung des Indium Uhrenübergangs (Abschnitt 6.1) verwendet.

[3]Anders als in der Schrödinger Theorie lässt sich in der Dirac Theorie die endliche Kernmasse nicht durch die Einführung der reduzierten Masse des Protons berücksichtigen. Deswegen wird gewöhnlich eine Entwicklung in Potenzen von $(Z\alpha)$ verwendet.

[4]R_∞ hat zwar eine relative Unsicherheit, die wesentlich kleiner als die der Lamb-Verschiebungen ist, aber der Beitrag der Dirac-Energie ist auch absolut gesehen sehr viel größer.

wie L_{2S} und L_{1S}. Die Terme L_{8D} und L_{12D} sind relativ klein und können daher auf relativ einfache Weise genügend genau berechnet werden. Mit dem Gleichungsystem (8.1) hat man also drei Gleichungen für drei "Unbekannte".

Durch die beschriebene Messung ist die $1S-2S$-Übergangsfrequenz nun mehr als zwei Größenordnungen genauer bekannt als die beiden anderen Übergangsfrequenzen, die in der Gruppe von Francois Biraben (ENS Paris) gemessen wurden [117, 118]. Diese dominieren somit den Fehler bei der Bestimmung der $1S$-Lamb-Verschiebung und der Rydberg-Konstante.

Neben den in Gl. (8.1) gemessenen Summen von Wasserstoff Energiebeiträgen gibt es noch andere experimentelle Werte:

- Die klassische Bestimmung der $2S$-Lamb-Verschiebung durch Radiofrequenz Übergänge: die Aufspaltungen $2S_{1/2} - 2P_{1/2}$ und $2S_{1/2} - 2P_{3/2}$ [119, 120, 121].

- Schwebungsfrequenzen, die nach der Schrödinger-Theorie verschwinden sollten, also genau 0 Hz ergeben sollten: $f_{2S4S} - 1/4 f_{1S2S}$, $f_{2S6S} - 1/4 f_{1S3S}$ und $f_{2S4P_{1/2}} - 1/4 f_{1S2S}$ [122, 123, 124].

- Die sehr genau gemessene Isotopieverschiebung des $1S-2S$-Übergans [114]. (siehe Abschnitt 8.5)

Außerdem lässt sich noch mit Hilfe der theoretisch relativ genau bekannten Kombinationen $L_{1S} - n^3 LnS$ [125][5] die $2S$-Lamb-Verschiebung aus den Gleichungen eliminieren. Somit lässt sich die $1S$-Lamb-Verschiebung zum ersten Mal mit höherer Genauigkeit ohne Radiofrequenzen auf rein optischem Wege bestimmen. Für alle soeben aufgezählten Werte, mit Ausnahme der $2S-2P$-Aufspaltungen, existieren auch Messungen an Deuterium. Insgesamt lassen sich also eine ganze Reihe von linearen Gleichungen wie Gl. (8.1) aufstellen. Die wahrscheinlichsten Werte der Unbekannten in einem solchen überbestimmten System ergeben sich durch eine Ausgleichsrechnung [115]. Das Ergebnis dieser Rechnung [97, 126] lautet für die $1S$-Lamb-Verschiebung:

$$L_{1S} = 8172,840\ (22)\ \text{MHz}$$

Der Vergleich mit dem theoretischen Wert [127] stellt einen der genauesten Tests der Quantenelektrodynamik dar. Unglücklicherweise geht in die Theorie der Proton-Ladungsradius ein, für den widersprüchliche Werte aus Elektronenstreuexperimenten in der Literatur existieren. Wie die Abbildung 8.4 zeigt, ist der theoretische Wert von 8172,731(40) MHz nur in moderater Übereinstimmung (2,4 kombinierte Standardabweichungen) mit den

[5]Wegen der $1/n^3$ Skalierung sind diese Kombinationen recht klein.

Berechnungen, falls der größte in der Literatur verfügbare Proton-Ladungsradius von $r_p = 0,862(12)$ fm [130] verwendet wird. Deutlich schlechter (5,7 kombinierte Standardabweichungen) ist die Übereinstimmung, falls der kleinste in der Literatur verfügbare Proton-Ladungsradius von $r_p = 0,805(11)$ fm [128] verwendet wird. Um diese unbefriedigende Situation zu ändern, werden derzeit Experimente zur genaueren Messung des Protonen Ladungsradius am Paul-Scherrer-Institut in Villingen/Schweiz vorbereitet [129].

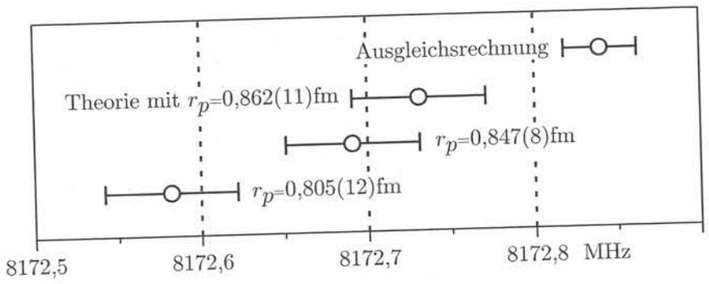


Abbildung 8.4: *Der experimentelle Wert der 1S-Lamb-Verschiebung, bestimmt aus allen verfügbaren Wasserstoffdaten durch eine Ausgleichsrechnung [126], im Vergleich mit den jüngsten theoretischen Werten [127], die sich für verschiedene Literaturwerte des Proton-Ladungsradius [128, 130, 131] ergeben. Glaubt man umgekehrt der QED, so lässt sich aus den Messungen ein Wert für den Proton Ladungsradius angeben: $r_p = 0,901(16)$ fm.*

Im Gegensatz zur Lamb-Verschiebung des $1S$-Niveaus, konnte die Rydberg-Konstante durch die Frequenzmessungen am Wasserstoffatom in den letzten Jahren wesentlich genauer bestimmt werden. Heute ist sie die am genauesten bekannte Naturkonstante. Sie spielt nicht nur in der Atomphysik eine zentrale Rolle, weil sie die Energieniveaus aller Atome skaliert, sondern legt durch Gl. (5.4) das Verhältnis anderer Naturkonstanten sehr genau fest (siehe Abschnitt 5.2). Aus diesem Grund ist sie der wichtigste Eckpfeiler zur Reduzierung der Unsicherheit der anderen Naturkonstanten [98]. Die Abbildung 8.5 zeigt den Fortschritt bei der Bestimmung seit der CODATA 1989 Empfehlung [132]. Der aktuelle Wert von

$$R_\infty = 10\,973\,731,568\,550\,(84)\ \mathrm{m}^{-1}$$

hat sich seit 1989 um mehr als zwei Größenordnungen verbessert und ist im Wesentlichen identisch mit dem 1999 vom CODATA Komitee empfohlenen Wert.

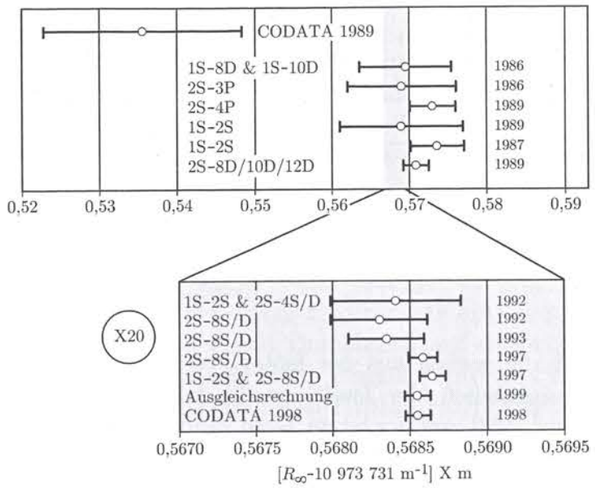


Abbildung 8.5: *Der experimentelle Wert der Rydberg-Konstante, wie er sich aus den Wasserstoff-Übergangsfrequenzen ergibt. Der genaueste Wert stammt aus der hier beschriebenen Ausgleichsrechnung und ist im Wesentlichen identisch mit der CODATA Empfehlung aus dem Jahre 1999 [98].*

8.5 Isotopieverschiebung und Deutron Strukturradius

Wie bereits im letzten Abschnitt angedeutet, wurde in unserem Labor auch die Isotopie-Verschiebung des $1S - 2S$-Übergangs zwischen Wasserstoff und Deuterium genau vermessen [114]. Aus diesem lässt sich die Größe des Deuterons, der Strukturradius, sehr präzise bestimmen. Als einfachster zusammengesetzter Kern ist dieser ein ideales Objekt für den Test kernphysikalischer Theorien [133].

Die Isotopie-Verschiebung des $1S - 2S$-Übergangs wurde noch vor der Einführung der modengekoppelten Laser mit einem elektrooptischen Frequenzkamm Generator, wie in Abschnitt 2.4 beschrieben wurde, gemessen. Das Ergebnis lautete damals [114]:

$$f_{iso} = 670\,994\,334,64\ (15)\ \mathrm{kHz}$$

Dieser Wert beinhaltet die Unterschiede der drei Beiträge zu den Energieniveaus, wie sie im letzte Abschnitt beschrieben wurden. Die Hyperfeinstruktur der beiden Isotope ist sehr genau bekannt und ist bereits vom angegebenen Wert abgezogen. Die Differenz der Dirac-Energien $R_\infty(e(2S) - e(1S))$ durch die unterschiedlichen Kernmassen von 671,004 GHz

ist der größte Beitrag und stimmt bereits bis auf $1,4 \times 10^{-5}$ mit der beobachteten Isotopieverschiebung überein. Von Gl. (8.5) abgezogen, bleibt der Unterschied der Lambverschiebungen der beiden Isotope (und der beteiligten Niveaus). Interessant für die weitere Auswertung ist der kerngrößenabhängige Beitrag davon. Dieser lässt sich extrahieren, indem alle anderen theoretischen Beiträge zur Isotopieverschiebung von dem gemessenen Wert abgezogen werden [114]. Es ergibt sich die Differenz der quadratischen Ladungsradien von Proton und Deuteron, welche sich mit der folgenden Formel in den Deuteron Strukturradius umrechnen lässt:

$$r_{d,str}^2 = (r_{d,ch}^2 - r_{p,ch}^2) - r_{n,ch}^2 - \frac{3\hbar^3}{4m_p^2c^2} \tag{8.2}$$

Der erste Term ist die soeben aus der Isotopieverschiebung abgeleitete Differenz der quadratischen Ladungsradien, der Zweite ist der relativ kleine Neutron Ladungsradius $r_{n,ch}^2 = -0.114(3)$ fm^2 [134] und der letzte Term kann aus der Masse des Protons m_p sehr genau berechnet werden. Seit der Veröffentlichung von Referenz [114] sind die Rechnungen von Krzysztof Pachucki und Saveli Karshenboim weiter verfeinert worden [135], so dass sich ein verbesserter Wert ergibt [97]:

$$r_{d,str} = 1,975\,44\,(82)\ \text{fm}$$

Dieser stimmt sehr gut mit quantenchromodynamischen Berechnungen von A. Buchmann überein $r_{d,str} = 1,9735(30)$ fm [133].

Traditioneller Weise wird der Ladungsradius des Deuterons, wie auch der des Protons, mit Elektronenstreuung bestimmt. Genau wie bei der Bestimmung des Proton Ladungsradius, und der daraus abgeleiteten $1S$-Lamb-Verschiebung, ergeben sich auch hier Inkonsistenzen. Der gegenwärtig genaueste Wert des Deuteron Strukturradius aus der Elektronenstreuung von $r_{d,str} = 1,953(3)$ fm [136], weicht um mehr als sieben kombinierte Standardabweichungen von dem hier abgeleiteten Wert ab. Eine erneute Auswertung aller zur Verfügung stehenden Daten zeigte daher auch Probleme bei der ursprünglichen Auswertung auf, und ergab einen wesentlich größeren Fehler [137], der alle bisherigen Messungen und den theoretischen Wert mit einschließt.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass es durch die hohe Präzision der optischen Frequenzmessungen nun möglich ist, winzige Effekte durch die involvierten Kerne genau genug aufzulösen um mit einem "table top" Experiment den Messfehler von großen Beschleuniger-Labors deutlich zu unterbieten.

9. Der kompakte optische Synthesizer

9.1 Externe Kammverbreiterung in mikrostrukturierten Fasern

Etwa zur Zeit der Durchführung der ersten Experimente mit Frequenzkämmen aus modengekoppelten Lasern kam es zu einem Durchbruch auf einem ganz anderen Gebiet. Bereits 1996 wurde in der Gruppe von Philip Russell (University of Bath, England) die mikrostrukturierte Glasfaser (auch photonische Kristall-Faser (PCF))[1] erfunden [138] aber erst drei Jahre später wurde bemerkt, dass diese mit Femtosekundenpulsen mit relativ niedriger Pulsenergie ein sehr breites Spektrum erzeugen kann [139, 140].

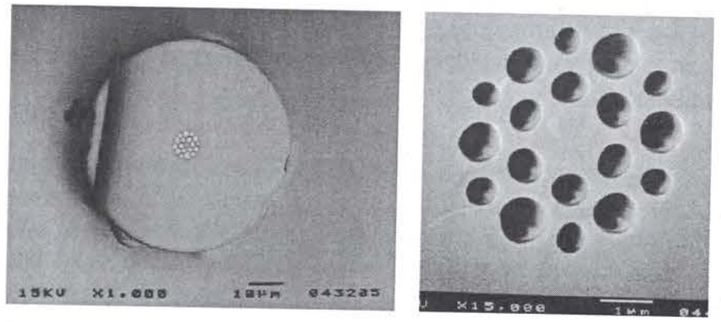


Abbildung 9.1: *Elektronenmikroskopische Aufnahme des Faserquerschnitts einer mikrostrukturierten Faser. Auf der rechten Seite erkennt man die vergrößerte Kernzone in der das Licht läuft. Die Luftröhrchen, die parallel zum Faserkern verlaufen und zum Teil in diesen hinein reichen, gestatten es, die Gruppengeschwindigkeitsdispersion $\partial^2 k/\partial\omega^2$ einzustellen. Mit freundlicher Genehmigung von J. Knight/University of Bath/England.*

Der in der Abbildung 9.1 dargestellte Querschnitt einer solchen Faser zeigt neben dem Faserkern angeordnete, mit Luft gefüllte Kanäle, die einen Teil des Strahls als evaneszente Welle führen. Durch diese Kanäle wird der effektive Brechungsindex herabgesetzt, so dass, genau wie bei einer gewöhnlichen Faser, das Licht durch Totalreflektion im Kern geführt

[1] Der Lichtleiteffekt bei diesen Fasern beruht nicht auf der Bragg-Reflektion an den Luftkanälen, wie der Name möglicherweise suggeriert.

wird. Im Gegensatz zu den gewöhnlichen Fasern, lassen sich jedoch bei einer mikrostrukturierten Faser die Dispersionseigenschaften innerhalb gewisser Grenzen einstellen. Insbesondere lassen diese sich so gestalten, dass die Pulse eines Titan-Saphir-Lasers sehr viel langsamer zerfließen, als in gewöhnlichen Einmoden-Fasern. Die hohe Spitzenintensität bleibt dann auf einem längeren Faserstück erhalten und die ohnehin schon hohe Intensität in dem kleinen Faserkern führt zur effizienteren Selbstphasenmodulation. Obwohl diese Erklärung naheliegend erscheint, wird die theoretische Modellierung der spektralen Verbreiterung noch diskutiert [141, 142, 143, 144].

Bei unseren ersten Versuchen mit einer solchen Faser, durch die wir die Pulse unseres Mira 900 Systems geleitet haben, stellten wir fest, dass sich zwar das Spektrum nach nur wenigen Zentimetern auf fast zwei optische Oktaven verbreiterte (450 nm bis 1400 nm), wie das auch schon von den Entwicklern dieser Faser beobachtet wurde [139, 140]. Allerdings waren in diesem sehr breiten Spektrum keine detektierbaren Moden zu finden [90]. Mit einem Diodenlaser, der innerhalb des Spektrums des Mira 900 Systems emittierte, konnten Schwebungssignale nur so lange beobachtet werden, bis sich durch Erhöhung der Einkoppelleistung in die mikrostrukturierte Faser eine merkliche spektrale Verbreiterung ergab. Dieses Verhalten ist noch nicht abschließend erklärt. Möglicherweise spielt der Raman-Effekt, der für verschwindende GVD eine annähernd symmetrische Verbreiterung bewirkt [144], eine Rolle.

Interessanterweise beobachtet man diesen Effekt nur sehr abgeschwächt, in Form eines erhöhten Rauschens, falls kürzere Pulse mit der gleichen Wiederholrate verwendet werden. Dies könnte daran liegen, dass unser Mira 900 System mit seinen 73 fs kein hinreichend breites Spektrum für eine stimulierte Raman-Streuung besitzt[2] und bei der spontanen Raman-Streuung die Kohärenz zum Rest des Frequenzkamms verloren geht. Eine andere mögliche Erklärung wäre die so genannte "modulation instabilty" [145]. Dieser Effekt kann bei hohen Intensitäten eintreten und führt zu einer spontanen Ausbildung von breitbandigen inkohärenten Modulationsseitenbändern. Dieser Effekt ist schon früher für exzessives Rauschen zwischen den Moden eines modengekoppelten Lasers verantwortlich gemacht worden [146].

Mit den daraufhin unternommenen Versuchen mit einem anderen modengekoppelten Laser konnte das Problem gelöst werden. Es handelte sich um einen hochrepetierenden Ringlaser (ω_r bis zu $2\pi \times 2$ GHz), der "chirped mirrors" statt einem Prismenpaar zur GVD-Kompensation verwendet (GiGaOptics, Modell GigaJet [147]). Die Pulsdauer für diesen Laser war vom Hersteller auf 25 fs spezifiziert. Als günstige Repetitionsrate hat

[2]Die Raman-Verstärkung in Quarzglas hat ein Maximum bei einer Rotverschiebung von 12 THz zwischen dem "seed" und dem gestreuten Strahl.

sich ein Wert zwischen 500 MHz und 1 GHz erwiesen[3]. Es ergab sich zwar auch mit diesem Laser ein breitbandiges Rauschen, welches um deutlich über dem zu erwartenden Schrotrauschniveau lag, aber die beobachteten Schwebungssignale mit CW-Lasern hatten ein Signal-zu-Rausch Verhältnis von mehr als 30 dB in einer Auflösungsbandbreite von 400 kHz. Dies ist für unsere im Abschnitt 2.2 beschriebenen digitalen Phasendetektoren ausreichend. In der Abbildung 9.2 ist der so erzeugte oktavenbreite Frequenzkamm zusammen mit dem Spektrum des erzeugenden Lasers dargestellt.

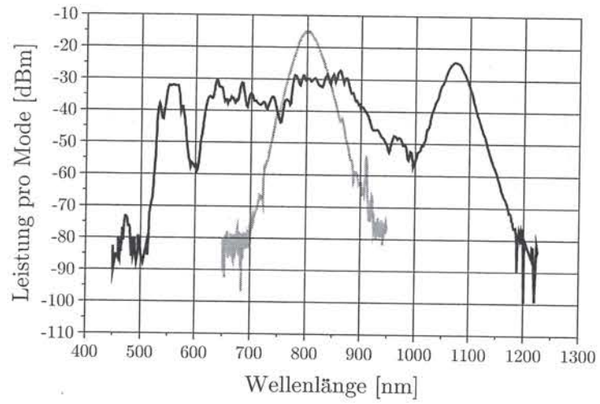


Abbildung 9.2: *Spektrale Verbreiterung des Spektrums eines Femtosekundenlasers (25 fs, 170 mW mittlere Leistung in der Faser) durch eine mikrostrukturierte Faser. Die einzelnen Moden sind hier nicht aufgelöst. Der 30 nm (14 THz) breite Peak (FWHM) stammt vom Laser. Die Leistung pro Mode ist logarithmisch aufgetragen und absolut kalibriert (1 dBm = 1 mW). Das von der mikrostrukturierten Faser erzeugte Spektrum lässt sich etwas durch die Wahl der speziellen Faser und durch die Polarisation des Lichts beeinflussen. Das hier dargestellte Spektrum wurde darauf hin optimiert, Maxima bei 1064 und 532 nm zu besitzen.*

Während der neue Laser den Vorteil hatte, dass er als Ringlaser quasi immun gegen Rückkoppelung von den Faserenden[4] war, welche mit dem Mira 900 System hin und wieder Probleme verursacht hatte, schien es zunächst als Nachteil, dass dieser Laser keine Prismen hatte, und daher die im Abschnitt 7.1 beschriebene Technik zur Kontrolle des Frequenzkamms nicht zum Einsatz kommen konnte. Es stellte sich jedoch heraus, dass eine Änderung der Leistung des Pumplasers (Coherent, Modell Verdi) den Frequenz-

[3]Während eine hohe Repetitionsrate den Radiofrequenzteil einfacher gestaltet, man braucht keine sehr schmalen Filter um die Schwebungssignale zu trennen, verteilt sie doch die verfügbare Energie auf viele Pulse, mit dem Resultat, dass die spektrale Verbreiterung weniger effizient ist.

[4]Man möchte hier keinen optischen Isolator verwenden, weil dieser die Pulse verlängert.

kamm verschiebt [90, 25]. Nachdem sich einige Erklärungsversuche dieses Phänomens als falsch herausgestellt hatten[5], ist der Mechanismus jetzt geklärt worden [148, 149]. Aus der gewöhnlichen Solitonen-Theorie folgt, dass sich mit der Peakintensität I_p die Phasengeschwindigkeit, nicht aber die Gruppengeschwindigkeit ändert, und damit nach Gl. (3.14) eine Abhängigkeit der CE-Frequenz von der resonatorinternen Leistung besteht. Allerdings ergibt sich dabei nicht das richtige Vorzeichen des Effekts [109]. Es stellte sich heraus, dass ein zusätzlicher, gewöhnlich vernachlässigter Term in der nichtlinearen Schrödinger Gleichung, der Bewegungsgleichung für Solitonen, eine Abhängigkeit der Gruppengeschwindigkeit von der Peakintensität ergibt [149]. Außerdem kann neben der Dispersion dritter Ordnung auch der Raman-Effekt im Laserkristall eine solche Abhängigkeit [148][6] bewirken. Es ergibt sich

$$\Delta\varphi = \omega_c L \left(\frac{1}{v_g(\omega_c)} - \frac{1}{v_{ph}} + B I_p \right) \tag{9.1}$$

wobei die Größe und das Vorzeichen des Koeffizienten B vom betrachteten Effekt abhängt [149].

Extreme spektrale Verbreiterungen waren schon vor der Einführung der mikrostrukturierten Fasern mit weniger effizienten Material, jedoch mit wesentlich intensiveren Pulsen, möglich. Alle bisherigen Verfahren zur Erzeugung von intensiven Pulsen reduzieren allerdings die Pulswiederholfrequenz drastisch[7]. Der resultierende dichte Frequenzkamm sollte die Anwendung für die optische Frequenzmessung deutlich erschweren.

Neben den mikrostrukturierten Fasern gibt es in der Zwischenzeit auch andere Möglichkeiten sehr breite Frequenzkämme mit niedriger Pulsenergie zu erzeugen. So lässt sich durch das Ziehen einer Standard-Telekom-Faser in einer Flamme diese auf wenige Mikrometer Durchmesser einschnüren. Der Wirkungsmechanismus innerhalb des eingeschnürten Bereichs ist dabei identisch mit dem im Kern der mikrostrukturierten Fasern, mit dem Vorteil, dass sich in die Standardfaser wesentlich leichter einkoppeln lässt [150]. Bei einer anderen Methode wird die hohe Intensität innerhalb des Laserresonators ausgenutzt, um auch ohne Faser einen sehr breiten Frequenzkamm zu erzeugen [151, 81].

[5] Diese haben einen Term $\partial n_2 I(t)/\partial\omega$ verwendet, der keinen Sinn ergibt, weil hier in der Zeitraum-Beschreibung ($n_2 I(t)$) nach der Frequenz abgeleitet wird.

[6] Weil die Raman-Verstärkung auf der roten Flanke des verstärkten Strahls stattfindet, ergibt sich daraus auch eine leistungsabhängige Verschiebung des Pulsspektrums, und damit eine Änderung der Gruppengeschwindigkeit wegen der restlichen Resonatorinternen GVD.

[7] In der Praxis ist die mittlere Ausgangsleistung eines Titan-Saphir-Lasers, einschließlich eines solchen Nachverstärkers, selten über einem Watt.

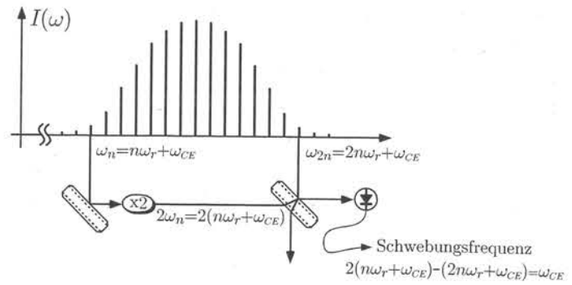


Abbildung 9.3: *Prinzip des optischen Synthesizers, basierend auf einem oktaven breiten Frequenzkamms mit den Moden $\omega_n = n\omega_r + \omega_{CE}$. Die Repetitionsrate ω_r kann sehr leicht irgendwo im Strahl gemessen werden. Die CE-Schlupffrequenz ω_{CE} ergibt sich als Schwebungssignal einer frequenzverdoppelten Mode mit einer Mode, die die doppelte Modenzahl besitzt. Nach dem Stabilisieren von ω_r und ω_{CE} auf eine Atomuhr oder einem GPS-Empfänger sind alle Moden mit der Genauigkeit dieser Referenz verfügbar: Eine Millionen genau kalibrierter Laser zugleich!*

9.2 "self-referencing" mit nur einem Laser

Wie bereits im Abschnitt 7.3 erläutert, lässt sich mit dem oktavenüberspannenden Spektrum die CE-Schlupffrequenz auf einfachste Weise messen. Dazu wird nach Gl. (3.5) eine Mode auf der "roten" Seite des Spektrums mit der Modenzahl n $\omega_n = n\omega_r + \omega_{CE}$ frequenzverdoppelt und mit dem Resultat ein Schwebungssignal mit der Mode $2n$ auf der "blauen" Seite erzeugt: $\omega_{2n} - \omega_n = \omega_{CE}$. Die Abbildung 9.3 illustriert das Prinzip des Apparats, der mit als der erste praktikable optische Synthesizer bezeichnet werden kann [24, 22, 23, 25].

Er ermöglicht die einfache Bestimmung der CE-Schlupffrequenz ω_{CE} und damit die einfache Rückführung der optischen Frequenzen ω_n auf die beiden Radiofrequenzen ω_r und ω_{CE}. Nachdem der oktavenbreite Frequenzkamm, wie im Abschnitt 7.1 erläutert, auf eine möglichst präzise Radiofrequenz (Atomuhr oder GPS-Empfänger) phasenstabilisiert ist, lassen sich alle darin enthaltenen Moden zur optischen Frequenzmessung nutzen. Diese Apparatur ist demnach nicht nur wesentlich einfacher als die alten harmonischen Frequenzketten, sondern auch für fast alle optischen Frequenzen einsetzbar. Sie hat, wie die Abbildung 9.4 zeigt, auf etwa einem Quadratmeter Platz. Die Vereinfachung ist so umfangreich, dass die in der Einleitung erwähnten optischen Uhren in greifbare Nähe gerückt sind. In der Tat werden an den Standardinstituten der meisten Industrieländer jetzt Vorbereitungen für eine solche Uhr getroffen (siehe Abschnitt 10).

In der Praxis gibt es mehrere Möglichkeiten das Schema in Abbildung 9.3 zu realisieren. Unsere erste Variante verwendete einen zusätzlichen Laser, einen Nd:YAG Laser bei

1064 nm mit bereits integrierter Frequenzverdoppelung zu 532 nm (Innolight, Modell Prometheus). Zunächst wurde die Repetitionsrate des modengekopplten Lasers mit Hilfe der Resonatorlänge auf unsere Atomuhr stabilisiert. Danach wurde die Fundamentale des Nd:YAG Lasers auf eine Mode des Frequenzkamms stabiliert[8] und dann das Schwebungssignal zwischen dem frequenzverdoppelten Ausgang des Lasers und dem Modenkamm registriert. Dies ist die Frequenz ω_{CE}, die dann zum Stabilisieren des modengekopplten Lasers mit Hilfe der Pumpleistung verwendet wurde. Diese Methode der Fixierung des Frequenzkamms lässt sich auch wie folgt interpretieren: Es wird die Frequenzlücke zwischen dem Nd:YAG Laser und seiner eigenen Harmonischen gemessen $f = 2f - f$.

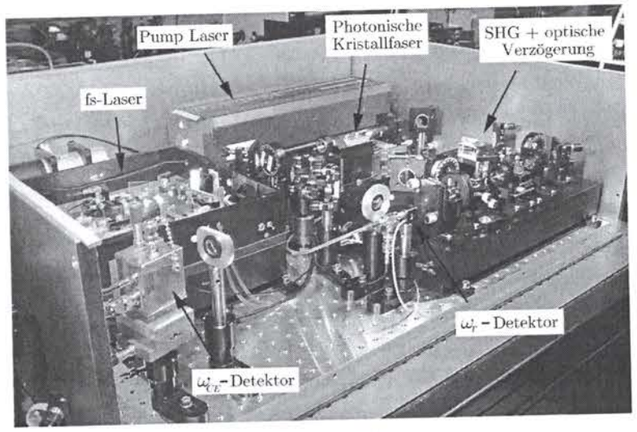


Abbildung 9.4: *Eine Photographie des Apparats dessen Prinzip in Abbildung 9.5 skizziert ist. Der Aufbau misst* $70 \times 95\ cm^2$ *und wird mittlerweile von Menlo Systems GmbH, einer Ausgründung unseres Garchinger Labors, vermarktet.*

Unsere Kollegen in Boulder[9], die, seitdem das Potential der Femtosekundenlaser klar wurde [20, 30, 70], und die etwa einen Monat vor uns über eine mikrostrukturierte Faser von Lucent Technologies verfügen konnten[10], hatten eine bessere Idee: Sie haben den Frequenzkamm direkt frequenzverdoppelt [23]. Wegen der hohen Spitzenintensität kann dies mit einer recht hohen Effizienz geschehen. Allerdings wird auf diese Weise nicht nur eine Mode verdoppelt, sondern in unserem Fall etwa 1000. Daher besteht der frequenzverdoppelte Teil der "roten" Flanke des Kamms aus Pulsen[11]. Außerdem hat dies zur Folge,

[8] Der Innolight Laser bietet dafür einen Modulationseingang.

[9] Die Gruppe von J. Hall am JILA Boulder CO/USA

[10] Unsere Verhandlungen mit Lucent sind zu diesem Zeitpunkt leider gescheitert.

[11] Die Frequenzverdoppelung ist hier eigentlich in der Hauptsache eine Summenfrequenzbildung, die sehr viele Moden kombiniert. Würde man nur jede Mode für sich verdoppeln, so würde sich der Modenabstand, und damit die Repetitionsrate, ebenfalls verdoppeln.

dass sich bei der Detektion ω_{CE} nicht nur ein Signal bei dieser Frequenz ergibt, sondern etwa 1000. Dieser Umstand lässt sich vorteilhaft nutzen, wenn dafür gesorgt wird, dass alle diese Schwebungssignale mit gleicher Phase auf dem Detektor entstehen. Leicht überlegt man sich, dass dies genau dann der Fall ist, falls die Pulse der frequenzverdoppelten "roten" Flanke und die damit zur Schwebung gebrachten Pulse der "blauen" Flanke zur gleichen Zeit am Detektor eintreffen. Dazu verwendet man am besten eine einstellbare optische Verzögerungsstrecke, wie dies in der Abbildung 9.5 dargestellt ist. Es stellt sich heraus, dass ohne diese Anpassung überhaupt kein Schwebungssignal bei ω_{CE} detektierbar ist weil sich alle Komponenten mit verschiedenen Phasen im Wesentlichen zu Null mitteln. Im Zeitraum betrachtet ist dies noch leichter verständlich: Von Pulsen die sich nicht treffen kann auch keine Interferenz erwartet werden.

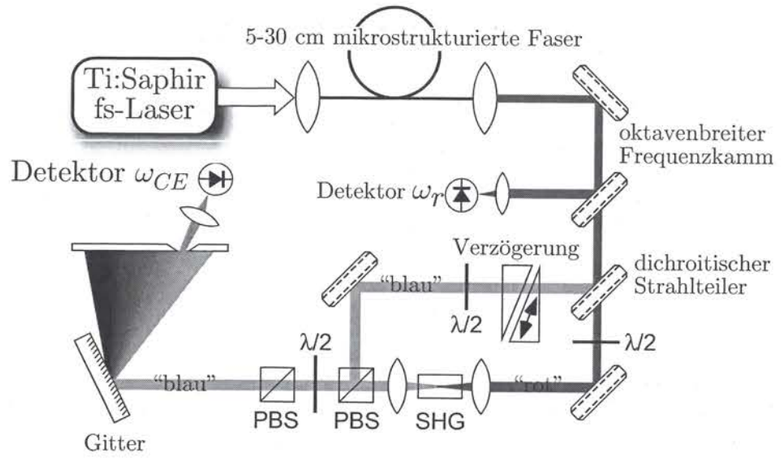


Abbildung 9.5: *Die bislang einfachste Realisierung des optischen Synthesizers. Vom oktavenbreiten Spektrum wird der "blaue"* ($\approx$ 532 *nm) Anteil abgespalten und nach einer einstellbaren optischen Verzögerung mit dem frequenzverdoppelten (SHG) "roten"* ($\approx$ 1064 *nm) Teil des Spektrums überlagert. Eine Kombination von zwei Polarisatoren (PBS) und einem* $\lambda/2$*-Plättchen dient als einstellbarer Strahlteiler, bevor mit einem Gitter die "blauen" Komponenten einem Photodetektor zugeführt werden (Vergleiche Abbildung 4.1). Mit den anderen beiden* $\lambda/2$*-Plättchen lässt sich die Polarisation der Strahlen nach der mikrostrukturierten Faser optimieren. Eine Photographie des Apparats findet sich in Abbildung 9.4*

Der optische Synthesizer aus nur einem Laser ist zum ersten Mal in meiner Doktorarbeit vorgeschlagen worden [29] und dann quasi zeitgleich von uns und der Gruppe von J. Hall

(JILA Boulder CO/USA) realisiert worden [22, 23, 24, 25]. Weil dies erst zwei Jahre zurückliegt, ist zu erwarten, dass sich noch eine ganze Reihe technischer Verbesserungen ergeben werden. Zum Teil ist dies bereits geschehen. Zum Beispiel wurde in unserem Labor der Titan-Saphir-Laser durch einen Cr:LiSAF Laser ersetzt [152]. Dieser hat ähnliche Eigenschaften wie ein Titan-Saphir-Laser, benötigt aber keinen teuren Pumplaser, sondern kann mit Diodenlasern gepumpt werden. Dies macht die neue Technik insbesondere für kleine Laserlabors attraktiv. Eine weitere Variante, an der zur Zeit in unserem Institut Michael Mei arbeitet, ist gänzlich in Glasfasertechnik aufgebaut. Der modengekoppelte Laser ist ein Faserlaser mit einem erbiumdotierten Faserstück als Verstärker. Mit einem Raman-Verstärker wird die Leistung soweit erhöht, dass sich das Spektrum in einer "dispersion flattened fiber" verbreitern lässt. Zur Zeit wird allerdings noch keine volle Oktave erreicht und die niedrige Repetitionsrate des Lasers bereitet noch Probleme. Sollten diese Bemühungen zum Erfolg führen, wäre damit nochmal eine deutliche Miniaturisierung verbunden. Außerdem müsste ein solches System wohl so gut wie gar nicht nachjustiert werden.

9.3 Differenz Frequenzkamm

An einer weiteren Verbesserung arbeitet derzeit in unserem Labor Marcus Zimmermann. Diese ist die Erzeugung eines Frequenzkamms ohne CE-Phasenschlupffrequenz durch Differenzfrequenzmischung [153]. Die Idee ist, einen Frequenzkamm mit Moden zu erzeugen, die exakte Harmonische der Pulswiederholrate sind: $\omega_n = n\omega_r$. Motiviert wurde dies durch der Beobachtung, dass die CE-Phasenschlupffrequenz bei einem freilaufenden Laser, im Gegensatz zur Repetitionsfrequenz, großen Schwankungen unterworfen ist[12]. Die genaue Ursache dieses Verhaltens konnte noch nicht geklärt werden. Interessanterweise können diese Schwankungen sehr schnell sein und daher ist die nahe liegende Vermutung, diese könnten durch akustische Störungen verursacht werden, wohl nicht richtig. Es lässt sich außerdem beobachten, dass dieses Verhalten stark vom speziellen Laser abhängt. Ein Laser mit einer Pulswiederholrate von 24 MHz, der an der TU Wien in der Gruppe von Ferenc Krausz konstruiert wurde, zeigt eine relativ stabile CE-Phasenschlupffrequenz [18]. Die spektrale Breite der phasenstabilisierten CE-Phasenschlupffrequenz ist bei diesem Laser, und einem weiteren von der Firma FemtoLasers (Modell FemtoSource, $\omega_r \approx 2\pi \times 80$ MHz) unterhalb von 300 Hz (= Auflösungsbandbreite des verwendeten Radiofrequenz Spektrumanalysator), während sie bei dem hochrepitierenden Laser der Firma GiGaOptics (Modell GigaJet) mehrere 100 kHz beträgt.

Ein Differenzfrequenzkamm lässt sich durch eine kleine Modifikation des Aufbaus in Abbildung 9.5 erzeugen. Dazu wird der Kristall, der die Frequenzverdoppelung bewirkt,

[12] Wobei es durchaus auch sein kann, dass sich die kleine Instabilität der Repetitonsrate bei der Extrapolation in den Radiofrequenzbereich multipliziert.

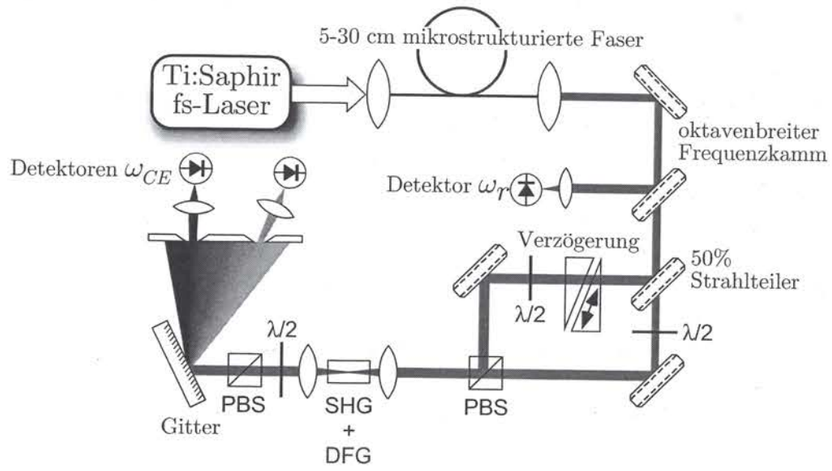


Abbildung 9.6: *In diesem Aufbau erfüllt der Kristall zwei Funktionen. Er erzeugt die CE-Phasenschlupffrequenz im "blauen" Spektralbereich, genau wie in Abbildung 9.5, und er erzeugt zusätzlich einen offsetfreien Frequenzkamm durch Differenzfrequenzmischung (DFG), indem die "rote" Flanke von der "blauen" abgezogen wird.*

außerhalb der Verzögerungsstrecke platziert, wie das in der Abbildung 9.6 dargestellt ist. Dadurch erzeugt dieser auf die gleiche Weise weiterhin die CE-Phasenschlupffrequenz, wobei allerdings nur noch die Hälfte der Leistung für die Frequenzverdoppelung zur Verfügung steht. Wegen der identischen Phasenanpassungsbedingung erzeugt der Kristall nun aber auch die Differenzfrequenzen $\omega_{2n} - \omega_n = n\omega_r$ und somit einen offsetfreien Frequenzkamm. Dieser entsteht an der "roten" Flanke und ist räumlich und spektral mit dem ursprünglichen Frequenzkamm überlagert. Mit einem weiteren Photodetektor kann daher ein Schwebungssignal mit der Frequenz ω_{CE}, wie sie durch den Versatz der beiden Frequenzkämme gegeben ist, erzeugt werden.

Um zu testen, ob die beiden Methoden zur Bestimmung von ω_{CE} den selben Wert liefern, haben wir eines der beiden Signale zur Stabilisierung verwendet und das andere mit einem Radiofrequenzzähler gemessen. Eventuelle "cycle slips" wurden durch mehrere redundante Zähler aussortiert (siehe Abschnitt 2.3). Die Repetitionsrate des Lasers war frei laufend und die Referenz für die Zähler und den Lokaloszillator zur Stabilisierung wurde aus derselben Radiofrequenzquelle bezogen. Die Tabelle 9.1 zeigt das Ergebnis. Das gewichtete Mittel der Daten ergibt für die Abweichung des gezählten Schwebungssignals vom Lokaloszillator des geregelten Schwebungssignals einen Wert von $0,21 \pm 2,1$ μHz. Bezogen auf

die optische Frequenz des Differenzfrequenzkamms[13], ergibt das eine relative Abweichung von nur $6,6 \times 10^{-21}$. Diese hohe Präzision ist darauf zurückzuführen, dass im Unterschied zu den meisten anderen Experimenten dieser Art (siehe Kapitel 4 und 9.4), so gut wie alle zusätzlichen Phasenverschiebungen durch thermische Ausdehnung, durch den Phasenregelkreis kompensiert werden. Sollte sich etwa durch eine langsame Temperaturänderung der Weglängenunterschied zwischen den beiden Armen der Verzögerungsstrecke ändern, so wird diese scheinbare Frequenzänderung durch den Phasenregelkreis am Ort des Kristalls kompensiert. Gleiches gilt für eine mögliche temperaturabhängige Dispersion der mikrostrukturierten Faser. Bleiben nur die Weglängendriften vom Kristall zu den Detektoren, die aber, wegen der großen Wellenlänge der Schwebung[14], kaum ins Gewicht fallen.

Indem die Phase zwischen den beiden Signalen bei ω_{CE} gemessen wurde, konnte auch deren relative Instabilität sehr empfindlich bestimmt werden. Es ergab sich eine relative Allan-Instabilität [52] von 10^{-18} für eine Mittelungszeit von einer Sekunde, die dann wie die inverse Mittelungszeit weiter abfällt, wie das für phasenkohärente Signale mit weißem Rauschen erwartet wird. Diese Ergebnisse lassen hoffen, dass sich diese Technik in Zukunft nutzen lässt, um die sehr gute Stabilität von optischen Uhren in den Radiofrequenzbereich zu übertragen. Ein offensichtliches Problem dabei sind intensitätsabhängige Phasenverschiebungen durch die Photodetektoren und elektronischen Phasendetektoren. Dieses Problem wurde auch bei diesen Messungen sichtbar, und stellt im Moment das Limit für derartige Vergleiche dar.

Das Ergebnis lässt sich außerdem als Test für die Genauigkeit bei der Erzeugung von optischen Summen- und Differenzfrequenzen interpretieren. Nimmt man etwa an, beim vermeintlichen Addieren der Frequenzen f_1 und f_2 wäre das Ergebnis nicht f_1+f_2 sondern $f_1+f_2+\delta_S(f_1,f_2)$ und statt der Differenzfrequenz würde $f_1-f_2+\delta_D(f_1,f_2)$ erzeugt werden. In diesem Fall würde bei der Detektion von ω_{CE} auf der "roten" Flanke die Frequenz $2\omega_n+\delta_S(\omega_n,\omega_n)-\omega_{2n}=\omega_{CE}+\delta_S(\omega_n,\omega_n)$ entstehen und der offsetfreie Frequenzkamm würde bei $\omega_{2n}-\omega_n+\delta_D(\omega_n,\omega_n)=n\omega_r+\delta_D(\omega_{2n},\omega_n)$ landen. Letzterer würde eine Schwebungsfrequenz von $\omega_{CE}+\delta_D(\omega_{2n},\omega_n)$ mit dem Orginalkamm erzeugen. Die Messung besagt also, dass $\delta_S(\omega_n,\omega_n)-\delta_D(\omega_{2n},\omega_n)=0,21\pm2,1$ μHz ist. Unter der Voraussetzung, dass die beiden Störterme nicht identisch sind, kann dies als ein Test für die Genauigkeit der Summen- und Differenzfrequenzerzeugung mit einer auf das infrarote bezogenen relativen Unsicherheit von $6,6 \times 10^{-21}$ angesehen werden.

[13] Dieser wurde hier bei bei 946 nm erzeugt.

[14] Um eine Phasenverschiebung von einem Zyklus zu bewirken müsste, sich einer der Abstände vom Kristall zum Detektor um 64 MHz/c = 21 cm ändern.

Torzeit	mittlere Abweichung von 64 MHz	systematische Unsicherheit	gesamte relative Unsicherheit	gültige Datenpunkte
1 s	$+0,36 \pm 0,20$ mHz	0,50 mHz	$1,7 \times 10^{-18}$	1871
3 s	$+22 \pm 73$ μHz	0,17 mHz	$5,8 \times 10^{-19}$	1728
10 s	$-4,2 \pm 6,6$ μHz	50 μHz	$1,6 \times 10^{-19}$	1012
30 s	$+4,1 \pm 6,2$ μHz	17 μHz	$5,7 \times 10^{-20}$	198
100 s	$8,4 \pm 2,6$ μHz	5 μHz	$1,8 \times 10^{-20}$	51
300 s	$1,6 \pm 1,6$ μHz	1,7 μHz	$7,4 \times 10^{-21}$	13

Tabelle 9.1: *Ergebnis für die gemittelte Schwebungsfrequenz zwischen dem oktavenbreiten Frequenzkamm mit den Frequenzen $\omega_n = n\omega_r+\omega_{CE}$, und dem Differenzfrequenzkamm, mit $\omega_n = n\omega_r$. Der systematische Fehler bestimmt sich aus den Angaben des Herstellers des Radiofrequenzzählers (Hewlett Packard, Modell 53132A) und der gezählten Radiofrequenz von 5 MHz. Das mit der dritten Spalte gewichtete Mittel von $0,21 \pm 2,1$ μHz weicht nur um höchstens $6,6 \times 10^{-21}$ (bezogen auf die Absolutfrequnz des Differenzfrequenzkamms) von dem erwarteten Wert ab.*

9.4 Vergleichstest zwischen optischen Synthesizern

Der bislang fundierteste Test der optischen Synthesizer war der Vergleich zweier solcher Systeme in unserem Labor [25]. Zu diesem Zweck wurde eine gemeinsame Radiofrequenzquelle, ein 10 MHz Quarzoszillator von den zwei optischen Synthesizern, die in den Abbildungen 9.3 und 9.5 skizziert sind, unabhängig voneinander auf 353 504 494, 400 MHz bzw. auf 353 504 624, 75 MHz multipliziert. Dazu wurden auf entsprechende Moden der Frequenzkämme Diodenlaser stabilisiert. Die Diodenlaser wurden dann selbst zur Schwebung gebracht, wobei eine Frequenz von 130, 35 MHz zu erwarten war, falls beim Multiplizieren der Frequenz keine Fehler auftreten.

Nach mehr als 4 $\frac{1}{2}$ Stunden Mittelungszeit ergab sich eine Abweichung von $0,071$ Hz $\pm$ $0,179$ Hz bei einer Frequenz von $353,5$ THz (848 nm). Mehr Details dieses Datensatzes sind in der Tabelle 9.2 gegeben. Die relative Unsicherheit des Mittelwerts von $5,1 \times 10^{-16}$ ist deutlich besser als die derzeit genauesten Atomuhren. Es ist weiterhin zu bemerken, dass bisher bei keinem der von uns durchgeführten Tests [30, 25, 90] eine statistisch signifikante Abweichung von der Kammstruktur, die durch Gl. (3.5) beschrieben wird, aufgetreten ist. Das gilt auch für einen kürzlich von Scott Diddams *et al.* durchgeführten Vergleich zweier Frequenzkämme [154]. Allerdings werden weitere Tests notwendig sein um die Frequenzkämme bis zur prognostizierten Unsicherheit von zukünftigen optischen Uhren von bis zu 10^{-18} zu testen.

Da das Messergebnis keine systematische Abweichung zeigt, ist anzunehmen, dass der Messfehler durch die Dauer der Messung bzw. der Instabilität der Synthesizer dominiert

Tor-zeit	Allan Instabilität	mittlere Abweichung von 130,35 MHz	relative Abweichung	gültige Messungen
1 s	$3,3 \times 10^{-13}$	$-1,2 \pm 1,8$ Hz	$5,1 \times 10^{-15}$	4310
3 s	$7,0 \times 10^{-14}$	$-0,54 \pm 1,8$ Hz	$5,1 \times 10^{-15}$	181
10 s	$2,6 \times 10^{-14}$	207 ± 376 mHz	$1,1 \times 10^{-15}$	574
30 s	$1,1 \times 10^{-14}$	551 ± 441 mHz	$1,6 \times 10^{-15}$	65
100 s	$3,9 \times 10^{-15}$	-82 ± 233 mHz	$6,6 \times 10^{-16}$	39

Tabelle 9.2: Zusammenfassung der Ergebnisse des Vergleichs zweier optische Synthesizer. Zwei Messpunkte, die nicht als "cycle slips" detektiert wurden, aber mehr als 50 kHz vom Mittelwert entfernt waren, wurden bei der Auswertung nicht berücksichtigt. Das gewichtete Mittel ist 71 mHz $\pm$ 179 mHz ($5,1 \times 10^{-16}$).

ist. Obwohl sich beim Vergleich von nur zwei Synthesizern nicht sagen lässt, welcher von beiden instabiler arbeitet, liegt die Vermutung nahe, dass es sich hierbei um den in der Abbildung 9.3 handelt. Dieser war nicht nur wesentlich größer, und damit anfälliger für mechanische Längenänderungen (die Komponenten auf zwei getrennten optischen Tischen montiert), sondern involvierte auch einige Laser, die nur mit einer sehr geringen Regelbandbreite kontrolliert werden konnten. Der 3,39 μm Laser etwa (in der Abbildung 9.3 mit ω_{HeNe} bezeichnet), konnte nur mit einem Phasendetektor, der einen Detektionsbereich von $\pm$1024 Zyklen besaß, mit einer rms Phasenfluktuation von 70 Zyklen stabilisiert werden. Ob sich dies günstig oder ungünstig auf die Stabilität des Diodenlasers bei 335 THz auswirkt, kann abschließend nur unter Verwendung eines dritten optischen Synthesizers geklärt werden. In diesem Fall lässt sich nicht nur sagen welcher der drei Synthesizer der stabilste ist, sondern sogar, in gewissen Grenzen angeben, wie stabil dieser ist [155].

Zusammen mit dem Ergebnis aus Abschnitt 9.3 lässt sich schließen, dass auch der Differenzfrequenzkamm mindestens genauso präzise die Frequenzen $\omega_n = n\omega_r$ enthält.

10. Die erste optische Atomuhr

Während eines Forschungsaufenthalts im Sommer 2000 habe ich in der Gruppe von Leo Hollberg am *National Institute of Standards and Technology* (NIST) in Boulder CO/USA, in Zusammenarbeit mit Jim Bergquist vom selben Institut, bei der Realisierung der ersten optischen Atomuhr mitgewirkt. Wie in der Einleitung erwähnt, besteht eine solche Uhr aus einem optischen Frequenzstandard und einem optischen Zähler. An verschiedenen optischen Frequenzstandards wird am NIST schon seit längerem gearbeitet. Die geringste Unsicherheit und größte Stabilität erzielen zur Zeit ein Kalzium- [156, 157] und ein Quecksilberionen Standard [158]. Der erwartete Vorteil einer optischen Uhr gegenüber einer Uhr, die auf einem Radiofrequenzübergang wie der Cäsium Grundzustandshyperfeinstruktur basiert, ist die um etwa 10^5 höhere Frequenz und der damit verbundenen Verbesserung der Allan-Instabilität [52] (vergl. Abschnitt 2.3) welche für die Mittelungszeit τ durch

$$\sigma(\tau) = \frac{\Delta\omega_0}{\pi\omega_0}\sqrt{\frac{T_c}{2N\tau}} \tag{10.1}$$

gegeben ist [4], wobei die Übergangsfrequenz und die Linienbreite des Übergangs durch ω_0 und $\Delta\omega_0$, und die Anzahl der detektierten Übergänge während eines Messzyklus T_c durch N gegeben ist. Bei den besten derzeitigen Cäsiumuhren ist die kurzzeit Allan-Instabilität einige Größenordnungen schlechter als die Genauigkeit, so dass gewöhnlich über Stunden oder sogar Tage gemittelt werden muss, um die statistische Unsicherheit unter die systematische zu drücken. Verbessert sich nicht auch die Allan-Instabilität quadratisch mit der Genauigkeit zukünftiger Uhren, so könnte sich die notwendige Mittelungszeit schnell auf Jahre oder mehr ausdehnen. Das große Potenzial bei der Verbesserung dieser Instabilität bei gleichzeitiger Reduzierung der systematischen Unsicherheiten verleihen den optischen Uhren ihre große Attraktivität.

10.1 Der NIST-Kalzium Standard

Der NIST Kalzium Standard, der zur Zeit von Chris Oates und Anne Curtis betrieben wird, verwendet die 400 Hz breite Interkombinationsline $^1S_0(M_J = 0) \rightarrow {}^3P_1(M_J = 0)$. Dazu werden ca 10^7 ^{40}Ca Atome innerhalb von $5 - 10$ ms in eine magneto-optische Falle (MOT) geladen und mit Hilfe des starken $^1S_0 \rightarrow {}^1P_1$ bei 423 nm aus einem frequenzverdoppelten Diodenlaser bis auf 2 mK abgekühlt. Mit Hilfe einer Vierstrahlen

Ramsey-Bordé-Anordnung [159] wird dann der Uhrenübergang mit einer Linienbreite von bis zu 200 Hz detektiert. Der Übergang zum metastabilen $^3P_1$-Niveau wird durch das Nachlassen der Fluoreszenz auf dem Kühlübergang detektiert. Auf diese Weise können bis zu 10 Photonen pro Atom im Grundzustand gestreut werden. Der Uhrenlaser wird durch eine rechteckige Frequenzmodulation auf einem der Maxima des Ramsey-Bordé-Interferogramms gehalten. Durch die große Anzahl der Atome ergibt sich nach Gl. (10.1) bereits nach sehr kurzer Zeit ein sehr gutes Signal-zu-Rausch Verhältnis. Daher ist es möglich, die Freuquenz des Uhrenlasers mit einer vergleichsweise hohen Regelbandbreite von $10-20$ Hz auf den Uhrenübergang zu stabilisieren. Deswegen werden keine besonders hohen Anforderungen an die Eigenstabilität des Uhrenlasers gestellt. Dieser besteht aus einem Diodenlaser der auf einen Resonator mit 10 kHz Linienbreite stabilisiert ist. Dieser Resonator ist weder besonders gut gegen Vibrationen isoliert noch temperaturstabilisiert. Trotzdem wird, wegen der großen detektierten Teilchenzahl, eine Allan-Instabilität von 4×10^{-15} in einer Sekunde Mittelungszeit erreicht. Dies ist bislang die niedrigste Allan-Instabilität, die an einem atomaren Frequenzstandard gemessen wurde. Damit ist diese Technologie aber noch nicht am Ende: Nach Gl. (10.1) ergibt sich bei einem $T_c = 10$ ms Messzyklus eine Allan-Instabilität von $3,1 \times 10^{-18}$. Der hauptsächliche Grund für diese Differenz ist, dass die Leistung des Uhrenlasers nicht ausreicht, um jedes der 10^7 Atome zu adressieren.

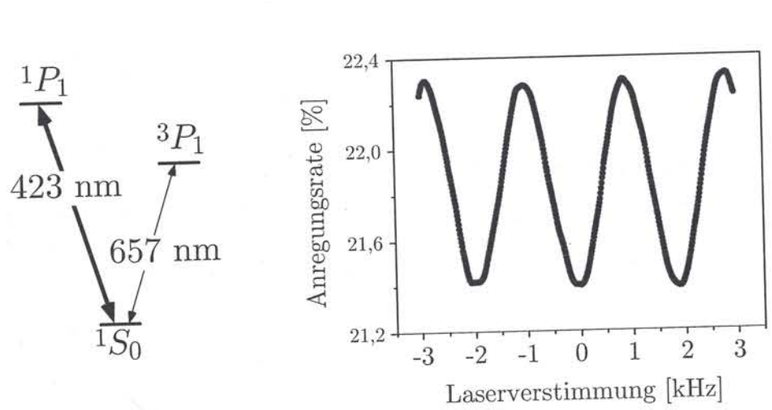


Abbildung 10.1: *Links: Die verwendeten Niveaus im NIST Kalzium Standard. Wegen einem verschwindenden Kernspin beim verwendeten ^{40}Ca (97%) gibt es keine Hyperfeinstruktur. Der starke Übergang* 423 *nm wird zum Fangen und Kühlen der Atome, sowie zum Nachweis des Übergangs zum $^3P_1$-Niveau ("shelving") durch den Uhrenlaser verwendet. Rechts: Beispiel eines Bordé-Ramsey Interferogramms mit einer Auflösung* 960 *Hz (mit freundlicher Genehmigung von C. W. Oates).*

In etwa einmonatiger Arbeit haben Scott Diddams und ich einen optischen Synthesizer des Typs aus Abbildung 9.5 aufgebaut und danach damit den Ca-Uhrenübergang genau vermessen [3]. Als Referenz diente hierbei die NIST Zeitskala, bestehend aus 5 Wasserstoffmasern, 3 kommerziellen Cäsiumuhren und einer Cäsiumfontänenuhr. Das Ergebnis dieser Messung ist in der Abbildung 10.2 dargestellt. Man erkennt, dass die aus der Messstatistik abgeleiteten Fehlerbalken größtenteils nicht überlappen. Darin offenbart sich ein genereller Nachteil, der durch die Verwendung sehr vieler neutraler Atome entsteht. Diese ermöglichen zwar, wie oben erläutert, eine sehr hohe Stabilität, doch die Reproduzierbarkeit ist durch die Bewegung der Atome und gegenseitige Stöße beeinträchtigt.

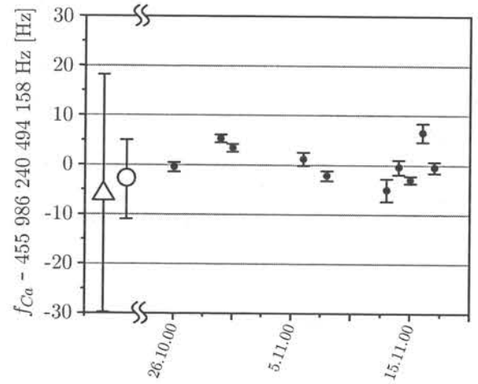


Abbildung 10.2: *Ergebnisse der Messung des Kalzium Uhrenübergangs an 23 Messtagen (38 787 sec Messzeit). Die Fehlerbalken geben nur die Standardabweichung der gemessenen Werte von ihrem Mittelwert an. Zusammen mit einer abgeschätzten systematischen Unsicherheit von* 26 *Hz ergibt sich für den Mittelwert $f_{Ca} = 455\,986\,240\,494\,158(26)$ Hz [3]. Die bislang genaueste Messung der PTB [160] (△-Symbol) und ein weitere Wert von NIST [161] (○-Symbol), gemessen relativ zum Hg^+-Standard (nächster Abschnitt), sind zum Vergleich mit eingezeichnet.*

10.2 Der NIST-Quecksilber Standard

Ein zweiter optischer Standard am NIST, der von Jim Bergquist aufgebaut und betrieben wird, ist in seinen wichtigen Eigenschaften dem Kalzium Standard komplementär. Während letzterer eine sehr hohe Stabilität und eine relativ niedrige Reproduzierbarkeit besitzt, ist es beim Quecksilber Standard genau umgekehrt. Das einzelne, in einer sphärischen Paul-Falle gespeicherte $^{199}Hg^+$ Ion, kann jeweils nur ein Photon pro Messzyklus (Präparation des Ions und Anregungsversuch ≈ 90 ms) auf dem schmalen Uhrenübergang

streuen. Um dieses Photon möglichst effizient nachzuweisen, wird auch hier die "shelving" Technik verwendet. Dabei wird das Ausbleiben des relativ starken Streulichts auf dem $^2S_{1/2} \rightarrow {}^2P_{1/2}$-Kühlübergang als Signatur für den Übergang zum metastabilen oberen Niveau (Lebensdauer 90 ms) des Uhrenübergangs verwendet (siehe Abbildung 10.3. Wegen des schwachen Signals sind die Anforderungen an die Stabilität des Uhrenlasersystems extrem hoch. Der aufwendig stabilisierte und frequenzverdoppelte Farbstofflaser hat eine Subhertz-Linienbreite und eine Allan-Instabilität von 3×10^{-16} für eine Mittelungszeit von einer Sekunde [162]. Ähnlich wie im Kalzium Standard wird der Laser auf die Hg-Linie stabilisiert, indem die Übergangsraten auf beiden Seiten der Resonanz verglichen werden.

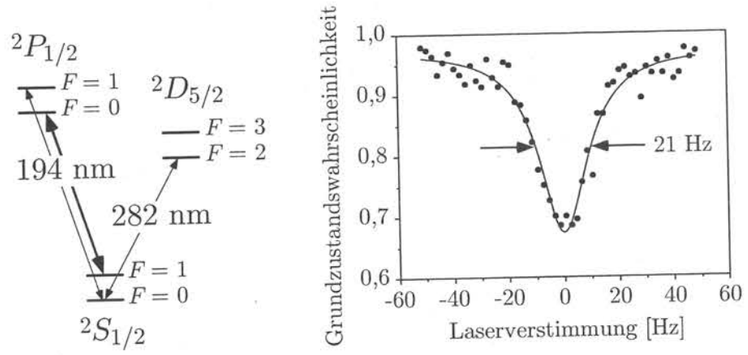


Abbildung 10.3: *Links: Die verwendeten Niveaus im NIST Quecksilber Standard. Der starke Übergang* 194 *nm wird zum Kühlen des Ions, sowie zum Nachweis des Übergangs zum* $^2D_{5/2}$*-Niveaus ("shelving") durch den Uhrenlaser verwendet. Wegen der Hyperfeinaufspaltung muss zusätzlich ein Rückpumplaser verwendet werden. Rechts: Eine gemessene Linie. Die beobachtete Linienbreite ist konsistent mit dem durch die endliche Pulsddauer gegebene Fourier-Limit. (mit freundlicher Genehmigung von J. C. Bergquist).*

Anders als beim Kalzium gibt es eine gute Übereinstimmung der Messwerte im Rahmen ihrer statistischen Unsicherheit. Das mit der statistischen Unsicherheit gewichtete Mittel hätte eine Unsicherheit von nur 2,4 Hz oder $2,3 \times 10^{-15}$, ein Wert der höchstwahrscheinlich sogar durch die NIST Zeitskala begrenzt ist. Sollte sich dies als richtig herausstellen, so würde zum ersten Mal durch eine optische Referenzfrequenz die beste Uhr gestellt werden. Überprüfen lässt sich dies erst mit einer zweiten, ähnlich genauen Uhr. Zu diesem Zweck wird am NIST gerade ein zweiter Hg^+-Standard vorbereitet. Damit sollten sich die möglichen systematischen Verschiebungen des Uhrenübergangs abschätzen lassen. Der größte Beitrag hierzu, der bis zu 10 Hz betragen könnte, ist vermutlich die Quadrupolverschiebung des metastabilen Niveaus durch die Wechselwirkung des Quadrupolmoments des $^2D_{5/2}$-Niveaus mit eventuell vorhandenen elektrischen Feldgradienten.

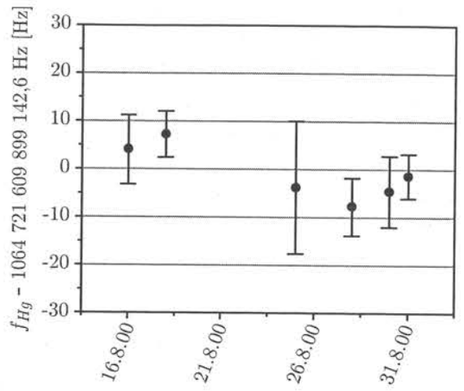


Abbildung 10.4: *Ergebnisse der Messung des Quecksilber Uhrenübergangs an 6 Messtagen (*21 651 *sec Messzeit). Die Fehlerbalken geben nur die Standardabweichung der gemessenen Werte von ihrem Mittelwert an. Zusammen mit einer abgeschätzten systematischen Unsicherheit von* 10 *Hz ergibt sich für den Mittelwert* $f_{Hg} = 1\,064\,721\,609\,899\,143(10)$ *Hz [3].*

In Zukunft wird es sicher notwendig werden, die Quadrupolverschiebung, die bei fast allen heutigen Ionenstandards auftritt, zu unterdrücken. Eine Möglichkeit dabei ist, den Übergang mit drei zueinander senkrechten Polarisationen anzuregen. Es lässt sich nämlich zeigen, dass die Summe der Quadrupolverschiebungen in diesem Fall gerade Null ist [163]. Eine andere Möglichkeit ist die Verwendung des Übergangs zum $^2D_{3/2}$-Niveau. Dieser hat im ^{201}Hg eine $F = 0$ Komponente, bei der diese Mittelung automatisch für jede Polarisation eintritt[1]. Die dritte Möglichkeit wäre, ein anderes Ion zu verwenden. Der in Abschnitt 6.1 diskutierte In^+-Standard ist dabei ein exzellenter Kandidat. Weil beide Niveaus des Uhrenübergangs $J = 0$-Zustände sind, kann es zu keiner Quadrupolwechselwirkung kommen.

10.3 Messung von Frequenzverhältnissen

Wie bereits im Abschnitt 9.2 erläutert, ist der optische Synthesizer mit nur einem Laser äußerst vielseitig. Mit ihm lässt sich ohne Modifikation sowohl das grüne Licht des Hg^+-Standards (der Farbstofflaser bei $1/2 \times f_{Hg}$), als auch der rote Uhrenlaser des Ca-Standards messen. Es ist sogar möglich, diese beiden Messungen simultan durchzuführen.

[1] Dies liegt daran, dass sich bei einem verschwindenden Gesamtdrehimpuls die Hüllendrehimpulse mit den richtigen Clebsch-Gordan Koeffizienten so überlagern, dass die Elektronenwolke kugelförmig ist. Als solche kann sie keine Wechselwirkungsenergie mit einem Feldgradienten haben.

Daraus ergibt sich eine völlig neue Möglichkeit, nämlich die Messung von optischen Frequenzverhältnissen [2, 164]. Dies kann sehr nützlich sein, wenn man bedenkt, dass jede Frequenz f in Hz, wegen der Definition des SI-Sekunde über die Cäsium Grundzustandshyperfeinaufspaltung f_{Cs}, als die Anzahl der Perioden während 9 192 631 770 Perioden eines Cäsiumstandards, gemessen wird. Es wird also letztendlich, meist über viele Zwischenschritte, das Verhältnis f/f_{Cs} bestimmt. Sollten die hier beschriebenen Arbeiten irgendwann zu einer Neudefiniton der SI-Sekunde über eine optische Frequenz f_{opt} statt f_{Cs} führen, so wäre die direkte Messung von optischen Frequenzverhältnissen sehr nützlich.

Um diese Methode zu demonstrieren, haben wir das Schwebungssignal ω_S zwischen einer Mode des Frequenzkamms $\omega_n = n\omega_r + \omega_{CE}$ und der fixen Frequenz des Farbstofflasers des Quecksilber Standards ω_{Hg} mit Hilfe der Resonatorlänge auf den Bruchteil α von ω_r stabilisiert. Außerdem wurde die CE-Phasenschlupffrequenz mit der Pumpleistung auf den Bruchteil β von ω_r stabilisiert: $\omega_{CE} = \beta\omega_r$. Damit gilt also:

$$\omega_{Hg} = n\omega_r + \omega_{CE} + \omega_S = (n + \alpha + \beta)\omega_r \quad \Longrightarrow \quad \omega_r = \frac{\omega_{Hg}}{n + \alpha + \beta} \tag{10.2}$$

Die Frequenzen $\alpha\omega_r$ und $\beta\omega_r$ können dabei einfach mit einem Radiofrequenzteiler aus ω_r erzeugt werden. Ein 1/100-Frequenzteiler würde zum Beispiel, bei der verwendeten Repetitionsrate von ≈ 1 GHz, die CE-Phasenschlupffrequenz auf etwa 10 MHz (aber genau auf $\omega_r/100$) festlegen. Bei einem auf diese Weise stabilisierten Frequenzkamm wird kein Radiofrequenzstandard mehr gebraucht. Alle Frequenzen leiten sich direkt und phasenstarr vom Quecksilberstandard ab. Die Repetitionsrate kann als zählbarer Uhrenausgang angesehen werden, wobei genau wie bei der Cäsiumuhr, nach einer festgelgten Anzahl von Zyklen der Zeiger der optischen Uhr um eine Einheit weiter gestellt wird. Insbesondere lässt sich durch die Wahl $\alpha = -\beta$ erreichen, dass der Uhrenausgang eine exakte Subharmonische des Quecksilberstandards wird. Die Vorzeichen können nämlich durch die Beschaltung der Phasenregelkreises frei gewählt werden.

Mit einem solchen optischen "prescaler" haben wir die Frequenz des Kalziumstandards erneut gemessen. Dazu wurde das Schwebungssignal einer Mode n' mit dem auf den Quecksilberstandard stabilisierten Frequenzkamm gezählt. Der Zähler verwendete dabei ein Hundertstel der Repetitionsrate als Referenz, mit dem Resultat, dass dieser das Verhältnis der Schwebungsfrequenz und der Repetitionsrate γ (in bestimmten Einheiten) anzeigt[2]. Insgesamt ergibt sich daher das Verhältnis der Frequenzen der beiden optischen

[2]Ein Radiofrequenzzähler besitzt normalerweise einen Referenzeingang für 10 MHz. Dieses Signal verwendet er als Zeitbasis. Der Zähler zeigt dann das 10^7 fache des Frequenzverhältnises Zählereingang/Referenzeingang an. Wird der Zähler auf 1/100 der Repetitionsrate ge-"referenced" so zeigt er das 10^9 fache des Frequenzverhältnises Zählereingang/Repetitionsrate, also $10^9 \times \gamma$ an.

Standards zu:

$$\frac{\omega_{Ca}}{\omega_{Hg}} = \frac{n'\omega_r + \gamma\omega_r + \beta\omega_r}{n\omega_r + \alpha\omega_r + \beta\omega_r} = \frac{n' + \gamma + \beta}{n + \alpha + \beta} \tag{10.3}$$

Die Größen n, α und β können frei gewählt werden, woraus sich die Größen n', γ und ω_r ergeben. Aus der vorher gemessenen Absolutfrequenz des Quecksilberstandards wurde n' bestimmt. Das Frequenzverhältnis kann als die Frequenz des Kalzium Uhrenübergangs in "Quecksilber-Hertz" angesehen werden. Die Abbildung 10.5 zeigt eine Serie von Frequenzverhältnissen, die am 13.9.2000 gemessen wurden. Die große nicht statistische Streuung ist durch die begrenzte Reproduzierbarkeit des Kalziumstandards bedingt (siehe auch Abbildung 10.1). Außerdem stellte sich nach der Messung heraus, dass es aufgrund eines fehlerhaften Akusto-optischen Modulators, eine sytematische Verschiebung der mittleren Frequenz des Kalziumstandards gab.

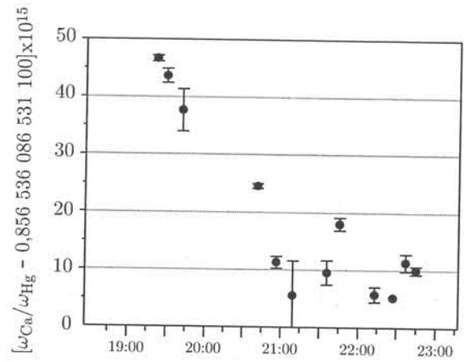


Abbildung 10.5: *Verschiedene Messreihen des gemessenen Frequenzverhältnis des Kalzium- und Quecksilberstandards ω_{Ca}/ω_{Hg}, wobei ω_{Hg} die Frequenz des Farbtofflasers des Quecksilberstandards ist. Der aus den letzten beiden Abschnitten bestimmte Wert $2f_{Ca}/f_{Hg} = \omega_{Ca}/\omega_{Hg}$ ergibt auf der Skala in Abbildung 10.5 einen Wert von* 199(64).

Trotz der Systematik lässt sich aus dieser Messung die Allan-Instabilität berechnen [2]. Dies ist insbesondere interessant, weil es so gelingt, völlig ohne Radiofrequenzoszillatoren und deren limitierenden Beitrag auszukommen. Das Ergebnis ist in Abbildung 10.6 dargestellt. Die Instabilität der optischen Standards ist deutlich kleiner als die derzeit beste Cäsiumfontänenuhr [51], die auch für die im Abschnitt 8.3 beschriebenen Wasserstoffmessungen eingesetzt wurde[3]. Allerdings gelingt die Übertragung der hohen optischen

[3]Die in Abbildung 10.6 eingezeichnete Allan-Instabilität wurde jedoch, anders als beim Betrieb in unserem Labor, zusammen mit einem kryogenen Saphir Oszillator aufgenommen. Dabei handelt es sich um die zur Zeit stabilste Radiofrequenzquelle für Mittelungszeiten von einigen Sekunden.

Stabilität auf den Uhrenausgang bisher nicht. Die Abbildung 10.6 zeigt auch die gemessene Instabilität der Repetitionsrate im Vergleich zu einem Wasserstoffmaser. Aus bisher ungeklärter Ursache liegt diese etwa eine Größenordnung oberhalb der Instabilität des Masers.

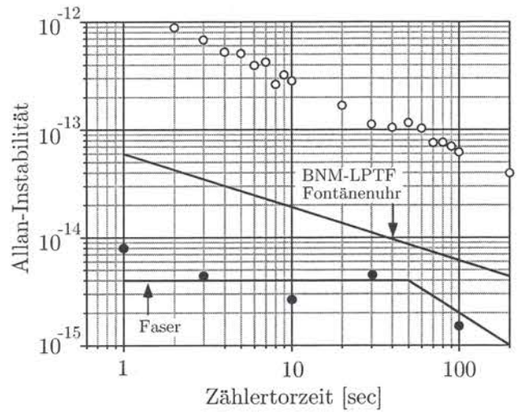


Abbildung 10.6: *(•): Allan-Instabilität des Frequenzverhältnises des Kalzium- und Quecksilberstandards. (○): Stabilität der Repetitionsrate, gemessen gegen einen Wasserstoffmaser. Zum Vergleich ist die gemessene Stabilität der derzeit stabilsten Cäsiumfontänenuhr eingezeichnet [51] (siehe auch Abschnitt 8.3). Außerdem wurde die gemessene optische Weglängenstabilität der Glasfaser, mit dem das Licht des Farbstofflasers (ω_{Hg}) zum optischen Synthesizer transportiert wurde, eingezeichnet. Zwei, weit jenseits des Mittelwerts liegende Datenpunkte mit einer Torzeit von 100 Sekunden, wurden aus der Auswertung genommen, ohne dass das Kriterium für einen "cycle slip" erfüllt war.*

Aus diesem Grund haben wir im Januar 2001 einen zweiten optischen "prescaler" aufgebaut. Damit konnten zwei unabhängige optische Uhren, mit den Kalzium- und Quecksilberstandards realisiert werden. Der Vergleich der beiden Uhrenausgänge ergab eine relative Allan-Instabilität von über 2×10^{-13} in einer Sekunde Messzeit. Offensichtlich gelingt es mit dem Frequenzkamm, die Stabilität von optischen Referenzen in andere optische Spektralbereiche zu transferieren, aber die Übertragung in den Radiofrequenzbereich ist bislang ein ungelöstes Problem. Ein erster Hinweis auf die Ursache des Problems kommt vom NIST Team. Bei der Detektion der Repetitionsrate wurde eine leistungsabhängige Phasenverschiebung von über 1 ps/mW beobachtet. Zusammen mit Leistungsfluktuationen von einigen nW könnten also bereits das beobachtete Phänomen erklären. Die berechnete Begrenzung der Stabilität durch das Schrotrauschen des Laserlichts, sollte wesentlich niedriger sein [4]. Die Stabilisierung der Lichtleistung, die auf den Detektor fällt,

hat das Problem um etwa eine Größenordnung reduziert. Trotzdem gelingt die Übertragung der vollen optischen Stabilität auf den Uhrenausgang noch nicht [165]. Dieser Effekt begrenzt offensichtlich auch die im Abschnitt 9.3 beschriebene Messung der Instabilität des Differenzfrequenzkamms gegen den erzeugenden Frequenzkamm.

11. Anwendungen der optischen Uhren und Synthesizer

Obwohl bereits gezeigt wurde [2], dass die neuen optischen Uhren ebenso genau gehen können wie die derzeit besten Cäsiumfontänenuhren (relative Unsicherheit 10^{-15}), steht diese Entwicklung erst am Anfang. Die prognostizierte Unsicherheit einer solchen Uhr ergibt sich aus der Betrachtung der möglichen sytematischen Fehler, zum Beispiel beim In^+ Ionenstandard (Abschnitt 6.1) zu 10^{-18} [6].

Seit der Einführung der Femtosekunden-Frequenzkamm-Technologie in die optische Frequenzmetrologie im Jahre 1998 durch unser Labor [20, 30, 70, 21, 22] und deren weiteren Vereinfachung zu einem optischen Synthesizer, bestehend aus nur einem Laser [22, 23, 24, 25], hat sich diese, nicht zuletzt, weil sie so einfach ist, schnell verbreitet. Daher gibt es bereits eine ganze Reihe von optischen Frequenzen in Cs [70], Ca [3, 166], CH_4 [167], H [1], Hg^+[3], I_2[23, 168, 93, 169, 170], Yb^+[171, 172, 170], Sr^+[170], Rb [169] und in In^+[103], die mit dieser Technik bestimmt wurden. Weitere interessante Kandidaten, wie die $1S-2S$ Übergangsfrequenz von Antiwasserstoff, der derzeit am CERN vorbereitet wird [173], werden sicher folgen.

Neben dem bereits ausführlich besprochenen Einsatz der optischen Synthesizer in der hochauflösenden Spektroskopie und der sich daraus ergebende Test der QED und der Bestimmung der fundamentalen Konstanten R_∞ und α (Abschnitt 8.4 und 5.2), sollen weitere mögliche Anwendungen in Wissenschaft und Technik kurz angesprochen werden.

Bei der Realisation des Meters in den Standardinstituten wird bislang hauptsächlich mit Jod-stabilisierten HeNe-Lasern gearbeitet, die ständig in internationalen Vergleichen gegeneinander abgeglichen werden. Die Genauigkeit eines solchen Geräts wird ohne weiteres von einem GPS-Empfänger und einem optischen Synthesizer erreicht[1]. Damit würde sich der Transport der Laser erübrigen. Basierend auf einem Cr:LiSAF-Laser [152], oder gänzlich in Fasertechnologie, müsste ein solches System auch nicht wesentlich teurer als ein Jod-stabilisierter Laser sein. Zur Darstellung des Meters und zur Realisierung von weiteren optischen Uhren wird jetzt an so gut wie allen Standardinstituten der Industrieländer an der Femtosekunden Frequenzkamm Technologie gearbeitet.

[1] Das österreichische *Bundesamt für Eich- u. Vermessungswesen* hat zu diesem Zweck bereits einen optischen Synthesizer von Menlo Systems GmbH, einer Firmenausgründung aus unserem Labor, erworben.

In der Datenkommunikation werden schon jetzt extrem stabile Wasserstoffmaser zur Synchronisation von großen Netzwerkknoten eingesetzt. Bei einer weiteren Steigerung der Datenraten werden möglicherweise irgendwann noch bessere Oszillatoren benötigt. Außerdem ist es denkbar, dass sich die $\approx 10^5$ einzelnen Moden eines Frequenzkamms selbst zur Kommunikation und die Pulse gleichzeitig zur Synchronisation einsetzen lassen.

Die Satellitennavigation auf der Erde, die "deep space" Navigation von Raumsonden beruht auf genauen Atomuhren. Letztes ist in der Tat derzeit durch die stabilsten existierenden Radiofrequenzoszillatoren begrenzt. Möglicherweise kann man aber auch in der Navigation in Zukunft eine Steigerung der Genauigkeit durch genauere Uhren erwarten. Die ESA hat bereits ein Forschungsprojekt "Ultra Stable Optical Clocks" ausgeschrieben, in dessen Rahmen auch an Frequenzkämmen für die Raumfahrt gearbeitet werden soll.

Die allgemeine Relativitätstheorie ist bisher leider nur sehr ungenau im Experiment getestet. Bei der Periheldrehung des Merkur und der des binären Pulsars PSR 1913+16 stimmen Theorie und Experiment zwar innerhalb ihrer Unsicherheit, aber nur auf 10% überein [174, 175]. Bei der gravitativen Ablenkung von Sternenlicht [176] und der Abstrahlung von Gravitationsenergie des binären Pulsars PSR 1913+16 [177] ist die Situation nicht viel besser. Einzig die Gravitationsrotverschiebung ist mit zwei Wasserstoffmasern, einer am Boden und der andere an Bord einer Rakete in 10 000 km Höhe, genauer, nämlich bis auf 7×10^{-5} von R. F. C. Vessot *et al.* [178] vermessen worden. Es besteht die berechtigte Hoffnung, dass sich durch Uhren mit einer Genauigkeit von bis zu 10^{-18} neue Möglichkeiten zur Detektion des Einflusses der Gravitation auf die Raum-Zeit ergeben werden. Mit zwei solchen Uhren, einer in Garmisch-Partenkirchen und einer auf der Zugspitze zum Beispiel[2], könnte das berühmte Raketenexperiment von R. F. C. Vessot *et al.* bereits um mehr als eine Größenordnung unterboten werden. Allerdings sollte betont werden, dass sich die Gravitationsrotverschiebung auch aus der Energieerhaltung, eine Eigenschaft, die man wohl auch von jeder alternativen Theorie fordern würde, ergibt. Ein möglicher Weg einer eventuellen Quantengravitation auf die Spur zu kommen, wäre kleine Abweichungen von der klassischen Theorie zu finden. Bei der derzeitigen Messgenauigkeit ist aber noch nicht einmal letztere gut verifiziert.

Eine weitere Anwendung betrifft die mögliche langsame Änderung von Naturkonstanten. Dieser Effekt [7] und seine mögliche Messung [9, 8] wird seit einiger Zeit von Theoretikern diskutiert. Hinweise darauf stammen aus astronomischen Beobachtungen [10]. Sie stehen allerdings Nullresultaten mit sehr kleinem unteren Limit aus optischen Frequenzmessungen [3], Radiofreuquenzmessungen [11, 12] und der Isotopenverteilung eines natürlich entstandenen Kernreaktors in der Republik Gabun [13] entgegen. Die im

[2]Bei einem Höhenunterschied von $\Delta h = 2250$ m beträgt die Gravitationsrotverschiebung in diesem Fall $\frac{\Delta h g}{c^2} = 2,5 \times 10^{-13}$.

Abschnitt 10.1 und 10.2 gemessenen optischen Uhrenübergänge in Kalzium und Quecksilber, erlauben die Ableitung einer weiteren oberen Grenze für ein derartiges Verhalten. Saveli Karshenboim hat abgeschätzt, dass dieses Frequenzverhältnis besonders sensitiv auf eine Änderung der Feinstrukturkonstanten reagieren sollte [8]. Der Vergleich des Kalzium Uhrenübergangs mit einer älteren Messung [160] ergibt eine obere Grenze für die Drift f_{Ca}/f_{Cs} von $(\partial f_{Ca}/\partial t)/f_{Ca} = (+2 \pm 8) \times 10^{-14}$ yr^{-1} [3]. Der Vergleich des Quecksilber Uhrenübergangs aus Abschnitt 10.2 mit einem neueren Wert vom April 2002 [165] ergibt $(\partial f_{Hg}/\partial t)/f_{Hg} = (+3 \pm 2) \times 10^{-15}$ yr^{-1}. Eine eventuelle Drift der Cs Grundzustandshyperfeinaufspaltung f_{Cs} hebt sich in f_{Hg}/f_{Ca} heraus, falls alle drei Frequenzen linear driften[3]. Bislang kann die Änderung der Feinstrukturkonstanten daher nicht aus den Daten gefolgert werden. Ein interessanter Vorschlag in diesem Zusammenhang kam kürzlich von X. Calmet und H. Fritzsch. Demnach sollte sich aus der relativen Änderung der Feinstrukturkonstanten eine relative Massenänderung beim Proton ergeben, die 123 mal so groß ist: $\Delta\alpha/\alpha = -123\ \Delta m_p/m_p$. Für die $1S - 2S$ Übergangsfrequenz mit $\partial f_{1S2S}/\partial m_p = 2,4 \times 10^{-7}$ Hz/Kg und einem Detektionslimit von $\Delta f_{1S2S} = 40$ Hz würde dies bedeuten, dass man noch $\Delta\alpha/\alpha = 2,4 \times 10^{-13}$ detektieren könnte. Gäbe es den von X. Calmet und H. Fritzsch vorhergesagten Effekt nicht, so wäre mit $\partial f_{1S2S}/\partial\alpha = 8,3 \times 10^{12}$ Hz dieses Limit bei $\Delta\alpha/\alpha = 6,6 \times 10^{-10}$, also fast drei Größenordnungen höher. Falls sich die Auflösung des $1S - 2S$ Übergangs um mindestens eine Größenordnung steigern ließe, wäre man mit zwei Messungen innerhalb von einigen Jahren in dem interessanten Regime von $\Delta\alpha/\alpha = 6,6 \times 10^{-15}$ yr^{-1} in dem es andere Vorgaben gibt [12].

Eine andere mögliche Anwendung, über die spekuliert werden darf, ist die Übertragung der "very long baseline interferometrie"(VLBI) in den optischen Bereich. Zwei entfernte optische Oszillatoren die synchronisiert sind, könnten als Lokaloszillatoren für die Heterodyndetektion von Sternenlicht genutzt werden.

[3]Dies ist nicht automatisch gewährleistet, weil die vier Frequenzmessungen zu vier verschiedenen Zeitpunkten getätigt wurden.

12. Zeitraum Implikationen

In diesem Abschnitt soll auf die Anwendungen der Erkenntnisse über die CE-Phase im Zeitraum eingegangen werden. Zu diesem Zweck ist es essentiell, sich über den Unterschied zwischen der CE-Phase und des CE-Phasenschlupfs bewusst zu sein. Für einen "ungechirpten" Puls, der während seiner Dauer eine konstante Trägerfrequenz aufweist, bedeutet die Stabilisierung der Kamm-Offsetfrequenz gleichzeitig die Stabilisierung des CE-Phasenschlupfs [29] (siehe Abbildung 3.2).

Zur Kontrolle des CE-Phasenschlupfs ist die Methode des "self-referencing" (Abschnitt 7.3 und 9.2) wesentlich besser geeignet, als die Detektion des CE-Phasenschlupf mit Hilfe eines Kreuzkorrelators (Abschnitt 7.2). Während letztere nur eine Spannung proportional zur CE-Frequenz liefert und sich daher winzige Phasenfehler schnell aufintegrieren, ergibt sich aus der "self-referencing" Methode die CE-Frequenz in zählbarer Form, d.h. in Form einer oszillierenden Spannung. Als solche hat diese auch eine Phase, die, relativ zur Phase der Repetitionsfrequenz, im Prinzip sogar die CE-Phase ergibt. Um die CE-Phase allerdings auf diesem Wege ableiten zu können, müssten sämtliche Laufzeitunterschiede, die Phasenverschiebungen zwischen ω_{CE} und ω_r bewirken, auf Bruchteile von π bekannt sein. Dazu gehören auch Unterschiede in den Gruppenlaufzeiten des Interferometers. Dies ist in der Praxis kaum mit der gewünschten Genauigkeit durchführbar. So dass im Gegensatz zum CE-Phasenschlupf $\Delta\varphi$ die CE-Phase φ, also die Phase des Trägers relativ zu einem bestimmten Punkt der Einhüllenden, mit den bisher beschriebenen Techniken in der Praxis nicht messbar ist. Die Stabilisierung von ω_{CE} erzeugt also reproduzierbare Pulse, jedoch mit unbekannter CE-Phase. Falls die Kamm-Offsetfrequenz, und damit der CE-Phasenschlupf, auf Null stabilisiert wird, ergibt sich ein Pulszug mit genau reproduzierbaren Feldern.

Seit es die Möglichkeit gibt den CE-Phasenschlupf zu kontrollieren, wird daher intensiv die Möglichkeit diskutiert, dass bestimmte nichtlineare Prozesse, wie die optische Feldionisation, Tunnel Ionisation von Festkörpern und die Erzeugung hoher Harmonischer, von dieser Phase abhängen [179, 180, 181, 182, 183, 184]. Bei der Erzeugung hoher Harmonischer [27] und Feldionisation [26] gab es bereits experimentelle Hinweise auf eine Phasenabhängigkeit, wobei die direkte Rückführung der beobachteten Effekte auf die, auch in diesen Experimenten nicht messbare CE-Phase, nicht möglich war.

12.1 CE-Phasen abhängige Erzeugung von Attosekunden Pulsen

Um die CE-Phasenabhängigkeit zu veranschaulichen kann der folgende Gauß-förmige Modellpuls verwendet werden:

$$E(t) = E_o e^{-t^2/2\tau^2} \cos(\omega_c t + \varphi) \tag{12.1}$$

Aus Abbildung 3.2 wird ersichtlich, dass die Spitzenfeldstärke und damit nichtlineare Prozesse eines solchen Pulses, davon abhängt, ob es sich um "cos-Puls" ($\varphi = 0$) oder um einen "sin-Puls" ($\varphi = \pi/2$) handelt. Eine solche Abhängigkeit ist selbst dann unter bestimmten Bedingungen zu erwarten, wenn weitere Details, wie etwa die Renomierung des Modellpulses auf konstante Pulsenergie, die Modifikation der Pulseinhüllenden durch das Weglassen der nicht propagierenden DC-Komponente und die Berücksichtigung der Gouy Phasenverschiebung berücksichtigt werden [183]. Allerdings ist der erwartete Einfluss der CE-Phase im Allgemeinen so klein, dass nur die Detektion mit sehr kurzen und sehr intensiven Pulsen realistisch erscheint. Zu ihrer Erzeugung ist es bislang notwendig, die Pulse eines Laseroszillators einer weiteren optischen Verstärkung zuzuführen. Für die Erzeugung hoher Harmonischer etwa, werden Spitzenintensitäten von mindestens 10^{14} W/cm^2 benötigt. Mit einem typischen Femtosekundenlaser mit einer mittleren Ausgangsleistung von 500 mW, einer Repetitionsfrequenz von 100 MHz und einer Pulslänge von 10 fs erreicht man bestenfalls eine Spitzenintensität von 5×10^{-9}J/10fs $(1\mu\text{m})^2 = 5\times10^{13}$ W/cm^2.

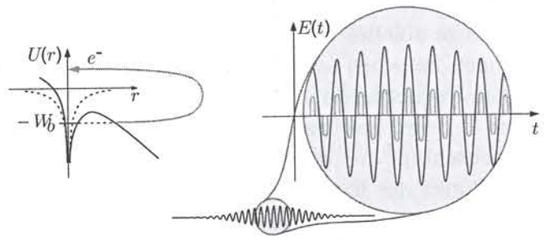


Abbildung 12.1: *Links: Das atomare Potential $U(r)$ (gestrichelte Linie) wird durch den Laser so stark modifiziert (durchgezogene Linie), dass eine Tunnelionisation möglich wird. Bei der anschließenden Rekombination strahlt das Elektron seine Energie ab. Rechts: Durch die Wiederholung dieses Vorgangs mit jedem optischen Zyklus, entstehen Harmonische des Laserfeldes.*

Die Abbildung 12.1 stellt den Erzeugungsmechnismus hoher Harmonischer in vereinfachter Weise dar. Das elektrische Feld eines sehr intensiven Lasers (ab etwa 10^{14} W/cm^2) ionisiert einige der Atome, die dann bei der Rekombination nach etwa einem halben optischen Zyklus, ihre Energie abstrahlen. Diese Energie bestimmt sich aus der Bindungsenergie W_b

und der Energie, die das Elektron durch die Bewegung im Feld des Lasers erhält. Diese sehr kurzen Strahlungsereignisse treten für relativ lange Laserpulse mit jeder Halbperiode des Laserfeldes auf, und erzeugen Harmonische, genau wie durch die Pulswiederholung Harmonische der Pulswiederholrate entstehen. Wegen der Inversionssymmetrie des Gases treten nur ungerade Harmonische auf, die bei elliptischer Polarisation des Lasers völlig verschwinden, weil es unter dieser Bedingung zu keiner Rekombination kommt. Weil sich die Phase der kurzen Strahlungsereignisse mit jeder Halbperiode des Laserfeldes um π ändert, ist die Situation vergleichbar mit einem Pulszug mit $\Delta\varphi = \pi$ in Gl. (3.12). Dieser erzeugt nach Gl. (3.5) ebenfalls ein Spektrum bestehend aus ungeraden Harmonischen der halben Pulswiederholrate.

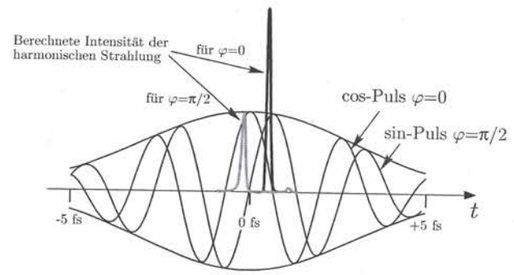


Abbildung 12.2: *Die berechnete Intensität von hohen Harmonischen eines Femtosekundenlasers [183] ($\lambda = 750$ nm, Pulsdauer 5 fs, Spitzenintensität 2×10^{15} W/cm^2) der in einem Helium Gasjet (Wechselwirkungslänge 18 μm, Gasdruck 500 Torr) fokussiert wird. Für die zwei verschiedenen Werte der CE-Phase ($\varphi = 0$ und $\varphi = \pi/2$) ergeben sich sehr unterschiedliche Ergebnisse, wenn man die Intensität der erzeugten Strahlung um 3.2 nm mit einer Bandbreite von 10% detektiert (Grafik aus Referenz [18]).*

Ein sehr interessantes Phänomen, das mit der Erzeugung hoher Harmonischer verbunden ist, findet unterhalb einer Pulslänge von etwa 25 fs, also etwa 9 optischen Zyklen bei 800 nm, und bei etwa 10^{15} W/cm^2 in einem Edelgasjet statt. Unter diesen Bedingungen findet die Ionisation innerhalb sehr weniger optischer Zyklen statt [185]. Das Ergebnis sind sehr kurze Pulse im 100 Attosekunden-Bereich, die kürzlich auch nachgewiesen werden konnten [186, 187, 188]. Ein Beispiel für einen solchen Prozess [18] zeigt die Rechnung in Abbildung 12.2. Sowohl das Spektrum, als auch die Intensität der Harmonischen, sollten in diesem Fall von der CE-Phase abhängen. Der durch eine "cos"-Anregung emittierte singuläre Puls hat die höchste Intensität und ein relativ flaches Spektrum, d.h. die verschiedenen Harmonischen gehen ineinander über. Im Gegensatz dazu hat der durch eine "sin"-Anregung emittierte Doppelpuls zumindest eine Komponente bei der doppelten Lichtfrequenz der Fundamentalen, so dass die Harmonischen im Spektrum getrennt erscheinen.

12.2 Einzelpuls Messung Bestimmung der CE-Phase Änderung

Um diesen Effekt nachzuweisen, wurde in Zusammenarbeit mit der Gruppe von Prof. Ferenc Krausz an der *Technischen Universität Wien*, der CE-Phasenschlupf eines Laseroszillators durch das im Abschnitt 9.2 beschriebene "self-referencing", stabilisiert. Die CE-Offsetfrequenz eines modengekoppelten Laseroszillators (Femtolasers GmbH, Modell Femtosource Compact Pro), wurde mit einem in unserem Labor gebauten Interferometer, wie im Abschnitt 9.2 beschrieben, stabilisiert. Als Lokaloszillator wurde dabei die elektronisch durch 4 geteilte Pulswiederholfrequenz verwendet, so dass sich $\omega_{CE} = \frac{1}{4}\omega_r$ ergibt. Dies hat nach Gl. (3.12) zur Folge, dass jeder vierte emittierte Puls einen identischen (aber unbekannten) Feldverlauf aufweist: $\Delta\varphi = 2\pi\omega_{CE}/\omega_r = 1/4$. Um die notwendige hohe Pulsenergie zu erreichen, wurde ein gepulst arbeitendes Titan-Saphir Multipass-Verstärkersystem (Femtolasers GmbH, Modell Femtopower) nachgeschaltet. In diesen wurde exakt jeder 80.000-te Puls aus dem Laseroszillator mit Hilfe einer Pockels-Zelle eingekoppelt. Dadurch ändert sich zwar die mittlere Ausgangsleistung nur unwesentlich, aber durch die Herabsetzung der Pulswiederholrate wird die zur Verfügung stehende Energie auf wesentlich weniger Pulse verteilt. Das Ergebnis ist ein Pulszug mit einer Repetitionsrate von nur etwa 1 kHz, aber mit einer Pulsenergie von fast einem mJ im Vergleich zu einigen nJ aus dem modengekoppelten Laseroszillator.

Um die verstärkten Pulse für weitere Experimente einzusetzen, musste geklärt werden, wie sich die Pulsverstärkung und die im Gerät eingebaute Pulskomprimierung auf die Stabilität der CE-Phase auswirkt. Die Bestimmung der CE-Frequenz mit der "self-referencing" Methode ist wegen des sehr niedrigen Modenabstands von nur 1 kHz problematisch. Bei einer Linienbreite des ω_{CE}-Schwebungssignals von nur 500 Hz würden sich die verschiedenen Ordnungen bereits überlagern. Daher wurde von Andrius Baltuška die spektrale Interferometrie [189, 190, 191] zur Detektion der CE-Phasen Fluktuationen eingesetzt. Wie in der Abbildung 12.3 dargestellt, wird dabei zunächst ein oktavenbreites Spektrum mit Hilfe der Selbstphasenmodulation erzeugt. Wegen der hohen Pulsenergie genügt es, den Strahl auf ein Saphirplättchen zu fokussieren. Die anschließende Fokussierung auf ein BBO-Plättchen verdoppelt den Bereich um 1000 nm. Dieser wird dann zur Interferenz mit dem Bereich um 500 nm aus dem oktavenbreiten Spektrum gebracht. Im Gegensatz zur "self-referencing" Methode aus der Abbildung 9.5 wurde kein Photodetektor, sondern ein Spektrometer mit ortsauflösender CCD Detektorzeile zur Detektion des CE-Phaseschlupfs verwendet. Außerdem wurde der Unterschied in den Gruppenlaufzeiten τ_d zwischen dem frequenzverdoppelten und dem original Puls nicht kompensiert. Dies ermöglichte einen sehr kompakten Aufbau.

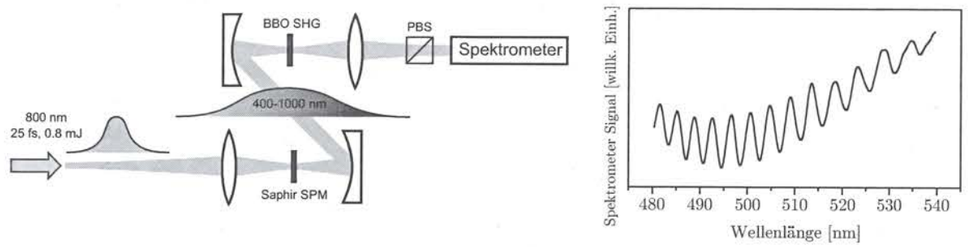


Abbildung 12.3: *Spektrale Interferometrie. Links: Das Spektrum der Pulse wird durch Selbstphasenmodulation (SPM) in einem Saphirplättchen auf eine Oktave aufgeweitet. Ähnlich wie in Abblidung 9.5 wird die in einem BBO-Plättchen erzeugte zweite Harmonische (SHG) um 500 nm mit dem aufgeweiteten Spektrum überlagert. Rechts: Die gemessene spektrale Interferenz, die durch die Projektion auf eine gemeinsame Polarisation, mit Hilfe eines polarisierenden Strahlteilers (PBS), entsteht.*

Das vom Spektrometer registrierte Signal ergibt sich rechnerisch aus dem Feldverlauf[1] des spektral verbreiterten Pulses

$$E_F(t) = A(t)e^{-i\omega_c t - i\varphi} \tag{12.2}$$

mit der Pulseinhüllenden $A(t)$, der Trägerfrequenz ω_c und der CE-Phase φ. Falls $A(t)$ einen bei $t = 0$ zentrierten symmetrischen Puls, zum Beispiel mit Gauss- oder 1/cosh-förmigen Einhüllenden [80], beschreibt, so gilt: $A(t) = A(-t)$ mit reeller Fourier transformierten $\tilde{A}(\omega)$. In diesem Fall lässt sich die reelle Amplitude des Spektrums wie folgt abspalten:

$$\tilde{E}_F(\omega) = \tilde{A}(\omega + \omega_c)e^{-i\varphi} = |\tilde{E}_F(\omega)|e^{-i\varphi} \tag{12.3}$$

Die zweite Harmonische ist proportional zum Quadrat des Feldes der Fundamentalen

$$E_{SH}(t - \tau_d) =: CE(t)^2 \Longrightarrow \tilde{E}_{SH}(\omega) = C\mathcal{FT}\left\{E(t)^2\right\} = |\tilde{E}_{SH}(\omega)|e^{-i2\varphi} \tag{12.4}$$

mit dem Proportionalitätsfaktor C. Das detektierte Signal $I(\omega)$ ergibt sich aus der Überlagerung der beiden Felder, wobei das Spektrometer eine Fouriertransformation durchführt und der nachgeschaltete Detektor die Intensität, also das Betragsquadrat, misst:

$$\begin{aligned} I(\omega) &= |\mathcal{FT}\left\{E_F(t) + E_{SH}(t)\right\}|^2 = |\tilde{E}_F(\omega) + \tilde{E}_{SH}(\omega)|^2 \\ &= I_F(\omega) + I_{SH}(\omega) + 2Re\left\{\tilde{E}_F^*(\omega)\tilde{E}_{SH}(\omega)e^{-i\omega_c\tau_d}\right\} \\ &= I_F(\omega) + I_{SH}(\omega) + 2Re\left\{|\tilde{E}_F(\omega)|e^{+i\varphi}\ \ |\tilde{E}_{SH}(\omega)|e^{-i2\varphi - i\omega_c\tau_d}\right\} \\ &= I_F(\omega) + I_{SH}(\omega) + 2\sqrt{I_F(\omega)I_{SH}(\omega)}\cos(\omega_c\tau_d + \varphi) \end{aligned} \tag{12.5}$$

[1] Die Verwendung eines komplexwertigen Felds erlaubt es auf einfache Weise die zeitliche und spektrale Intensität $|E(t)|^2$ und $|\tilde{E}(\omega)|^2$ und das Feld der zweite Harmonischen $\propto E(t)^2$ anzugeben.

Die Intensitäten der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen sind hier mit $I_F(\omega) = |\tilde{E}_F(\omega)|^2$ und $I_{SH}(\omega) = |\tilde{E}_{SH}(\omega)|^2$ bezeichnet. Die zeitliche Verzögerung τ_d zwischen den interferierenden Strahlen wurde mit Hilfe des Verschiebungssatzes (Gl. (3.16)) berücksichtigt. Das Interferenzmuster ist demnach mit der inversen Verzögerungszeit τ_d zwischen der Ankunftszeit der Pulse moduliert, wie das auch auf der rechten Seite der Abbildung 12.3 zu sehen ist. Für einen Pulszug mit stabilisiertem CE-Phasenschlupf $\Delta\varphi$ verschiebt sich das Interferenzmuster[2] bei jedem Puls um $\Delta\varphi$. Bei der Beschränkung auf einen kleinen spektralen Ausschnitt, oder falls mit $\tau_d = 0$ gearbeitet wird, wie im Abschnitt 9.2 beschrieben, lässt sich auf diese Weise die CE-Offsetfrequenz detektieren. Der große Vorteil dieser Detektion ist, dass sie mit beliebig niedrigen Repetitionsraten, bis herab zu Einzelpulsen arbeitet. Weil in der Implementation in Abbildung 12.3 alle Strahlen den selben Weg laufen, ergibt sich, zumindest theoretisch, die CE-Phase φ aus Gl. (12.5). In der Praxis gibt es jedoch zusätzliche, schwer zu kontrollierende, Phasenverschiebungen, zum Beispiel eine intensitätsabhängige Phasenverschiebung bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen und des oktavenbreiten Spektrums. Allerdings lassen sich mit dieser Methode Fluktuationen der CE-Phase messen.

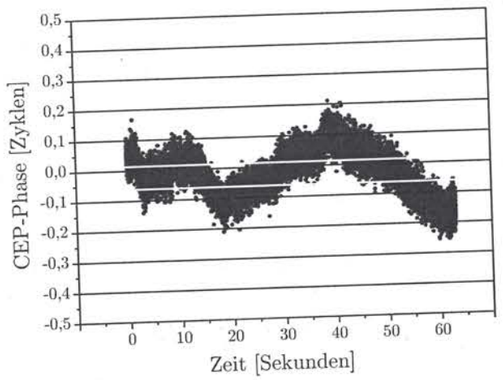


Abbildung 12.4: *Messung der CE-Phase (inklusive einer unbekannten Konstante) eines 1 kHz Multipass-Verstärkers, dem phasenstabile Pulse aus einem Laseroszillator zugeführt werden. Die CE-Phase wird mit der spektralen Interferometrie durch Fourier-Transformation des Spektrum (siehe Gl. (12.5)), wie es auf der rechten Seite der Abbildung 12.3 dargestellt ist, gewonnen. Jeder dritte Puls wurde zur Erstellung des Diagramms verwendet.*

[2]Die Richtung der Verschiebung hängt davon ab, ob die Gruppen- oder die Phasengeschwindigkeit im Laserresonator größer ist. Beschränkt man sich jedoch, wie bisher, auf den detektierbaren Anteil $0 \leq \Delta\varphi \leq 2\pi$, so kann sich ein anderes Bild ergeben, weil zum Beispiel eine Puls-zu-Puls Verschiebung um $\Delta\varphi = 0.9 \times 2\pi$ genau so erscheint wie $\Delta\varphi = -0.1 \times 2\pi$.

Eine solche Messung der Phasenstabilität am Ausgang des Multipass-Verstärkers ist in Abbildung 12.4 dargestellt. Man erkennt, dass die CE-Phase durch den Verstärker nicht übermäßig gestört wird. Die relativ langsamen Fluktuationen sind höchstwahrscheinlich auf Strahlinstabilitäten in einem dem Verstärker nachgeschalteten Prismenkompressor zurückzuführen, während die schnellen Fluktuationen wohl auf die erwähnte Intensitätsabhängigkeit des Messverfahrens zurück geht.

12.3 Rekonstruktion des Pulsfeldes, Bestimmung der CE-Phase

Um die in der Abbildung 12.4 dargestellte langsame Drift der CE-Phase am Ausgang des Multipass-Verstärkers zu reduzieren, wurde von Andrius Baltuška und Christoph Gohle eine zusätzliche Regelschleife implementiert, die mit Hilfe der gemessenen und zeitlich gemittelten CE-Phase, den CE-Phasenschlupf des Laseroszillators entsprechend nachstellt. Durch Addition, des mit Hilfe eines Computerprogramms aus dem spektralen Interferogramm gewonnenen Wertes für die CE-Phase, konnte diese beliebig verstellt werden. Um die Pulse aus dem Multipass-Verstärker zum Nachweis der CE-Phasenabhängigkeit der Spektren hoher Harmonischer zu nutzen, mussten sie weiter in ihrer Dauer verkürzt werden. Dies geschah durch eine weitere spektrale Verbreiterung durch Selbstphasenmodulation in einer Hohlfaser mit anschließender Pulskomprimierung. Der komplette Aufbau ist in der Abbildung 12.5 dargestellt.

Die Erzeugung hoher Harmonischer mit den so stabilisierten Pulsen wurde von Michael Hentschel und Matthias Uiberacker (ebenfalls TU Wien) in einem Neonstrahl durchgeführt. Dabei ergab sich die im Abschnitt 12.1 diskutierte Abhängigkeit der Spektren von der CE-Phase. Bei den kürzesten Wellenlängen, dem "cut-off" Bereich, verschmelzen die Harmonischen für eine "cos"-Anregung, während sich bei einer "sin"-Anregung bis zu den höchsten Photonenenergien separate Harmonische ergeben [28]. Weiterhin stimmen auch die restlichen Details des Spektrums, wie es in der Abbildung 12.6 dargestellt ist, mit der theoretischen Modellierung von Vladislav Yakovlev und Armin Scrinzi überein. Weil alle vorangegangenen Experimente lediglich auf Änderungen der CE-Phase empfindlich sind, ist die Detektion der hohen Harmonischen die erste Messung dieses Parameters. Zusammen mit anderen Pulscharakterisierungstechniken, kann somit zum ersten Mal der komplette zeitliche Feldverlauf der Laserpulse bestimmt werden[3].

[3]Wenn man von der Zweideutigkeit $\varphi \rightarrow \varphi + \pi$ absieht, die auch hier nicht unterschieden werden kann.

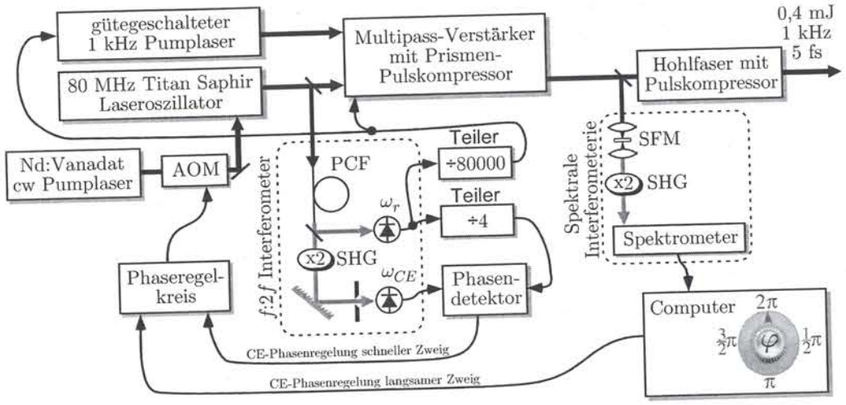


Abbildung 12.5: *Die Erzeugung von intensiven Pulsen mit stabilisierter CE-Phase an der TU Wien (A. Batuška und F. Krausz). Die CE-Offsetfrequenz des Laseroszillators (Pulsenergie 5 nJ) wird auf ein Viertel der Repititionsrate stabilisiert. Der Multipass-Verstärker wird exakt bei jedem 80.000-ten Puls aktiviert und liefert identische Pulse mit einer Wiederholrate von etwa 1 kHz und einer Pulsenergie von etwa 1 mJ. Nach der spektralen Verbreiterung in einer Hohlfaser und anschließender Pulskomprimierung, stehen phasenkontrollierte, sehr kurze Pulse hoher Energie zur Verfügung. Mit der schnellen Regelung wird die CE-Offsetfrequenz des Laseroszillators auf ein Viertel seiner Pulswiederholrate gehalten. Der langsame Zweig dient der Vorkompensation der CE-Phasendrift des Multipass-Verstärkers.*

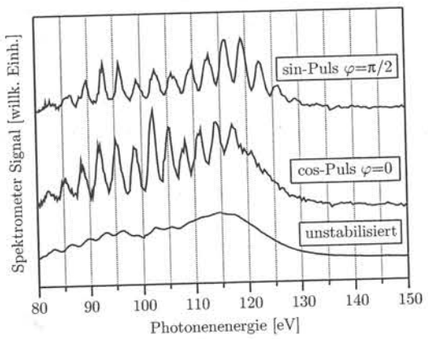


Abbildung 12.6: *Der "cut-off" Bereich entspricht in etwa der 80-ten Harmonischen, bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm des anregenden Lasers. Wegen der Kürze der Pulse ergeben sich jedoch erhebliche Abweichungen der Maxima von den Harmonischen des Lasers. Die Maxima der "cos"-Anregung fallen, unter den gegebenen experimentellen Parametern, auf die Minima der "sin"-Anregung, so dass diese sich bei unstabilisierter CE-Phase heraus mitteln. Zur Detektion wurde ein Zirkonium Filter verwendet, der im Wesentlichen nur für Photonenenergien oberhalb von 80 eV transparent ist.*

13. Anhang

13.1 Der vollständige Versuchsaufbau des ersten optischen Synthesizers

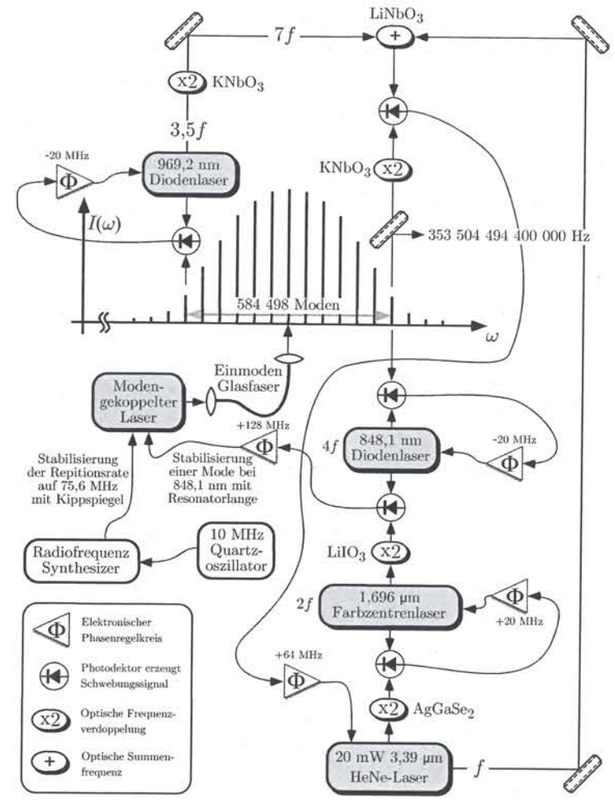


Abbildung 13.1: *Der vollständige Aufbau des ersten optischen Synthesizers. Die Frequenz des Quarzoszillators wird mit Hilfe des Frequenzkamms und vier zusätzlichen Lasern phasenkohärent ins Optische multipliziert.*

Der vollständige Aufbau des ersten optischen Synthesizers aus Abbildung 9.3 ist in der Abbildung 13.1 mit allen Details dargestellt. Die Lokaloszillatoren, einschließlich ihres Vorzeichens, sind neben den Symbolen für jeden Phasenregelkreis angeben. Dabei bedeutet ein negatives Vorzeichen, dass die Frequenz des geregelten Oszillators unterhalb der Frequenz des Oszillators schwingt, auf den er geregelt wird. Für jeden Phasenregelkreis ergibt sich eine lineare Gleichung für die beteiligten Frequenzen. Zum Beispiel ergibt sich für den Phasenregelkreis der die Frequenz f_{HeNe} des HeNe Lasers kontrolliert: $f_{HeNe} = 2f_{969} + 2f_{848} + 64$ MHz wobei f_{969} und f_{848} die Frequenzen der Diodenlaser sind. Löst man das sich ergebende System aus 5 linearen Gleichungen und setzt die Frequenzen der Lokaloszillatoren, der Repetitionsrate und der angegebenen Modenzahl ein, so ergibt sich:

$$f_{848} = 353\,504\,494\,400\,000 \text{ Hz} \tag{13.1}$$

Dieser Laser wurde mit einem zweiten Diodenlaser bei 848 nm, der auf eine Mode des optischen Synthesizers aus Abbildung 9.5 mit einem Lokaloszillator von -20 MHz stabilisiert war, zur Schwebung gebracht. Die Repetitionsrate war für diesen optischen Synthesizer $624,87$ MHz, so dass sich die Frequenz des Dioden Lasers nach Gl. (3.5) zu

$$565\,725 \times 624,87 \text{ MHz} + 64 \text{ MHz} + 20 \text{ MHz} = 353\,504\,624\,750\,000 \text{ Hz} \tag{13.2}$$

ergibt. Die CE-Phasenschlupffrequenz wurde dabei auf 64 MHz stabilisiert. Daraus ergibt sich eine Schwebungsfrequenz von $130,35$ MHz zwischen den beiden 848 nm-Diodenlasern. Der Aufbau ist zwar nur so genau wie der verwendete Quarzoszillator, weil aber sämtliche Frequenzen in beiden optischen Synthesizern auf diesen stabilisiert sind, fällt dieser Beitrag heraus. Das in Abbildung 13.1 dargestellte Experiment konnte relativ schnell von uns realisiert werden, weil der Teil bis $4f$ mit dem größten apparativen Aufwand bereits existierte (vergleiche Abbildung 5.1). Der größte zusätzliche Aufwand bestand in der Realisierung des 969 nm-Diodenlaser Systems. Die zweite Harmonische dieses Lasers musste stark genug sein, um noch die Summenfrequenz treiben zu können. Deswegen wurde dieses System mit Hilfe eines Trapezverstärkers und einem Überhöhungsresonator betrieben. Ähnlich wie dies bereits von Claus Zimmermann demonstriert wurde [192], erhält man auf diese Weise mehr als 100 mW bei $484,6$ nm.

13.2 Der vollständige Versuchsaufbau zur Bestimmung der $1S-2S$-Frequenz

Obwohl zeitlich vor dem Aufbau in Abbildung 13.1 realisiert, kann der Aufbau in Abbildung 13.2 als eine Erweiterung angesehen werden. Letztere wurde für die Bestimmung der Wasserstoff $1S-2S$-Frequenz eingesetzt, so wie sie im Kapitel 8.3 erläutert wurde. In der Abbildung 13.2 wird der Farbstofflaser des Wasserstoffspektrometers mit in den Aufbau

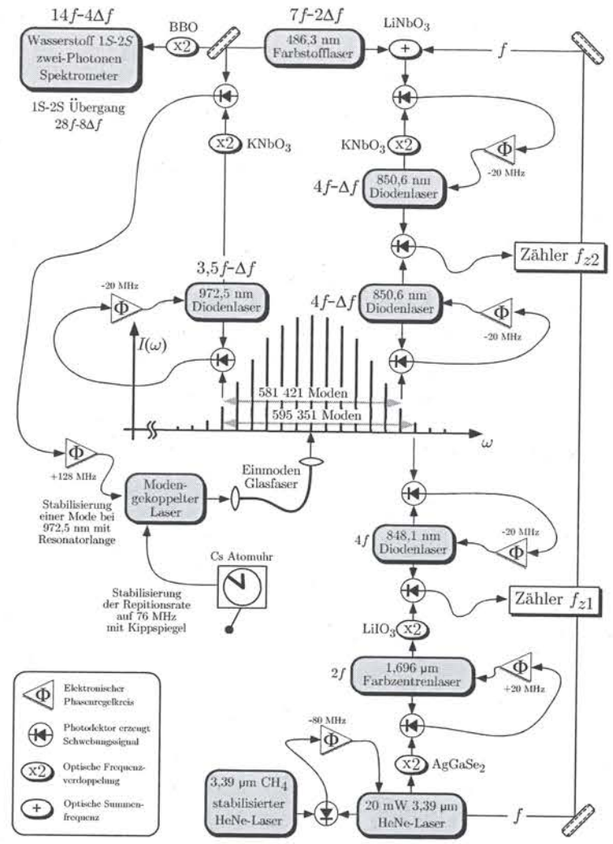


Abbildung 13.2: *Der Vollständige Aufbau wie er zur Messung der $1S-2S$ Übergangsfrequenz im Wassertsoff verwendet wurde. Dieser ist eine Variante des in Abbildung 13.1 dargestellten Aufbaus.*

einbezogen und ein zusätzlicher Diodenlaser verwendet, um neben der Frequenzlücke $0,5f$ auch noch die Frequenzlücke Δf zu bestimmen. Dadurch kann auf den Trapezverstärker verzichtet werden, der zu diesem Zeitpunkt noch nicht zur Verfügung stand. Ein weiterer Diodenlaser wurde verwendet, um das Signal-zu-Rausch Verhältnis an einem der Zähler zu optimieren. An insgesamt zwei Stellen sind Zähler, die die Frequenzen f_{z1} und f_{z2} zählen, integriert. Genau wie in Abbildung 13.1 kann für jeden Phasenregelkreis und jeden Zähler eine Gleichung aufgestellt werden. Durch die Lösung des Gleichungssystems ergibt sich

$$\begin{aligned} 4f_{dye} &= -8f_{z1} - 64f_{z2} + 32\,448\,136 \times 76\ \text{MHz} + 5,504\ \text{GHz} \\ &= -8f_{z1} - 64f_{z2} + 2\,466,063\,840\ \text{THz} \end{aligned} \tag{13.3}$$

wobei $4f_{dye}$ die vierfache Frequenz des Farbstofflasers ist, mit dem der $1S-2S$ Übergang angeregt wird. Die Absolutfrequenz des methanstabilisierten HeNe-Lasers fällt dabei heraus, so dass dieser im Prinzip auch unstabilisiert laufen kann. In der ersten Zeile erkennt man, dass $4f_{dye}$ quasi ausschließlich durch die vervielfachte Repetitionsrate bestimmt ist. Der 5,504 GHz Offset leitet sich aus den verwendeten Lokaloszillatoren ab. Mit den Anzeigewerten der Radiofrequenzzähler f_{z1} und f_{z2} ergibt sich $4f_{dye}$. Eine ähnliche Gleichung lässt sich für die Frequenz des Methanstandards herleiten. Dieser wurde bei der Wasserstoff-Messung mit kalibriert [167]. Trotz des vergleichsweise großen Aufwands sollte darauf hingewiesen werden, dass die Verwendung dieses optischen Synthesizers eine wesentliche Verbesserung gegenüber der vorher angewandten Methode [41] darstellte. Letztere arbeitete mit insgesamt 9 Phasenregelkreisen und konnte im Wesentlichen nur die Frequenz des Wasserstoff $1S-2S$ Übergangs messen. Diese Messung erfolgte dabei auch nur relativ zu einem methanstabilisierten HeNe Laser, der zudem auch noch wiederholt bei der PTB mit Hilfe einer weiteren Frequenzkette [39] kalibriert werden musste. Weitere Details des Aufbaus in Abbildung 13.2 finden sich in der Doktorarbeit von Joerg Reichert [113]. Eine Photographie der Cäsiumontänenuhr vom LPTF ist in der Abbildung 13.3 zu sehen.

Abbildung 13.3: *Die Cäsiumfontänenuhr aus der Gruppe von A. Clairon (BNM-LPTF Paris) in unserem Labor. Der dunkle senkrechte Zylinder beinhaltet unter anderem die vertikale Flugstrecke, die Magneto-optische Falle zum Einfangen der Atome und den Mikrowellen-Resonator zum Umklappen des ^{133}Cs Kernspins. Der silberne Kasten in der Bildmitte beherbergt die Optiken und die Diodenlaser zum Kühlen der Atome und ist mit Glasfasern mit dem Rest verbunden.*

13.3 Pressestimmen (Auswahl)

FRANKFURTER ALLGEMEINE SONNTAGSZEITUNG, 16. JUNI 2002, NR. 24

Münchner Lichtzauber

Mit einem Frequenzkamm können die Schwingungen des Lichts zum ersten Mal präzise ausgezählt werden

VON ROLAND WENGENMAYR

Licht inspirierte Goethe zu seiner Farbenlehre, und Licht führte die Physiker des frühen 20. Jahrhunderts zur Quantentheorie. Kaum ein Naturphänomen ist uns vertrauter, und kaum eines läßt sich so exakt beschreiben wie elektromagnetische Wellen, zu denen das Licht zählt. Noch im Halbschlaf kann jeder Physikstudent die einfache Formel hersagen: Lichtgeschwindigkeit ist gleich Lichtwellenlänge mal Lichtfrequenz.

Den Physikern in ihren Labors jedoch zeigte das Licht regelmäßig ihre Grenzen: Seine Frequenz, die wir als Farbe wahrnehmen, entzog sich praktisch jeder direkten Messung. Allein teure „Laserfabriken" durchlöcherten diese Mauer – aber nur geringfügig. Sie konnten nur eine einzige Lichtfrequenz messen, für die sie speziell konstruiert waren. Angesichts des ungeheuren Farbspektrums des sichtbaren Lichts war das wie ein Tropfen Wasser aus einem riesigen, unzugänglichen Ozean.

Den Experimentatoren blieb lange nur ein Umweg: Sie kannten die Wellenlänge des Lichts messen und daraus nach der Formel bequem die Lichtfrequenz errechnen. Allerdings konnte man die Wellenlänge nicht genauer als bis auf den echtmillionstel Teil bestimmen – und folglich auch die Frequenz nicht genauer berechnen. Schuld daran ist die „Lichtbeugung" an der Austrittsöffnung des Lasers: Dieser Effekt ächert die Laserstrahlen auf und verzerrt dabei die

Moderne Laser liefern extrem reine Farben – zu rein, um sie mit herkömmlicher Technik zu messen.

Form der Lichtwellenfronten. Nun hört sich eine Genauigkeit von eins zu zehn Milliarden sehr hoch an – und bis vor zwanzig Jahren genügte sie den Forschern auch. Moderne Laser unterschreiten diese Grenze aber um Größenordnungen, weil sie Licht in extrem reinen Farben ausstrahlen können. Sie eröffnen so den Forschern Einblicke in das quantenmechanische Spiel der Elektronen in Atomen und Molekülen. Aber erst die exakte Kenntnis der Lichtfrequenz liefert ihnen den wahren „Sesam, öffne dich" zu diesem Quantenreich.

Das ungelöste Problem der Frequenzmessung bremste nicht nur die Grundlagenforschung. Es verhinderte auch den Bau optischer Atomuhren, die tausendmal genauer ticken als heutige Atomuhren. Die Kommunikationstechnik und die satellitengestützte Navigation etwa benutzt immer genauere Zeitgeber. Daniel Kleppner, Physikprofessor am Massachusetts Institute of Technology, erwog daher, einen Preis auf die Lösung zu stiften. Er entschied sich aber dagegen, wie er in dem Fachblatt *Physics Today* schrieb: „Ich hatte den leisen Verdacht, daß Theodor Hänsch das Problem mit oder ohne Preis lösen würde. Ich hatte recht."

Theodor Hänsch, Direktor am Max-Planck-Institut für Quantenoptik in Garching bei München, ist sechzig. Doch wenn es um Physik geht, strahlt er die Neugier eines jungen aus, vor dessen Schrumbenzieher keine Uhr sicher ist. So auch, als er seine Apparatur erklärt. Sie wurde in Hänschs Garchinger Gruppe von einem kleinen Team um Thomas Udem und Ronald Holzwarth gebaut und trägt den rätselhaften Namen „Frequenzkamm".

Theoretisch ist eine Frequenzmessung simpel: Man zählt einfach mit, wie oft das berichtete System pro Sekunde schwingt. „Das kann man mit Radiowellen sehr gut machen", sagt Hänsch. „Wenn wir ein Radio auf 107,8 Megahertz einstellen, dann wissen wir, daß die empfangenen Radiowellen 107,8 Millionen mal pro Sekunde schwingen. Bei sichtbarem Licht sind diese Frequenzen jedoch enorm viel höher, fast zehn hoch fünfzehn. Schwingungen pro Sekunde!" Das sind zuviel Terahertz – viel zu schnell für jeden elektronischen Zähler.

Um diese gigantische Frequenz für ihre Meßgeräte erfaßbar zu machen, teilen die Physiker sie in abzählbare Portionen auf. Seit Jahrzehnten arbeiten sie an solchen „Untersetzungsgetrieben" für Licht, wie es der Frequenzkamm darstellt. Sein Titan-Saphir-Laser blitzt in einem schnellen, exakt gleichmäßigen Takt auf. Die Lichtpulse dauern nur wenige Femtosekunden. Das ist unvorstellbar kurz, ein paar Millionstel einer mil-

Licht, *verlegt zu tausend Farben.*

lardstel Sekunde. Motor der Blitze ist ein Lichtpuls, der im sogenannten „Resonator" des Lasers wie ein gefangener Tiger kreist. In jedem Laser führt ein solcher Resonatorkörper das Licht durch ein verstärkendes Medium – hier der Saphirkristall – und strahlt es gerade ab. Beim Frequenzkamm besteht er aus vier Spiegeln, die den Puls wie Pingpong-Schläger auf einem rechteckförmigen Umlaufkurs halten. Einer der Spiegel ist etwas transparent und läßt bei jedem Umlauf eine Kopie des Lichtpulses nach außen entweichen.

Diese Kopiertechnik verbreitet die einfachsten Lichtpulse mit dem gefingerten wie zwei Zahnräder, die ohne Schlupf ineinander greifen. Das Puls-Pingpong im Laser produziert ziemlich genau eine Milliarde Lichtblitze pro Sekunde", erklärt Udem. „Das klingt nach viel, aber eine Milliarde kann man sehr leicht zählen. Wir konnten diese Pulse so regulieren, daß genau nach jeder millionsten Schwingung der hohen optischen Laserfrequenz exakt ein Puls aus dem Femtosekunden-Laser herauskommt." Während also die hochfrequente Grundwelle des Frequenzkamms mit Lichtfrequenz schwingt, zählt die niederfrequente Seite langsam und präzise mit. Im Prinzip basieren das zwar schon die alten Laserfabriken – doch der Frequenzkamm ist nicht nur kleiner und billiger, er kann auch viel mehr.

Er produziert nämlich nicht allein Licht einer einzigen Frequenz. Dank trickreicher Nutzung der Quantenphysik strahlt er auf einem Schlag Hunderttausende verschiedener Lichtfarben aus. Diese teilen die Regenbogenfarben des sichtbaren Spektrums wie ein optisches Klavier in eine Tonleiter aus Lichtfarben ein. Gäbe es für die Farbtonleiter tatsächlich eine Klaviatur, dann bräuchte sie Hunderttausende von Tasten. Die Tasten lägen so dicht beieinander wie die Zähne eines extrem feinen Kammes – daher der Name „Frequenzkamm".

Die Feinheit des Kammes löst elegant ein weiteres Problem: Die Farben des Referenzlichts und des untersuchten Lichts müssen sehr nahe beieinanderliegen. Sonst würde die Differenz ihrer Frequenzen wiederum zu hoch für jeden Zähler werden. Durch seine dichte Farbfächerung bietet der Frequenzkamm zum ersten Mal zu jeder beliebigen Lichtfarbe eine sehr nahe liegende Referenzmode an. So hält er die Differenzfrequenz immer meßbar klein.

Seit kurzem vermarkten die Garchinger den Frequenzkamm sogar kommerziell in einer kleinen Start-up-Firma. Ein handgefertigtes Gerät kostet etwa 270 000 Euro, was im Vergleich zu einem Teilchenbeschleuniger ein Taschengeld ist. Zu den ersten Kunden zählt der Österreichische Bundesamt für Eich- und Vermessungswesen.

Solche staatlichen Institutionen kümmern sich um Zeitstandards und forschen dann an neuen, optischen Atomuhren mit einem lichtgetriebenen „Uhrwerk". Wie jede Uhr hat auch eine Atomuhr eine Art Pendel, dessen Schwingen den Zeitfluß möglichst gleichmäßig portioniert und ein Zählwerk, das die Zeitportionen mitzählt. In heutigen Standard-Atomuhren bilden bestimmte Elektronen von Cäsiumatomen das Pendel. Sie erzeugen ein Mikrowellensignal mit 9 192 631 770 Schwingungen pro Sekunde. Das Pendel optischer Atomuhren werden Elektronen sein, die mit sichtbarem Licht wechselwirken. Die bis zu tausendmal höhere Lichtfrequenz wird diese Uhren um den gleichen Faktor genauer machen. Dazu muß die Lichtfrequenz aber exakt meßbar sein – erst der Frequenzkamm ermöglicht deshalb den Bau solcher Atomuhren.

Satelliten lokalisieren Sender auf Zentimeter genau – aber nur, wenn sich Frequenzen exakt messen lassen.

Eine genauere Zeitmessung würde die Satellitennavigation viel präziser machen als das heutige GPS. Das Problem: Die Navigationssignale tauchen auf ihrem Weg zwischen Satelliten und Empfänger mehrfach durch die Tiefen des Erdschwerefelds. Nach Einsteins Allgemeiner Relativitätstheorie läuft die Zeit für die Signale um so langsamer, je tiefer sie im Schwerefeld reisen. Diese Zeitdehnung ist zwar so winzig, daß nur eine Atomuhr sie messen kann. Über die langen Reisewege addiert sie sich jedoch zu einem kräftigen Fehler auf. Das heutige GPS und das zukünftige europäische Galileo-System brauchen bereits eine solche relativistische Korrektur, um auf wenige Meter genau zu sein. Präzisere Atomuhren könnten diese Ortsauflösung auf Zentimeter oder sogar Millimeter steigern.

Eine weitere Idee hat Theodor Hänsch die Nominierung zum Deutschen Zukunftspreis 2002 eingebracht: Der Frequenzkamm könnte die Datenübertragungsrate in Glasfasernetzen enorm steigern. Mit seiner Information über die Lichtfrequenzen könnten die Ingenieure viel mehr Datenpakete zugleich in eine Faser packen.

Hänsch machte schon mehrfach die Erfahrung, daß aus „verrückten Spielereien" der Grundlagenforschung wirtschaftlich erfolgreiche High-Tech-Produkte entstehen können. Aus einer seiner frühen einstand eine Münchner Laserfirma, die heute schon fünfzig Arbeitsplätzen hat. Hänsch: „Aus der Grundlagenforschung kommen die ganz neuen Ideen – so wie Babys, die wir für unsere Zukunft brauchen." Jedenfalls gehört die Erforschung von Licht so manche Erleuchtung, wie schon Goethe erkannte.

Frankfurter Allgemeine Zeitung Mittwoch, 18. Juli 2001, Nr. 164 / Seite N 1

Eine präzise optische Atomuhr

Laserschwingung von einzelnem Quecksilberatom stabilisiert

Eine neuartige Atomuhr, die wesentlich genauer ist als die Cäsiumuhren, mit denen bislang der Zeitstandard festgelegt wird, haben Wissenschaftler des National Institute of Standards and Technology (Nist) in Boulder/Colorado entwikkelt. Bei den Cäsiumuhren wird die Schwingung eines elektrischen Schwingkreises fortwährend mit einer charakteristischen Mikrowellenschwingung von Cäsiumatomen verglichen und bei der geringsten Abweichung sofort korrigiert. Die Zeit wird dadurch ermittelt, daß man die Schwingungszyklen des Schwingkreises zählt. Während die besten Atomuhren in dreißig Millionen Jahren auf eine Sekunde genau gehen, kann die neue Atomuhr im Prinzip eine Genauigkeit von einer Sekunde in zehn Milliarden Jahren erreichen.

Wie die Forscher in der Online-Ausgaben der Zeitschrift „Science" berichten, werden bei der Atomuhr die Schwingungen eines Lichtfeldes verwendet. Die optischen Oszillationen sind 100 000mal so schnell sind wie Mikrowellenschwingungen. Sie erlaubt deshalb eine wesentlich präzisere Zeitmessung. Die „Lichtschwingungen" werden von einem Farbstofflaser erzeugt und mit einer bestimmten optischen Schwingung eines einzelnen Quecksilberions verglichen, das dazu die ganze Zeit in einer Ionenfalle isoliert und weitgehend von störenden Umwelteinflüssen abgeschirmt ist. Weil es zudem nahezu ruht, ist die Frequenz der optischen Schwingung des Ions, die man zur Zeitmessung nutzt, genau bekannt. Weicht die Frequenz des Laserlichtes von der des Quecksilberions ab, wird sie über einen Regelkreis nachjustiert.

Die schnellen optischen Schwingungen können nicht mehr wie die langsameren Mikrowellenschwingungen auf elektronischem Wege gezählt werden. Die Forscher des National Institute of Standards and Technology mußten deshalb auf eine Technik zurückgreifen, die man am Max-Planck-Institut für Quantenoptik bei Garching entwickelt hat. Die Laserschwingung, deren Frequenz man bestimmen wollte, wurde mit einem sogenannten Frequenzkamm verglichen. Dieser Kamm enthielt eine enorme Zahl von Frequenzen, die gleichmäßig über das ganze optische Spektrum verteilt waren. Der „Abstand" benachbarter Frequenzen lag im Mikrowellenbereich. Zur Bestimmung der Frequenz der Laserstrahlung ermittelte man zunächst diejenige Frequenz, die ihr am nächsten kam. Dann bestimmte man ihre Differenz auf elektronischem Wege. Auf diese Weise gelang es, rund eine Billiarde Schwingungszyklen pro Sekunde einzeln zu zählen.

Die enorme Genauigkeit der optischen Atomuhr wird zahlreiche Anwendungen eröffnen. Davon sind die Forscher des National Institute of Standards and Technology überzeugt. Schon heute ist die genaue Zeitmessung mit Atomuhren eine unabdingbare Voraussetzung für die Informations- und Kommunikationstechnik sowie für die Satellitennavigation. In diesen Bereichen könnte die optische Atomuhr zu weitreichenden Verbesserungen führen. Darüber hinaus wird sie in der Grundlagenforschung verwendet werden, zum Beispiel in der Gravitationsforschung und bei der Prüfung der Frage, ob Naturkonstanten wirklich Konstanten sind oder ob sie sich im Laufe von Jahrmilliarden nicht doch vielleicht geringfügig ändern. sf

THE NEW YORK TIMES, TUESDAY, JULY 31, 2001

A New Atomic Clock May Push Precision to the Next Level

By KENNETH CHANG

The world's most precise timepieces are accurate to within a few millionths of a billionth of a second, losing or gaining a second every 20 million years or so. A new type of atomic clock has the potential to do far better, to be accurate to within a second every few billion years.

Scientists at the National Institute of Standards and Technology in Boulder, Colo., have built a clock tuned to a frequency where a single atom of mercury absorbs ultraviolet light. That advance could eventually enable scientific investigations into such quixotic questions as "Does the flow of time change over time?"

The mercury clock does not yet match the accuracy of the current atomic clocks, but the institute's researchers say that with additional work, it may prove 100 to 1,000 times as accurate.

"It certainly is a very big advance for atomic clocks," said Dr. Alan A. Madej, a research scientist in the frequency and time group at the National Research Council in Ottawa. "It's quite an achievement."

A paper describing the clock will appear in the journal Science.

Every clock consists of two fundamental parts: one that generates a stream of evenly timed ticks — the swings of a pendulum in a grandfather clock, for instance — and one that counts the ticks and converts them into seconds, minutes and hours. The faster the pendulum, the more accurate the clock.

In atomic clocks, oscillations of laser light serve as the pendulum swings. The current generation of atomic clocks uses lasers that emit microwaves, a lower frequency form of light, tuned to 9,192,631,770 oscillations a second, the precise frequency that microwaves are absorbed by atoms of cesium.

In principle, a clock tuned to the higher frequencies of optical lasers would be even more accurate. "It gives you more precision," said Dr. James C. Bergquist, one of the institute's clock makers. "You would like to divide up time into smaller and smaller increments."

But until now scientists lacked the requisite second part, a counter that could keep up with optical laser "ticks" rushing in at more than 400 trillion a second. "We want to count every one of them," said Dr. Scott A. Diddams, another scientist at the National Institute of Standards and Technology. "This has been the long-standing problem of trying to make an optical clock."

To solve the counting problem, institute scientists pulled off a neat trick. They used a pulsed optical laser, where each pulse consisted of exactly 532,361 oscillations. When they nudged the laser to a lower frequency, the duration of the pulses lengthened proportionally; higher frequencies produced quicker pulses.

While the scientists still could not keep track of individual light oscillations, they could easily count the pulses, each of which bundled together 532,361 oscillations. To tune the laser, a single mercury ion, an atom with one electron removed, was cooled to a few thousandths of a degree above absolute zero, minimizing error-creating heat vibrations. Mercury ions absorb a specific frequency of ultraviolet light.

The pace of ticks coming out of the mercury clock are about 20 times as steady as those coming out of current atomic clocks, the scientists said. That does not automatically mean that the new clock is a better timepiece. The scientists are building a second mercury clock and will perform experiments to determine how stray electric and magnetic fields and other environmental conditions alter the behavior of the mercury ion.

"All of those things could give a little shift that changes the frequency of the clock," Dr. Diddams said. "Those are things you have to quantify before you claim accuracy."

They will also explore whether other atoms like calcium may be more accurate than mercury.

A clock ready for official timekeeping is still years away, but its benefits could include better precision in global positioning satellite systems that aid navigation. It could also enable physicists to test whether some properties describing atomic forces, now believed to be constant, are slowly changing as the universe expands.

More precise clocks could also enable a closer probing of Einstein's theory of general relativity, which dictates that time flows more slowly under the pull of gravity. Current atomic clocks can already detect the speeding of time when they are lifted up about one yard, where gravity is just slightly weaker.

The new clocks may be able to detect the differences in the flow of time resulting from a half-inch change in altitude.

Tick-tock: an atom of mercury absorbs ultraviolet light.

Geoffrey Wheeler

Dr. Scott A. Diddams, left, of the National Institute of Standards and Technology, and Dr. Thomas Udem helped develop the mercury clock.

Neue Zürcher Zeitung — FORSCHUNG UND TECHNIK — Mittwoch, 7. Juli 1999 · Nr. 154 — 67

Räderwerke für eine optische Uhr

Femtosekunden-Laserpulse als hochpräziser Massstab

Gespeicherte Ionen, die mit optischen Frequenzen schwingen, könnten zur Grundlage eines zukünftigen Frequenzstandards werden. Hierzu müssen sich die Ionen allerdings an den heute gebräuchlichen Cäsium-Atomuhren messen lassen. Dieser Vergleich setzt ein «Uhrwerk» voraus, das optische Frequenzen fehlerlos in Radiofrequenzen transformiert. Ein solches Uhrwerk ist nun von deutschen Forschern entwickelt worden.

Spe. Keine physikalische Einheit lässt sich genauer messen als die Zeit. Die besten Atomuhren gehen pro Tag nur Bruchteile einer Milliardstel Sekunde vor oder nach. Für praktische Belange mag das ausreichen. Trachtet man jedoch danach, fundamentale Gesetze der Physik zu überprüfen oder Naturkonstanten präziser zu bestimmen als bisher, sind genauere Uhren unabdinglich. Als vielversprechende Alternative zu den heute verwendeten Cäsium-Atomuhren gelten optische Frequenzstandards. Auch in diesen Uhren fungieren Atome (bzw. Ionen) als «Pendel». Die Ionen schwingen allerdings bei optischen Frequenzen, also bis zu hunderttausendmal so schnell wie die Atome in einer Cäsiumuhr. So fallen kleinere Störungen des Pendels weniger ins Gewicht. Weil die optischen Frequenzen zudem sehr scharf definiert sein können, verspricht man sich Frequenzstandards, die bis zu tausendmal genauer sein sollen als die heutigen Atomuhren.

Mit einem Pendel allein ist es allerdings nicht getan. Zu einer Uhr gehört auch ein «Uhrwerk», das die Schwingungen des Pendels in eine Zeigerstellung übersetzt. Im Falle der optischen Uhr heisst das: die optischen Frequenzen, mit denen die Atome schwingen, müssen in Radiofrequenzen umgesetzt werden, weil nur diese sich elektronisch zählen lassen. Ein solches Uhrwerk haben nun Forscher vom Max-Planck-Institut für Quantenoptik in Garching entwickelt. Das «optische Getriebe» ist nicht nur extrem genau, es überbrückt das Intervall zwischen optischen Frequenzen und Radiofrequenzen auch mit weniger Zwischenschritten, als dies bisher möglich war.

Vergleich von Frequenzen

Licht besitzt typischerweise eine Frequenz von einigen 100 Terahertz (1 Terahertz entspricht 1000 Gigahertz). Das ist weit mehr, als man mit elektronischen Zählern zählen kann, deren Grenze bei 100 Gigahertz, also im Radiofrequenzbereich, liegt. Möchte man optische Frequenzen messen, muss man mithin ein Intervall überbrücken, das sich über mehr als drei Grössenordnungen erstreckt. Das geschieht heute mit sogenannten Frequenzketten. Man geht dabei von einem Oszillator im Radiofrequenzbereich aus, der mit Hilfe einer Cäsiumuhr kalibriert wurde. Mit nichtlinearen Elementen erzeugt man sukzessive höhere Harmonische der Grundmode – Schritt für Schritt vervielfacht man also die Frequenz, bis man im optischen Bereich landet.

Diese Methode hat jedoch verschiedene Nachteile. Zum einen geht bei jeder Frequenzvervielfachung Leistung verloren. Zur Verstärkung muss man deshalb nach jedem Schritt einen Oszillator zwischenschalten, der auf die Frequenz der Harmonischen stabilisiert wird. Das macht die Frequenzkette kompliziert. Zum anderen ist die optische Frequenz durch die Grundfrequenz vorgegeben. Eine benachbarte Frequenz lässt sich mit der gleichen Kette bereits nicht mehr bestimmen, weil die Anzahl der Schwingungen kein Vielfaches der Grundfrequenz ist.

Sinnvoller wäre es deshalb, bei der optischen Frequenz zu starten und diese so lange in kleinere Häppchen zu unterteilen, bis man bei einer messbaren Radiofrequenz landet. Mit einer Kette von «Frequenzintervallteilern» ist das tatsächlich möglich. Ein solcher teilt ein beliebiges Frequenzintervall in zwei gleiche Teile. Mit einem Trick lassen sich mit dieser Methode absolute Frequenzen messen. Hierzu verdoppelt man zunächst die optische Frequenz. Das Intervall, das von der optischen Frequenz und ihrer zweiten Harmonischen begrenzt wird, besitzt dann eine der Absolutfrequenz entsprechende Breite.

Dass man mit fünf dieser Teilerstufen Intervalle von einigen Terahertz halbieren kann, bis sie elektronisch messbar werden, hatte die Arbeitsgruppe von Theodor Hänsch vom MPI für Quantenoptik bereits vor zwei Jahren demonstriert. Bei Intervallen von einigen hundert Terahertz ist diese Art von Uhrwerk allerdings überfordert, weil zu viele «Zahnräder» – sprich Teilerstufen – erforderlich wären. Die Forscher haben aber eine Möglichkeit gefunden, einen Teil des Intervalls auf andere Art zu überbrücken. Sie verwenden hierzu einen «modengekoppelten» Laser.

Während ein Laser normalerweise nur Licht einer Frequenz emittiert, schwingt ein solcher Laser in vielen Moden gleichzeitig. Sein Spektrum erinnert in seiner Regelmässigkeit an einen Kamm. Wenn alle diese Moden mit gleicher Phase schwingen, resultiert ein Laserpuls, der um so kürzer ist, je breiter das Frequenzband ist, über das die Moden verteilt sind. So erstreckt sich das Spektrum eines 70 Femtosekunden langen Pulses über einen Frequenzbereich von 20 Terahertz.

Femtosekundenpulse setzen Massstäbe

Der Frequenzkamm vereinfacht den Vergleich zwischen einer optischen Frequenz und der Radiofrequenz einer Cäsiumuhr ungemein. Um beispielsweise ein optisches Intervall mit einer Breite von 300 Terahertz genau zu vermessen, ginge man wie folgt vor. Zunächst würde man das Intervall mit Intervallteilern so lange halbieren, bis es kleiner als 20 Terahertz ist. Hierzu sind lediglich vier Teilerstufen notwendig. Der restliche Teil des Intervalls liesse sich dann mit dem Frequenzkamm überbrücken.

Der Frequenzvergleich läuft dann darauf hinaus, die Moden zu zählen, die zwischen den Endpunkten des Intervalls liegen. Die Genauigkeit dieses Verfahrens hängt davon ab, wie regelmässig der Abstand zwischen den einzelnen Moden ist. Das Ergebnis überraschte die Forscher selbst. Mit dem Frequenzkamm lassen sich zwei Frequenzen mit einer Genauigkeit vergleichen, die besser als 3×10^{-17} ist. Diese Genauigkeit stellt selbst die besten Cäsiumuhren weit in den Schatten, die lediglich eine Genauigkeit von 2×10^{-15} erreichen. An dem Uhrwerk sollte der Bau einer optischen Uhr also nicht mehr scheitern.

Was optischen Uhren derzeit noch im Weg steht, ist die ungenügende Langzeitstabilität der mit optischen Frequenzen schwingenden Ionen. Indem man die Ionen abkühlt und in eine aus elektrischen oder magnetischen Feldern bestehende Falle einsperrt, lassen sich störende Einflüsse von aussen zwar weitgehend abschirmen. Die zum Einschluss der Ionen verwendeten Felder können jedoch dazu führen, dass die Resonanzfrequenz mit der Zeit driftet.

Solche systematischen Effekte wollen die Garchinger Forscher in nächster Zeit genauer untersuchen. Sie arbeiten hierzu mit ihrem Kollegen Herbert Walther zusammen, in dessen Arbeitsgruppe in den letzten Jahren ein optischer Frequenzstandard auf der Basis eines eingesperrten Indium-Ions entwickelt wurde. Mit dem optischen Räderwerk kann die absolute Frequenz des Indium-Ions gemessen werden. Eine Drift der Frequenz liesse sich feststellen, indem man die Messung zu verschiedenen Zeiten wiederholt.

Verbesserte Cäsium-Atomuhr

Es wird für optische Frequenzstandards nicht leicht sein, Cäsium-Atomuhren in puncto Genauigkeit und Stabilität zu übertreffen. Denn auch letztere werden ständig verbessert. Erst kürzlich ist es der Gruppe von André Clairon vom Observatoire de Paris gelungen, die störenden Einflüsse in einer Cäsium-Atomuhr so weit zu reduzieren, dass die Frequenzstabilität der Uhr nur noch durch fundamentale Gesetze der Quantentheorie begrenzt wird. Die Forscher kühlten die Atome mit einem Laser ab und liessen sie dann wie in einer Fontäne aufsteigen. Die Atome passierten auf ihrem Hin- und Rückweg einen Mikrowellenresonator, dessen Frequenz über eine Regelschleife auf die Frequenz der Atome abgestimmt wird. Auf diese Weise lassen sich die Schwingungen der Atome zählen. Das Ergebnis dieser Bemühungen war eine um den Faktor fünf verbesserte Stabilität. Damit ist die Cäsiumuhr der französischen Forscher die genaueste Uhr der Welt.

Derzeit befindet sich die in Paris entwickelte Atomuhr in Garching. Die beiden Forschergruppen wollen eine im UV-Bereich liegende Spektrallinie des Wasserstoffs neu vermessen. Anhand dieser Spektrallinie lassen sich fundamentale Gesetze wie die Quantenelektrodynamik überprüfen. Die Frequenz dieser Spektrallinie konnte vor zwei Jahren am MPI für Quantenoptik auf 13 Dezimalstellen bestimmt werden. Dabei zeigte sich, dass die Genauigkeit dieser Messung nicht etwa durch das optische Getriebe – damals verwendete man ausschliesslich Intervallteiler –, sondern durch den zum Vergleich herangezogenen Helium-Neon-Laser begrenzt wurde. Mit Hilfe der Cäsium-Atomuhr aus Paris und dem neuartigen Uhrwerk möchte man die damals schon ausserordentlich präzise Messung nun nochmal verbessern und damit neue Massstäbe für den Test von physikalischen Theorien setzen.

Quellen: Optics Letters *24*, 881–883 (1999), Phys. Rev. Lett. *82*, 3568–3571; 4619–4622 (1999).

Mittwoch, 25. April 2001 · Nr. 95 — FORSCHUNG UND TECHNIK — 81

Neue Zürcher Zeitung

Die Atomisierung der Zeit

Neue Frequenzstandards mit einzelnen Ionen

Die Cäsiumuhren, die seit 1967 die Sekunde definieren, haben in jüngster Zeit Konkurrenz bekommen. Mit einzelnen, in einer Falle gespeicherten Ionen lassen sich heute schon Frequenzstandards mit einer fast ebenbürtigen Genauigkeit realisieren. Und das Verbesserungspotenzial dieser Ionen ist noch längst nicht ausgeschöpft.

Vor zweieinhalb Jahren verkündete ein Schweizer Uhrenhersteller eine neue Zeitrechnung. Das Unternehmen schaltete kurzerhand die regionalen Zeitzonen ab, unterteilte den Tag und Nacht nicht in 24 Stunden, Minuten und Sekunden, sondern in 1000 Beats und definierte einen «Biel-Meridian» als geographische Referenzlinie einer universellen Internetzeit. Solche Aktivitäten darf man getrost auf das Konto der Marketingabteilung verbuchen. Ganz so einfach ist es nämlich nicht, die Sekunde als Einheit der Zeit abzudosen. Schon für die Neudefinition der Sekunde müssen internationale Vereinbarungen getroffen werden. So definierte die 13. Generalkonferenz für Mass und Gewicht im Jahr 1967 die Sekunde als das 9 192 631 770fache einer Schwingungsdauer einer charakteristischen Resonanz des Cäsiumatoms. Mit Cäsiumuhren lässt sich heute vermutlich die Sekunde auf 12 Dezimalstellen genau zu bestimmen.

Was kommt nach der Cäsiumuhr?

Inzwischen wurden die Messverfahren so weit verbessert, dass die weltbesten Cäsiumuhr eine Genauigkeit von 15 Dezimalstellen erreicht. Diese Uhr würde auch nach 30 Millionen Jahren höchstens eine Sekunde falsch gehen. Für manche Zwecke reicht selbst diese Präzision nicht aus. Doch die Cäsiumuhren sind technologisch ausgereizt und lassen an physikalische Grenze. Daher suchen die Metrologie-Institute nach Alternativen. Am vielversprechendsten erscheinen Atome, deren Grundzustand von zwei Energieniveaus im Cäsiumatom nur wenig voneinander abweichen. Dazu gehören Cäsiumatome mit einem einzelnen Elektron im äussersten Orbital. Dort resultiert erstens die vom Elektron der Sekunde definierte Übergangsfrequenz aus einer Energiedifferenz zweier Niveaus, die sich nicht durch Störungen beeinflussen lassen. Zweitens ist die Übergangsfrequenz relativ hoch. Sie liegt im optischen Bereich, also bei Frequenzen von 10 Terahertz (1 Terahertz = 1000 Gigahertz). Je höher die Frequenz, desto mehr Schwingungen pro Sekunde lassen sich zählen und desto präziser kann die Sekunde definiert werden.

Die Schwierigkeit besteht darin, eine Uhr zu bauen, die diese Frequenz auch nutzt. Dazu muss man zunächst einen Oszillator finden, der mit dieser Frequenz schwingt. Dann muss man die Schwingungen dieses Oszillators zählen können. Beides ist nicht einfach. Bei Frequenzen im Terahertzbereich sind Oszillatoren, die mit einer Genauigkeit von mehr als 10 Dezimalstellen schwingen, nicht bekannt. Und Zähler, die so schnell sind, dass sie noch jede einzelne Schwingung registrieren, gibt es nicht. Man kann zwar mehrere Schwingungen zusammenfassen und dann mit einem schnellen Zähler messen. Aber dann geht die Präzision des Oszillators verloren.

Trend zu höheren Frequenzen

Die Idee für genauere Uhren ist simpel: Je höher die Frequenz der atomaren Schwingung, umso präziser die Uhr. Denn eine Sekunde lässt sich dadurch in feinere Zeiteinheiten zerlegen, so wie ein Zahnrad mit schmaleren Zacken eine genauere Winkelteilung erlaubt. In den jüngsten Arbeiten werden Resonanzfrequenzen verwendet, die bis zu 100 000-mal höher liegen als die datenbankmässige Resonanzfrequenz im Cäsiumatom. Solche Resonanzen lassen sich mit sichtbarem Licht statt mit Mikrowellen anregen. Daher stammt auch der Trend zu immer höheren Frequenzen. Dabei ist aber Entwicklungsarbeit gefragt. Denn auch von der Realisierung der ersten Cäsiumuhr bis zur entsprechenden Definition der Sekunde vergingen rund 15 Jahre.

Max Rauner

Ionen als Taktgeber

Der auf einem kleinen Laborfisch passende Frequenzkammgenerator spielt bei den jüngsten Versuchen, optische Frequenzstandards auf der Basis von einzelnen Ionen zu entwickeln, eine wichtige Rolle. Denn die Genauigkeit eines neuen Standards lässt sich nur ermitteln, wenn ein Vergleich mit einer Cäsiumuhr möglich ist. Die Arbeitsgruppen von Jim Bergquist und Leo Hollberg vom National Institute of Standards and Technology in Boulder, Colorado, verwendeten für ihre Atomuhr ein Quecksilberion, das sie in einer Ionenfalle speicherten und auf ein laserkühlt. Dieses Ion hat in seiner äussersten Schale ein ungerades Elektron. Mit einem Laser versuchten die Forscher, das Elektron in ein höheres Energieniveau anzuregen. Gelang dies nicht, wurde der Versuch mit einer etwas anderen Laserfrequenz wiederholt, bis die Resonanz gefunden war. Eine elektronische Regelung sorgte dann dafür, dass die Laserfrequenz mit der charakteristischen Frequenz des Ions übereinstimmte.

Mit Hilfe der Frequenzkammgeneratoren vergleichen die Forscher diese Schwingung mit der Cäsiumatomuhr. Auf eine Sekunde, also auf 9 192 631 770 Schwingungen des Cäsiumatoms, entfielen 1 064 721 609 899 143 Schwingungen im Quecksilberion. Die Genauigkeit der Messung liegt bei vierzehn Dezimalstellen. Mit der gleichen Fraktion konnten Wissenschafter um Harald Telle und Christian Tamm an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt die Resonanzfrequenz eines ausgesprochenen Ytterbiumions bestimmen. An beiden Metrologie-Instituten ist man zuversichtlich, dass sich die Genauigkeit der Frequenzmessung weiter steigern lässt und die optischen Frequenzstandards bald die Rekorde der Cäsiumatomuhr einstellen werden.

Sowohl das Quecksilberion als auch das Ytterbiumion weisen eine Ladungsverteilung auf, die einen Angriffspunkt für elektrische Störfelder bietet. Bei höheren Genauigkeiten der Ionenfalle bietet der Übergang zwischen zwei Atomzuständen mit einer Lebensdauer von mehreren Jahren, eine weitere Schwingungsfrequenz, bei der die Natur zu Buche schlägt. Auch optische Frequenzstandards, die als Taktgeber neutrale Atome statt Ionen verwenden, dürften sich noch eine Chance ausrechnen. Relativ klar ist hingegen, dass eine Neudefinition der Sekunde wohl kaum vor dem Jahr 2010 erfolgen wird. Denn auch von der Realisierung der ersten Cäsiumuhr bis zur entsprechenden Definition der Sekunde vergingen rund 15 Jahre.

Max Rauner

WISSEN Tages-Anzeiger · Mittwoch, 25. Juli 2001

Das Ticken eines Lasers

Atomuhren sollen in den nächsten Jahren noch genauer werden. Der erste Schritt ist jetzt amerikanischen Physikern gelungen.

Von **Andreas Hirstein**

Seit 1967 bestimmt das Ticken von Cäsiumatomuhren, wie lange eine Sekunde dauert. Genau 9 192 631 770 Schwingungen einer von Cäsiumatomen ausgesendeten Mikrowelle müssen vergehen, bevor der Sekundenzeiger einen Schritt weiterspringt. An dieser Definition wird sich so schnell nichts ändern. Doch wie man noch weitaus genauere Uhren bauen kann, haben jetzt amerikanische Physiker vom National Institute of Standards and Technology (Nist) demonstriert. «Die Uhr könnte bis zu tausendmal so genau sein wie die bisher beste Atomuhr», sagt Thomas Udem vom Max-Planck-Institut für Quantenoptik bei München. Weltweit, so Udem, arbeiten deswegen auch zahlreiche andere Standardinstitute an der Entwicklung ähnlicher Uhren.

Dass genaue Uhren nicht nur von akademischem Interesse sind, zeigt das Satellitennavigationssystem GPS. Alle 24 Satelliten des Systems tragen Atomuhren, deren Zeitzeichen von GPS-Empfängern auf der Erde zur Positionsbestimmung gebraucht werden. Auch Computernetze wie das Internet funktionieren nur, wenn die verschiedenen miteinander verknüpften Computer über eine gemeinsame Zeit verfügen. Die Physiker vom Nist sind deswegen überzeugt, dass auch die jüngste Entwicklung ähnlich bedeutende Anwendungen finden könnte.

Wie konstant sind Naturkonstanten?

«Besonders profitieren werden aber Grundlagenexperimente», sagt Thomas Udem, der an den Experimenten am Nist beteiligt war. «Wir versuchen beispielsweise zu überprüfen, ob einige bekannte Naturkonstanten tatsächlich konstant sind oder ob sie sich eventuell mit der Zeit verändern. Und auch Einsteins Allgemeine Relativitätstheorie ist noch immer nicht zuverlässig überprüft. Dazu braucht man genauere Uhren», erklärt der Physiker.

So kompliziert eine moderne Atomuhr auch sein mag, sie misst die Zeit noch immer nach dem gleichen Prinzip wie eine Pendeluhr. Ein periodischer Vorgang – die Pendelbewegung – unterteilt die Zeit in gleich lange Abschnitte, die vom Uhrwerk registriert und aufaddiert werden. Die resultierende Summe wird schliesslich von den Zeigern der Uhr angegeben.

Eine Uhr ist umso stabiler, je schneller sich der periodische Vorgang wiederholt. Das ist der Grund, warum jede Quarzuhr für fünf Franken genauer arbeitet als eine mechanische Luxusuhr für 50 000 Franken. Der Quarz schwingt mit rund 33 000 Hertz, während die Unruh der mechanischen Armbanduhr nur mit 4 Hertz hin- und herpendelt.

Das Uhrwerk von Cäsiumatomuhren wird von Mikrowellen angetrieben, die eine Frequenz von über 9 Milliarden Hertz aufweisen. Noch stabiler könnte eine Uhr werden, wenn man sie statt von Mikrowellen von Lichtwellen antreiben liesse. Doch das war bisher nicht möglich, weil die Schwingungen des Lichts zu schnell sind, um von elektronischen Schaltungen verarbeitet zu werden. Mit anderen Worten: Es gab bisher kein Uhrwerk, das den schnellen Schwingungen einer Lichtwelle folgen konnte.

Ein optisches Getriebe

Gesucht war also eine Art optisches Getriebe, das die hohe Lichtfrequenz so weit reduziert, dass sie mit elektronischen Mitteln gemessen werden kann. Die Wissenschafter haben dieses Problem gelöst, indem sie das ultraviolette Licht eines Quecksilberions nutzten, um einen Laser in festen Zeitabständen zum Leuchten zu bringen – nach genau 100 000 Schwingungen der Lichtwelle des Quecksilbers wird ein Laserblitz ausgelöst. Diese Kopplung des Lasers an das ultraviolette Licht des Quecksilberions ist für die hohe Stabilität der Uhr verantwortlich.

In jeder Sekunde werden rund 1 Milliarde Blitze ausgelöst. Das ist das Ticken der Uhr. Es ist langsam genug, um von einem elektronischen Uhrwerk registriert werden zu können.

13.4 Patente

Das Europäische Patent EP 1 161 782 B1, *Erzeugung stabilisierter, ultrakurzer Lichtpulse und deren Anwendung zur Synthese optischer Frequenzen*, wurde erteilt. Ein gleich lautendes amerikanisches Patent ist beantragt. Der Patentinhaber ist die Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. und die Erfinder Ronald Holzwarth, Jörg Reichert, Thomas Udem und Theodor Hänsch.

Das Europäische Patent, *Verfahren und Vorrichtung zur Erzeugung stabilisierter ultrakurzer Laser-Lichtpulsen*, wurde am 5.9.2001 durch die Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. beantragt. Die Erfinder sind Ronald Holzwarth, Thomas Udem und Theodor Hänsch.

Das Europäische Patent, *Verfahren und Vorrichtung zur Erzeugung von Radiofrequenzwellen*, wurde am 5.9.2001 durch die Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. beantragt. Die Erfinder sind Ronald Holzwarth, Thomas Udem und Theodor Hänsch.

13.5 Auswahl der wichtigsten Veröffentlichungen

In der nachfolgenden Referenz [70] ist die erste optische Absolutfrequenzmessung mit einem Modengekoppelten Laser beschrieben (Kapitel 5). Damals wurde die Frequenz der Cäsium D_1 Linie mit einem genau kalibrierten methanstabilisierten HeNe Laser verglichen. Aus dem Messergebnis lies sich ein neuer Wert der Feinstrukturkonstanten bestimmen.

VOLUME 82, NUMBER 18 PHYSICAL REVIEW LETTERS 3 MAY 1999

Absolute Optical Frequency Measurement of the Cesium D_1 Line with a Mode-Locked Laser

Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch
Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Strasse 1, 85748 Garching, Germany
(Received 17 December 1998)

We have measured the absolute optical frequency of the cesium D_1 line at 335 THz (895 nm). This frequency provides an important link for a new determination of the fine structure constant α. The D_1 line has been compared with the fourth harmonic of a methane stabilized He-Ne laser at 88.4 THz (3.39 μm). To measure the frequency mismatch of 18.39 THz between 4×88.4 THz $= 354$ THz and the D_1 line a frequency comb spanning around 244 000 modes of a Kerr-lens mode-locked laser was used. We find 1 167 688 (81) kHz for the hyperfine splitting of the $6P_{1/2}$ state and 335 116 048 807 (41) kHz for the hyperfine centroid from which we derive $\alpha^{-1} = 137.035\,992\,4(41)$. [S0031-9007(99)09057-2]

PACS numbers: 06.30.Ft, 06.20.Jr, 42.62.Fi

The cesium atom serves as the primary standard of time, and it plays an important role in many experiments on laser cooling, trapping, and atom interferometry. Using a new approach to measure the frequency of light with femtosecond laser pulses we have determined the absolute frequency f_{D1} of the cesium D_1 resonance line near 895 nm to 1.2 parts in 10^{10}, surpassing the accuracy of the best previous measurements by almost 3 orders of magnitude [1]. This frequency is of particular interest for a new determination of the fine structure constant α taking advantage of the extremely well-known Rydberg constant $R_\infty = \alpha^2 c m_e/2h$ [2]. Chu and collaborators at Stanford are measuring the photon recoil shift of the D_1 line $f_{\mathrm{rec}} = f_{D1}^2 h/2m_{\mathrm{CS}}c^2$ with an atom interferometer aiming for an accuracy near the ppb (parts per 10^9) level [3]. Together with the proton-electron mass ratio m_p/m_e, which is known to 2×10^{-9} [4], and even more precise measurements of the cesium to proton mass ratio m_{CS}/m_p, which have been reported recently [5], our frequency measurement provides the missing link for the determination of the fine structure constant according to

$$\alpha^2 = \frac{2R_\infty}{c}\frac{h}{m_e} = 2R_\infty \frac{2f_{\mathrm{rec}}c}{f_{D1}^2}\frac{m_{\mathrm{CS}}}{m_p}\frac{m_p}{m_e}. \qquad (1)$$

Such a new determination of the fine structure constant is highly desirable in the light of persisting discrepancies between the values obtained so far by different methods [6].

In our experiment we compare the frequency of the cesium D_1 resonance line with the fourth harmonic of a transportable CH_4-stabilized 3.39 μm He-Ne laser [7]. The frequency of this reference laser has been calibrated at the Physikalisch Technische Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig against a microwave cesium atomic clock with their phase-locked harmonic laser frequency chain [8] to within 2.6 parts in 10^{13}. To bridge the large frequency gap between the fourth harmonic near 848 nm and the 895 nm Cs D_1 line, we employ a Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser as a precise active frequency comb generator, realizing, for the first time to our knowledge, a phase-coherent optical frequency measurement with ultrashort light pulses.

It has long been recognized [9] that the periodic pulse train of a mode-locked cw laser can be described in the frequency domain as a comb of equidistant longitudinal laser modes separated by the pulse repetition rate f_r. For an ideal laser emitting a periodic train of pulses of identical waveform the output can be described in the frequency domain by a Fourier series. The elements of this series correspond to the longitudinal laser modes whose frequencies would thus be high harmonics of the pulse repetition rate f_r. In a real laser the optical phase is shifted, by say $\Delta\varphi$, from pulse to pulse with respect to the envelope [10]. This is because the group velocity, which determines the round trip time, is generally not identical with the phase velocity of the pulse carrier frequency. However, if $\Delta\varphi$ stays constant, we still expect a comb of equidistant mode frequencies, spaced by the repetition frequency f_r, but with each frequency displaced from a multiple nf_r by an offset frequency $f_o = \Delta\varphi/2\pi T$, where $T = f_r^{-1}$ is the pulse repetition time. Recently we have tested the uniform distribution of the modes of such a frequency comb and showed that the mode separation agrees with the pulse repetition rate within an experimental uncertainty of a few parts in 10^{17} [11].

This test and the experiment described here have been carried out with a commercial Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser (Coherent Mira 900, 73 fs $\approx 1.5 \times$ Fourier limited pulses, 75 MHz repetition rate), pumped by a 5 W diode-pumped frequency-doubled single-frequency Nd:YVO_4 laser (Coherent Verdi). With this laser we have bridged a 20 THz frequency gap [=2.9 times the spectral width (FWHM)] with a millihertz precision. This is to our knowledge the largest frequency gap measured with a frequency comb. Even broader frequency combs can be created with shorter pulses and/or by four wave mixing in optical fibers [12,13].

The experiment, which is sketched in Fig. 1, is operated as follows: First the color center laser is phase locked to

 0031-9007/99/82(18)/3568(4)$15.00 © 1999 The American Physical Society

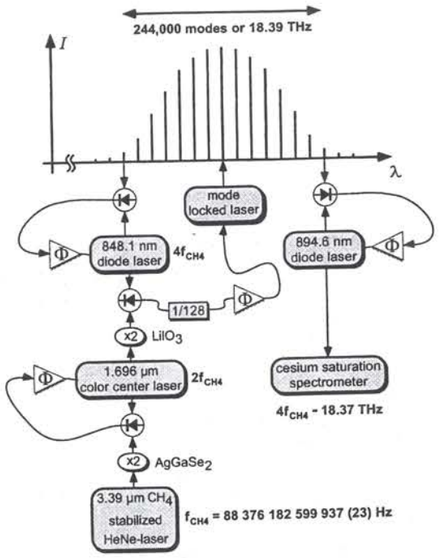


FIG. 1. Frequency chain that allows the comparison of the precisely known frequency of a methane stabilized He-Ne laser at 88.4 THz (3.39 μm) with the cesium D_1 transition at 335 THz (895 nm).

the second harmonic of the He-Ne standard by controlling the beat frequency between them with an electronic phase-locked loop. This forces the beat frequency to oscillate in phase [14] with a reference frequency of a few MHz (not shown in the figure) provided by a cesium atomic clock. The frequency of the color center laser is then known as precisely as the He-Ne standard. Next two grating-stabilized laser diodes [15] at 848 and 895 nm are locked to two suitable modes of the frequency comb after their absolute frequencies have been checked coarsely with a wave meter. As described below, the number of modes between the laser diodes is controlled to be an integer multiple of 20. A low noise beat signal (signal to noise ratio >30 dB in 400 kHz resolution bandwidth), necessary for phase locking, is created with the help of a grating that preselects some of the modes in the vicinity of the laser diode frequency. From the measured spectral intensity of the frequency comb we estimate the power of the modes in use to 40 nW. The mode to which the 848 nm laser is phase locked is stabilized to the second harmonic of the color center laser (fourth harmonic of the He-Ne standard). This is done with the help of a piezomounted folding mirror of the mode-locked laser that controls the beat frequency between the 848 nm laser diode and the second harmonic of the color center laser. Because of the rather low servo bandwidth of about 10 kHz at this stage we use a large range ($\pm 32\pi$) digital phase detector [14], as we do for locking the diode lasers, and a digital by 128 divider that increases the maximum possible phase fluctuations by a factor of 128. We continuously monitor the in-lock beat signals for possible lost cycles with additional counters operated at a different bandwidth, discarding data points that are off by more than 0.5 Hz from the given reference frequency. In the phase-locked condition the frequency of the laser that probes the cesium transition f_{895} is related to other known frequencies by

$$f_{895} = 4f_{\mathrm{HeNe}} - nf_r \pm 128 f_{\mathrm{ref}} - 280\ \mathrm{MHz}, \quad (2)$$

where $f_{\mathrm{HeNe}} = 88\,376\,182\,599\,937(23)$ Hz denotes the frequency of the methane stabilized He-Ne laser. By changing the reference frequency f_{ref} used for phase locking the 848 nm laser diode, we scan the frequency of the 895 nm laser diode. Exchanging the input signals of the phase detector allows the use of both signs in Eq. (2). The offset of 280 MHz is due to the remaining reference frequencies used for phase locking. The pulse repetition rate f_r of the free running laser is measured with a radio frequency counter (signal to noise ratio >60 dB in a resolution bandwidth of 400 kHz).

The cesium D_1 line was observed in a 7.5 cm long cell (Opthos Instruments Inc.) at room temperature. Several cells have been used in another experiment [16] where we measured the cesium D_2 transition frequency without noticeable frequency differences. To probe the cesium D_1 transition we use a saturation spectrometer with two linearly polarized counterpropagating laser beams with equal intensities (10 μW/cm^2). The pump beam redistributes the occupation number mainly by pumping the atoms to the other ground state hyperfine level so that the absorption of the probe beam is decreased. By chopping the pump beam the difference in absorption is detected with a lock-in amplifier. Because one beam can change the absorption of the other only through atoms whose Doppler shift is the same for both beams we detect only atoms that do not move along the laser beam axis. With this Doppler-free method we observe four hyperfine components of the single stable isotope ^{133}Cs for the transitions from the ground states $F_g = 3$ and $F_g = 4$ to the upper states $F_e = 3$ and $F_e = 4$. The observed linewidth of about 6 MHz (FWHM) was somewhat larger than the natural linewidth of 5 MHz. This is believed to be caused by the short term frequency fluctuations of the phase-locked lasers, allowed by the large range phase detectors. The crossover resonances were not visible due to the large separation of the excited state hyperfine components. Stray magnetic fields are reduced by a double cylindrical μ-metal shielding to values below 2 μT along the laser beam axis. The transversal field component has not been measured but is assumed to be much smaller. We find the line center of the resonances by fitting a Lorentzian with a linear background to it as shown in Fig. 2.

In order to obtain the correct frequency f_{895} the exact number of modes n between the two phase-locked laser diodes at 848 and 895 nm has to be determined. We could neither unambiguously identify the modes with our

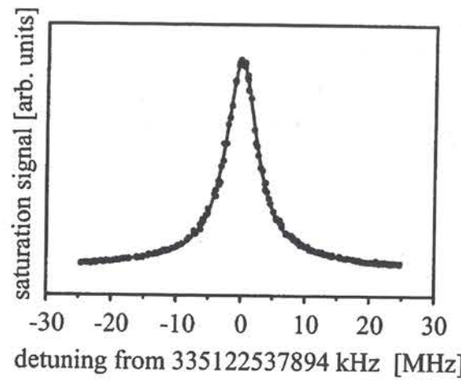


FIG. 2. The $F_g = 4 \rightarrow F_e = 4$ component of the cesium D_1 transition with fitted Lorentzian obtained from the saturation spectrometer. The absolute optical frequency is determined from Eq. (2).

wave meter nor did we want to rely solely on previous measurements in order to exclude the $f_r \approx 75$ MHz ambiguity. The observation of a frequency shift $n \times \delta f_r$ of one of the modes after changing f_r by δf_r may be difficult because it demands a resolution of δf_r to distinguish between the mode number n and $n \pm 1$. The shift $n \times \delta f_r$ could not be chosen too large if one has to track it with a phase-locked diode laser. To uniquely determine n of the order of 244 000 we employ a cavity that is stabilized to have a free spectral range of exactly 20 times the pulse repetition rate. On resonance this cavity transmits every twentieth mode of the frequency comb increasing the pulse repetition rate by a factor of 20. Then the beat signals between the frequency comb and one of the laser diodes are no longer separated by $f_r \approx 75$ MHz but by $20 f_r \approx 1.5$ GHz sufficient to be unambiguously identified by our wave meter. To make sure that the free spectral range of the cavity is indeed 20 times the pulse repetition rate we observe the transmission through the cavity as shown in Fig. 3. If the fraction of the free spectral range and the pulse repetition rate is a small integer such as 1:20 resonant fringes appear. A peak in the transmission appears if the piezocontrolled mirror spacing allows the transmission of every twentieth mode and the transmission vanishes if these modes are blocked [17]. Higher order ratios produce fringes with smaller contrast. We found the correct fringes by verifying the 1.5 GHz separation of the beat signals. To validate our mode number counting scheme we have phase locked two laser diodes 26 500 modes apart and checked the resulting frequency difference with an optical frequency comb generator [18]. In the future a somewhat larger mode spacing may allow the identification with a common laser wave meter.

We expected some spurious shifts of the transition lines due to the fact that the readout of the lock-in amplifier with a time constant of ≈0.1 sec is delayed with

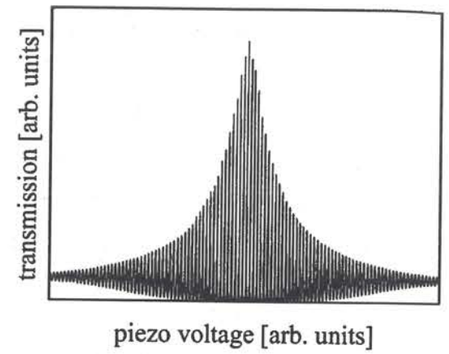


FIG. 3. The transmitted light from a mode locked laser through a cavity of finesse F as a function of the piezo supply voltage that controls the mirror separation. Far detuned the cavity will transmit one out of $\pi/2F \approx 0.005$ modes giving rise to the constant background. At the central peak the ratio of the pulse repetition rate and the free spectral range of the cavity is exactly 1:20.

respect to the optical frequency measurement according to Eq. (2). This shift depends on the speed and the direction of the frequency scan. We have recorded all four hyperfine components several times with six different scanning speeds and fitted a straight line to the obtained center frequencies as shown in Fig. 4. The ground state hyperfine splitting as calculated from our result is 36 kHz for $F_e = 3$ and 27 kHz for $F_e = 4$ too large compared to the definition of the SI second. We attribute this deviation to systematic uncertainties due to imperfections of the magnetic field shielding. Because of different gyromagnetic ratios Zeeman shifts are present depending on the Zeeman level that is mostly depleted by the pump beam. Imperfections of the polarization of the beams and small polarization modulations caused by the chopped pump beam may lead to unsymmetric pumping of the M_F levels. In the worst case the $M_F = 4 \leftrightarrow M_F = 3$ component is probed leading to a Zeeman shift of

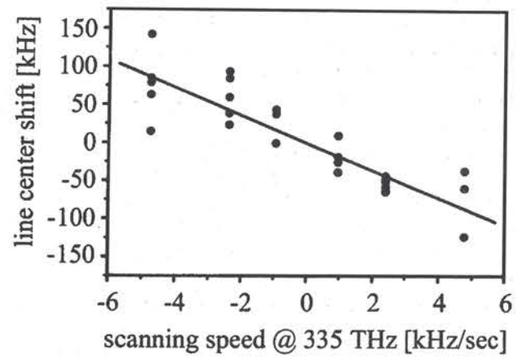


FIG. 4. Observed line center of the $F_g = 4 \rightarrow F_e = 4$ transition as a function of the laser frequency scanning speed.

40 kHz where the sign depends on the nature of the polarization imperfections. We expect smaller shifts for transitions connecting the same total angular momentum than for transitions between $F = 4$ and $F = 3$ because the difference of the gyromagnetic ratios is smaller and mostly unshifted $M_F = 0$ components will be probed. We have corrected for this systematic effect by adding 36 kHz to the $F_g = 4 \rightarrow F_e = 3$ and subtracting 27 kHz from the $F_g = 3 \rightarrow F_e = 4$ transition forcing the ground state hyperfine splitting to the defined value and obtained the following from a total of 112 recorded lines:

$$f_{D1}^{F_g=3\rightarrow F_e=3} = 335\,120\,562\,838 \text{ kHz} \quad (3)$$

$$f_{D1}^{F_g=3\rightarrow F_e=4} = 335\,121\,730\,526 \text{ kHz} \quad (4)$$

$$f_{D1}^{F_g=4\rightarrow F_e=3} = 335\,111\,370\,206 \text{ kHz} \quad (5)$$

$$f_{D1}^{F_g=4\rightarrow F_e=4} = 335\,112\,537\,894 \text{ kHz}. \quad (6)$$

This procedure does not alter our result of the hyperfine centroid but the resulting excited state hyperfine splitting. The systematic uncertainty is estimated by the maximum expected Zeeman shift of 40 kHz for the absolute frequencies and twice that value (systematic uncertainties may add up) for the upper state hyperfine splitting. Other systematic effects such as the ac-Stark effect, light pressure induced line-shape modifications [19], spurious selective reflection signals, and collisional shifts [20] are estimated to be much smaller. The statistical uncertainty is around 10 kHz. Our results for the hyperfine centroid

$$f_{D1} = 335\,116\,048\,807(41) \text{ kHz} \quad (7)$$

and for the upper state hyperfine splitting

$$f_{6P_{1/2}}^{\text{HFS}} = 1\,167\,688(81) \text{ kHz} \quad (8)$$

are in good agreement with previous values obtained by others $f_{D1} = 335\,116\,062(15)$ MHz [1] and $f_{6P_{1/2}}^{\text{HFS}} = 1\,167.54(32)$ MHz [21]. The uncertainties of the frequencies given in Eq. (6) are estimated in the same way to be 41 kHz. With the electron proton mass ratio [4], preliminary measurements of the recoil shift f_{rec} [22], and the cesium atomic mass [5], a new value for the fine structure constant $\alpha^{-1} = 137.035\,992\,4(41)$ is obtained from Eq. (1) and the precisely known Rydberg constant [2]. This value disagrees by 1.8 combined standard deviations from the current most precise value obtained from the electron gyromagnetic ratio [6].

After completion of the reported experiments we have succeeded in phase locking a selected mode of our femtosecond laser to the fourth harmonic of the CH_4-stabilized He-Ne laser while simultaneously controlling the pulse repetition rate with a cesium atomic clock. In this way we are generating a comb of several hundred thousand reference frequencies, each known to a few parts in 10^{13}. The frequency f_n of any longitudinal mode can be tuned as in a cw laser by changing the optical cavity length with a piezomounted mirror. To control the pulse repetition rate f_r and thus the comb spacing independently, we use a second piezotransducer to tilt the cavity end mirror near one of the prisms for compensation of the group velocity dispersion. We thus introduce an additional phase shift proportional to the frequency distance from f_n which displaces the pulse in time and thus changes the effective cavity roundtrip time.

In the near future, we will compare the absolute frequency f of a laser directly with the microwave frequency of a cesium atomic clock by measuring the interval between f and the second harmonic $2f$. Two or three cascaded frequency interval divider stages can reduce this interval sufficiently so that it can be bridged with the frequency comb of a femtosecond laser. In this way, the large and complex laser frequency chains of the past can be replaced with versatile, compact, and reliable solid-state systems for the measurement and synthesis of optical frequencies.

We thank G. Kramer and B. Lipphardt of the PTB in Braunschweig, Germany for their support in the calibration of our He-Ne standard and M. Kourogi of the Tokyo Institute of Technology, Japan, for supplying us with an optical frequency comb generator.

[1] K. H. Weber and C. J. Sansonetti, Phys. Rev. A **35**, 4650 (1987).
[2] Th. Udem *et al.*, Phys. Rev. Lett. **79**, 2646 (1997).
[3] A. Peters *et al.*, Philos. Trans. R. Soc. London A **355**, 2223 (1997).
[4] D. L. Farnham, R. S. Van Dyck, Jr., and B. P. Schwinberg, Phys. Rev. Lett. **75**, 3598 (1995).
[5] M. P. Bradley *et al.*, in *Trapped Charged Particles and Fundamental Physics*, edited by D. H. E. Dubin and D. Schneider, AIP Conf. Proc. No. 457 (AIP, New York, 1999).
[6] T. Kinoshita, Rep. Prog. Phys. **59**, 1459 (1996), and references therein.
[7] S. N. Bagayev, A. K. Dmitriyev, and P. V. Pokasov, Laser Phys. **7**, 989 (1997).
[8] H. Schnatz *et al.*, Phys. Rev. Lett. **76**, 18 (1996).
[9] J. N. Eckstein, A. I. Ferguson, and T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **40**, 847 (1978).
[10] L. Xu *et al.*, Opt. Lett. **21**, 2008 (1996).
[11] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch, Opt. Lett. (to be published).
[12] I. D. Jung *et al.*, Opt. Lett. **22**, 1009 (1997).
[13] A. Baltuška *et al.*, Appl. Phys. B **65**, 175 (1997).
[14] M. Prevedelli, T. Freegarde, and T. W. Hänsch, Appl. Phys. B **60**, S241 (1995).
[15] L. Ricci *et al.*, Opt. Commun. **117**, 541 (1995).
[16] J. Reichert *et al.* (to be published).
[17] A. I. Ferguson and R. A. Taylor, Opt. Commun. **41**, 271 (1982).
[18] M. Kourogi, T. Enami, and M. Ohtsu, IEEE Photonics Technol. Lett. **6**, 214 (1994).
[19] R. Grimm and J. Mlynek, Appl. Phys. B **49**, 179 (1989).
[20] V. Vuletić *et al.*, Opt. Commun. **99**, 185 (1993).
[21] R. J. Refac and C. E. Tanner, Phys. Rev. A **56**, 1027 (1997).
[22] B. C. Young, Ph.D. thesis, Stanford, 1997 (unpublished).

In der nachfolgenden Referenz [30] sind die Ergebnisse der Überprüfung der für die Frequenzmetrologie wichtigen Eigenschaften des Frequenzkamms dargestellt (Kapitel 4). Diese Arbeit war der erste Nachweis der Äquidistanz der Moden (Gl. (3.5) und damit der Verwendbarkeit für optische Frequenzmessungen.

Accurate measurement of large optical frequency differences with a mode-locked laser

Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch

Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Strasse 1, 85748 Garching, Germany

Received February 8, 1999

We have used the comb of optical frequencies emitted by a mode-locked laser as a ruler to measure differences of as much as 20 THz between laser frequencies. This is to our knowledge the largest gap measured with a frequency comb, with high potential for further improvements. To check the accuracy of this approach we show that the modes are distributed uniformly in frequency space within the experimental limit of 3.0 parts in 10^{17}. By comparison with an optical frequency comb generator we have verified that the mode separation equals the pulse repetition rate within the experimental limit of 6.0 parts in 10^{16}. © 1999 Optical Society of America

OCIS codes: 120.3930, 320.5550.

Following the dramatic progress made in recent years in the development of optical frequency standards based on trapped ions[1] or narrow atomic resonances such as the hydrogen $1S-2S$ transition,[2] precise and reliable optical-to-radio-frequency conversion has become the missing clockwork for the construction of a future optical clock. These clocks possess a potential accuracy far beyond the accuracy of the current state-of-the art cesium clocks. In the past, phase-coherent comparisons between optical and radio frequencies were performed with harmonic frequency chains that created successive harmonics from a well-known radio frequency provided, for example, by a cesium atomic clock. Only a few frequency chains that reach all the way to the visible or the UV have been built so far.[2–4]

The use of a mode-locked laser in combination with optical frequency interval dividers[5,6] promises to have the potential to provide an optical clockwork that has the capability to operate reliably for an extended period of time. A phase-locked optical frequency interval divider can reduce an arbitrarily large frequency difference between two input lasers by phase coherently locking a third laser to the precise center of the gap (Fig. 1). If n divider stages are used in cascade, a large optical frequency gap can be reduced by a factor of 2^n until it becomes accessible to radio-frequency counting techniques. Such a chain of divider stages may be used in the future to measure absolute optical frequencies by determining the gap between laser frequencies and their nonlinear conversion products. To measure the laser frequency f this could be the difference between f and its second harmonic $2f$ (which yields $2f - f = f$) or the difference between an auxiliary frequency f_a and the sum frequency $f_a + f$.[5,6] Such a new type of frequency chain allows one to choose a path from the optical region to a beat note in the radio-frequency domain without ever leaving the optical region.[6] The frequencies of the laser oscillators may be chosen such that diode lasers can be used exclusively. However, to reach the radio-frequency domain in this way would require a large number of interval divider stages, unless the largest directly measurable beat frequency is increased. Although the application of optical-frequency comb generators[7] (OFCG's), which are highly efficient electro-optic modulators, for this purpose has been proposed,[8] we show here that mode-locked lasers make it possible to measure even larger frequency gaps.

The spectrum of a mode-locked laser may be thought of as being due to strong amplitude modulation of some carrier frequency. The modulation frequency is the pulse repetition rate $v_g/2L$, which is the inverse round-trip time in a cavity of length L at a group velocity v_g. Therefore we expect a uniform comb of sidebands or laser modes. Because the frequency of each mode is determined by its phase velocity, which is in general different from v_g, the mode frequencies are expected to be offset from being exact harmonics of the pulse repetition rate. Although femtosecond lasers with nearly quantum-noise-limited timing jitter have been demonstrated,[9] the accuracy and stability of the frequency comb of longitudinal laser modes have so far gone largely unexplored. We report on experiments to check the accuracy of the comb of frequencies emitted by a mode-locked Ti:sapphire laser. For

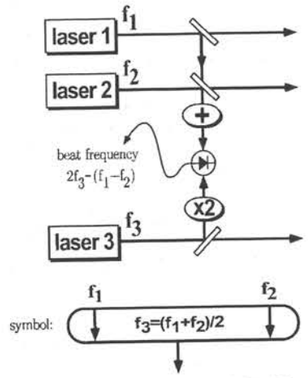


Fig. 1. An optical frequency interval divider receives two input laser frequencies, f_1 and f_2. The frequency of a third laser, f_3, can be determined (or set with a phase-locked loop) accurately relative to the midpoint $(f_1 + f_2)/2$ by detection of the beat frequency between the second harmonic $2f_3$ and the sum frequency $f_1 + f_2$. The symbol is used in Figs. 2 and 3.

0146-9592/99/130881-03$15.00/0

© 1999 Optical Society of America

this purpose we phase lock two laser diodes as much as 20 THz [=2.9 times the spectral width (FWHM)] apart. We employ a commercial laser (Coherent, Inc., Model Mira 900) with a pulse length of 73 fs as derived from an autocorrelation trace. Assuming a sech pulse shape, the time–bandwidth product of this laser is 1.5 times the Fourier limit. The application of mode-locked lasers for the measurement of optical frequency intervals was demonstrated in elementary form more than 20 years ago,[10] and similar ideas of absolute optical frequency measurements have been presented in Ref. 11. This technique was also used for a recent determination of the absolute frequency of the cesium D_1 line[12] as well as for the first phase-coherent UV-to-radio-frequency link.

To check whether the frequency comb emitted by a mode-locked laser can satisfy the exceptional demands of an all new optical clock we performed a series of experiments. All of them make use of an optical frequency interval divider, as illustrated in Fig. 1. Second-harmonic and sum frequencies are generated in $KNbO_3$ crystals.

Our optical interval dividers are based on extended cavity laser diodes[13] that can be phase locked to a mode of the mode-locked laser by stabilizing their radio-frequency beat signals to a precisely known reference frequency,[14] the so-called local oscillator.

A low-noise beat signal between a particular mode and the laser diode is obtained with the help of an optical grating that preselects some of the modes in the vicinity of the laser diode frequency. Even though the signal-to-noise ratio achieved is typically near 30 dB in a bandwidth of 1 MHz, it is possible that single optical cycles are lost by the phase-locked loop. To prevent such cycle-slipping events from entering our data we continuously measure the in-lock beat frequencies with a bandwidth (10-MHz bandpass) that differs from the input bandwidth of the phase-locked loop (40-MHz low pass). If the deviation from the given local oscillator frequency is larger than some threshold we do not include this data point in the evaluation, even though some of the rejected data points are probably not connected with cycle-slipping events.

In the first experiment, as sketched in Fig. 2, we phase locked two laser diodes at 822.8 and 870.9 nm to two modes of the mode-locked laser separated by more than 20 THz. The local oscillator frequencies were 20 MHz, with one laser having a positive and the other a negative frequency offset. If the number of modes between the two diode laser frequencies happens to be an odd number, we expect another mode of the frequency comb precisely at the center between the two laser diodes. A third laser diode is then phase locked at 20 MHz below the center mode of the frequency comb. With the help of an optical interval divider we can verify that the central mode is at the expected position in frequency space, confirming the uniform distribution of the modes in the frequency comb. Because of the frequency conversions used for setting up the divider stage we expect a beat frequency of twice the local oscillator frequency. We measured this frequency with a radio-frequency counter (Hewlett Packard Model 53132A) by using gate times of 1, 10, and 100 s, which yield resolutions of 1 mHz, 0.1 mHz, and 10 μHz, respectively. The radio-frequency counter and the local oscillators were all referenced to the same local cesium clock. In combination with the 1-s gate time, a cycle-slipping threshold of 0.5 Hz seemed to be sufficient; the result did not change significantly when this value was decreased. For the other measurements it was then appropriate to reduce the threshold in proportion to the inverse of the gate time, as a possible cycle slip is averaged over this period. The results are summarized in Table 1. The weighted average of the results obtained with the various gate times is a -0.59 ± 0.48 mHz deviation from the expected 40 MHz. This verifies the uniform distribution of the modes within a relative precision of 3.0×10^{-17}. The statistical uncertainty in the measured average does not follow the expected dependence on the inverse square root of the number of readings and the inverse of the counter gate time. The analysis shows that the scatter of data points consists of a nearly Gaussian distribution, whose width indeed follows the expected dependence, and a few outlying points that increase in number with the gate

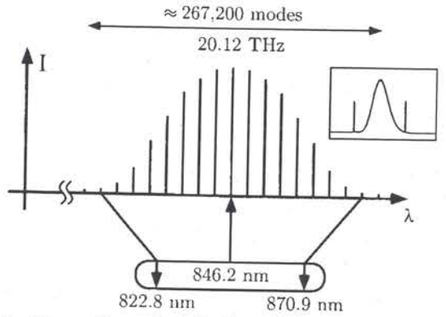


Fig. 2. The uniform distribution of the modes of a mode-locked laser is verified by comparison with an optical frequency interval divider. Inset, measured spectrum of the frequency comb together with the 822.8- and the 870.9-nm laser diodes drawn into it.

Table 1. Results from the Setup of Fig. 2 with Statistical Uncertainties Derived from the Data[a]

Gate Time (s)	Mean Deviation (mHz) from 40 MHz	Relative Deviation	Approved Reading	Cycle-Slip Threshold	Number of Cycle Slips
1	-0.6 ± 2.4	1.2×10^{-16}	8442	0.5 Hz	202
10	-1.93 ± 0.73	9.5×10^{-17}	2936	50 mHz	257
100	0.54 ± 0.67	3.4×10^{-17}	338	5 mHz	179

[a]One additional point has been removed from the 100-s data set that was 825 mHz off but was not detected as a cycle slip.

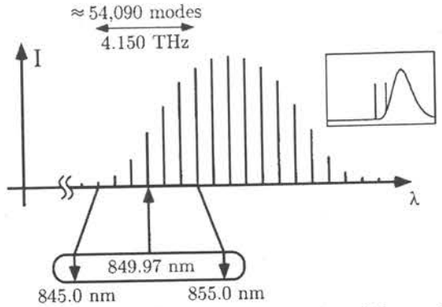


Fig. 3. Verifying the uniform distribution of the modes of a mode-locked laser on one side of its spectrum. Inset, measured spectrum of the frequency comb together with the 845- and 855-nm laser diodes drawn into it.

time. We believe that these points, which lead to the increased statistical uncertainty, are due to cycles that were lost by the counter connected to the divider stage. Unlike the phase-locked beat signals, the beat signal provided by the divider stage was not phase locked but was measured with only one bandwidth (10-MHz bandpass).

The (worst-case) specified systematic uncertainties of the frequency counter are 4 mHz, 0.4 mHz, and 40 μHz for gate times of 1, 10, and 100 s, respectively. Possible drifts of the ambient temperature may cause Doppler shifts by slowly changing the mirror separation by $\sim 20\lambda/\mathrm{K}$ at a distance of 1 m. In our experiment this effect may cause a systematic shift of 6 mHz, provided that the ambient temperature changes by 1 K within a measurement time of 1 h.

In a second experiment we reduced the frequency difference between the laser diodes to 4.15 THz and locked them asymmetrically with respect to the spectrum of the frequency comb, as shown in Fig. 3. The measurement is performed in the same way as with the 20-THz frequency gap but with a gate time of 10 s only. With 1703 remaining frequency readings after rejecting 326 suspected cycle-slipping events we find a frequency deviation from 40 MHz of -0.70 ± 0.61 mHz.

To prove that optical frequency combs emitted by mode-locked lasers are useful tools for the precise determination of large optical frequency differences, it is not sufficient to verify the comb spacing. In addition, one has to show that the mode separation can be measured or stabilized to the precision needed. To verify that the mode separation equals the pulse repetition rate, which can easily be measured or phase locked, we performed an actual frequency-difference measurement. The setup used for this purpose is similar to the one shown in Fig. 3 but with the peak of the spectrum of the mode-locked laser tuned to the center between the 845- and 855-nm laser diodes and the local oscillators set with the same sign. We use 328 modes of an OFCG separated by the modulation frequency $f_{\mathrm{mod}} = 6.321\,4$ GHz to phase lock the centered laser diode precisely $328 \times f_{\mathrm{mod}} - 100$ MHz $= 2.0733192$ THz apart from the 855-nm laser diode (to 849.974 nm). By locking the 845-nm diode laser frequency at 54,205 modes of the mode-locked laser above the 855-nm laser diode (to 845.007 nm), we expect a beat signal of 44.1 MHz at the divider stage if the pulse repetition rate is set to 76.5 MHz with a phase-locked loop. The short-term stability of the mode-locked laser cavity helps to avoid the increase in phase noise that is due to the large frequency-multiplication factor.[15] To reduce the multiplication factor we detected the 100th harmonic of the pulse repetition rate with a fast detector and phase locked it to 7.65 GHz provided by a synthesizer (Hewlett-Packard Model 8360). With a total of 1859 nonrejected readings and 166 suspected cycle slippings at a counter gate time of 10 s we found a frequency deviation from 44.1 MHz of 2.2 ± 2.5 mHz. This confirms that the pulse repetition rate equals the mode separation with an accuracy of at least 6.0×10^{-16}. The fourfold larger statistical uncertainty compared with the result of Table 1 may be due to additional phase fluctuations caused by the OFCG.

Th. Udem's e-mail address is thomas.udem@mpq.mpg.de.

References

1. See, for example, M. Roberts, P. Taylor, G. P. Barwood, P. Gill, H. A. Klein, and W. R. C. Rowley, Phys. Rev. Lett. **78,** 1876 (1997).
2. Th. Udem, A. Huber, B. Gross, J. Reichert, M. Prevedelli, M. Weitz, and T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **79,** 2646 (1997).
3. H. Schnatz, B. Lipphardt, J. Helmcke, F. Riehle, and G. Zinner, Phys. Rev. Lett. **76,** 18 (1996).
4. B. de Beauvoir, F. Nez, L. Julien, B. Cagnac, F. Biraben, D. Touahri, L. Hilico, O. Acef, A. Clairon, and J. J. Zondy, Phys. Rev. Lett. **78,** 440 (1997).
5. D. McIntyre and T. W. Hänsch, in *OSA Annual Meeting* (Optical Society of America, Washington, D.C., 1988), paper THG3.
6. H. R. Telle, D. Meschede, and T. W. Hänsch, Opt. Lett. **15,** 532 (1990).
7. M. Kourogi, B. Widiyatomoko, Y. Takeuchi, and M. Ohtsu, IEEE J. Quantum Electron. **31,** 2120 (1995).
8. N. Nakagawa, M. Kourogi, and M. Ohtsu, Appl. Phys. B **57,** 425 (1993).
9. G. Sucha, M. E. Fermann, D. J. Harter, in *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)*, Vol. 6 of 1998 OSA Technical Digest Series, (Optical Society of America, Washington, D.C., (1998), p. 188.
10. J. N. Eckstein, A. I. Ferguson, and T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **40,** 847 (1978).
11. V. P. Chebotayev and V. A. Ulybin, Appl. Phys. B **50,** 1 (1990).
12. Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **82,** 3568 (1999).
13. L. Ricci, M. Weidenmüller, T. Esslinger, A. Hemmerich, C. Zimmermann, V. Vuletic, W. König, and T. W. Hänsch, Opt. Commun. **117,** 541 (1995).
14. M. Prevedelli, T. Freegarde, and T. W. Hänsch, Appl. Phys. B **60,** S241 (1995).
15. In connection with his research on OFCG's, M. Kourogi (Tokyo Institute of Technology, 4259 Nagatsuta, Midori-Ku, Yokohama, Kanagawa, Japan) observed this noise reduction before (private communication, 1997).

Die nachfolgende Referenz [21] ist die erste Beschreibung des "self-referencing" des Frequenzkamms zusammen mit den nötigen technischen Details. Der Inhalt dieser Veröffentlichung wurde bereits einige Monate vor dem Einreichdatum von Ref.[21] beim *Joint Meeting of the European Frequency and Time Forum and the IEEE International Frequency Control Symposium* in Besançon, Frankreich präsentiert [20].

ELSEVIER

15 December 1999

Optics Communications 172 (1999) 59–68

OPTICS COMMUNICATIONS

www.elsevier.com/locate/optcom

Measuring the frequency of light with mode-locked lasers [1]

J. Reichert *, R. Holzwarth, Th. Udem, T.W. Hänsch

Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Str.1, 85748 Garching, Germany

Received 1 July 1999; received in revised form 20 August 1999; accepted 1 September 1999

Abstract

We have stabilized the modes of a comb of optical frequencies emitted by a mode-locked femtosecond-laser and used it as a ruler to measure differences of up to 45.2 THz between laser frequencies in a new type of frequency chain. Directly converting optical to radio frequencies, we have used it for an absolute frequency measurement of the 1S–2S transition in the hydrogen atom. Here, an intuitive model of the comb's properties is given and essential techniques for its stabilization and efficient detection of beat signals are presented. © 1999 Elsevier Science B.V. All rights reserved.

Keywords: Frequency comb; Femtosecond laser; Frequency chain; Optical frequency measurement

In recent years, we have witnessed dramatic progress in the development of optical frequency standards based on trapped ions [1] and narrow spectral lines of neutral atoms such as the hydrogen 1S–2S transition [2]. Having the potential to reach accuracies far beyond the current state of the art cesium atomic clocks [3], the missing part of future atomic clocks still remains a precise, reliable 'clockwork', converting frequencies in the optical range of several hundred Terahertz to radio frequencies. In the past, phase coherent comparisons between optical and radio frequencies have been performed with the few harmonic frequency chains that reach all the way up to the visible or the UV region [2,4,5]. A promising approach for a new type of frequency chain is the determination of an optical frequency f by measuring a frequency interval in the optical region. For example, the interval $\Delta f = 2f - f = f$ between f and its second harmonic $2f$ could be measured. Optical frequency interval dividers [6,7] that allow the phase coherent bisection of arbitrarily large frequency differences can reduce that interval. These dividers generate the sum frequency of the two input laser frequencies in a nonlinear crystal and phase-lock the second harmonic of a third laser to it. This forces the fundamental frequency of the third laser to oscillate at the precise center of the interval. If n such dividers are cascaded the initial frequency gap is reduced by a factor 2^n. The simplicity and reliability of such a new frequency chain depends critically on the capability to directly measure large optical frequency differences, avoiding the need for a large number of frequency interval dividers.

While we have demonstrated a 5 stage frequency interval divider chain about two years ago [2], in recent experiments we have used the comb of modes emitted by a mode-locked femtosecond-laser to

* Corresponding author. E-mail: reichert@mpq.mpg.de

[1] We dedicate this article to Marlan O. Scully on occasion of his 60th birthday.

0030-4018/99/$ - see front matter © 1999 Elsevier Science B.V. All rights reserved.
PII: S0030-4018(99)00491-5

bridge large frequency intervals in the optical region. Although the application of mode-locked picosecond lasers for the measurement of frequency intervals of about 1 GHz had been demonstrated in elementary form already 20 years ago [8], not much work had been done on that subject since then. Using pulses of about 70 fs length, we have recently bridged frequency differences of up to 20 THz in a phase coherent measurement of the absolute frequency of the Cs D_1 line [9] and in experiments to verify the mode spacing constancy [10]. After further spectral broadening of the comb by self phase modulation in an optical fiber [11], we could even bridge an interval of 45.2 THz. With this system we were able to directly compare the optical frequency of the 1S–2S two photon resonance in atomic hydrogen ($\lambda = 243$ nm) with the radio frequency of our local cesium atomic clock [12], demonstrating a prototype of a new type of frequency chain. As the spectral width of the frequency comb scales with the inverse of the pulse length, even larger frequency gaps may be measured with shorter pulses. To be able to make use of femtosecond-lasers as a tool for high precision metrology, we apply new techniques to stabilize the mode comb, to efficiently detect beat signals with continuous wave (CW) lasers and to count the number of modes in a frequency interval. In this article, these techniques are presented on the basis of an intuitive model of the properties of the frequency comb and we discuss applications of mode-locked femtosecond-lasers for absolute frequency measurements.

Kerr-lens mode-locked lasers are able to generate pulse trains with pulse-lengths as short as 5.4 fs [13]. The resonator of these lasers is designed in a way that it experiences lower losses if a Kerr-lens is created by the high peak intensity of a short pulse [14]. The group velocity dispersion $\partial^2 k/\partial\omega^2$ in the cavity, that would lead to a rapid pulse broadening, is compensated with so called chirped mirrors [15] or a pair of prisms [16]. If started appropriately, a short stationary pulse with high peak intensity will continuously circulate in the cavity. In the frequency domain, Kerr-lens mode-locking can be viewed as an intensity dependent mechanism that locks the relative phases of a large number of active longitudinal laser modes in such a way that their superposition builds up this circulating pulse. The strong amplitude modulation can be thought of as imposing sidebands on the active laser modes that injection lock their neighboring modes. To make this work the mode separation has to be sufficiently constant over the entire optical bandwidth participating in the mode-locking process. In a passive resonator of length L the mode separation is determined by demanding that $2Lk(\omega)$ is a multiple of 2π. Dispersion is accounted for by the frequency dependence of the wave vector $k(\omega)$ which can be expanded about some center frequency ω_0:

$$k(\omega) = k(\omega_0) + \left.\frac{\partial k}{\partial \omega}\right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\left.\frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2}\right|_{\omega_0} \times (\omega - \omega_0)^2 + \ldots . \quad (1)$$

To obtain a constant mode separation all but the first two terms in this series have to vanish. As already pointed out with a time domain argument the third term, which is proportional to the group velocity dispersion, is compensated in a Kerr-lens mode-locked laser. The remaining higher order deviations from a constant mode spacing are removed by mode pulling of the active laser modes, i.e. injection locking of adjacent laser modes. The mode separation is calculated from the second term and can be expressed with the group velocity $v_g = \partial\omega_0/\partial k$ to be $v_g/2L$ which is the inverse round trip time of the circulating pulse. The mode spacing of passive resonators is usually given as the free spectral range (FSR) calculated from the phase velocity $\mathrm{FSR} = c/n2L$, where n is the refractive index. In this expression, dispersion is neglected completely. Therefore it is not suitable for accurate metrological applications. However, the corresponding expression for mode-locked lasers, the pulse repetition rate $f_r = v_g/2L$, is easily measured with radio frequency accuracy. As it is the modulation frequency which governs the mode locking process and precisely fixes the mode separation, it will be used in the further discussion as the appropriate expression to describe the mode spacing.

The electric field at the output coupler of the mode-locked laser can be expressed as $E(t) = A(t)e^{-2\pi i f_c t} + \text{c.c.}$, with a (possibly complex) peri-

odic envelope-function $A(t)$, amplitude- and phase-modulating an underlying light field function oscillating with some optical carrier frequency f_c. If the envelope function $A(t)$ is strictly periodic, it can be expressed as a Fourier series in f_r: $A(t) = \sum_q A_q e^{-2\pi i q f_r t}$. The electric field is then

$$E(t) = \sum_{q=-\infty}^{+\infty} A_q e^{-2\pi i (f_c + q f_r) t} + \text{c.c.} \qquad (2)$$

The spectrum of Eq. (2) represents a comb of laser frequencies precisely spaced by the pulse repetition rate f_r, where the coefficients A_q, that contain the spectral intensity and the relative phases of the modes, do not depend on time. For example, a pulse train made up of a purely amplitude-modulated optical carrier frequency f_c would correspond to a symmetrical comb of modes, centered around f_c (see Fig. 1). The uniform spacing of the modes by precisely f_r is a result of the periodicity of the pulse envelope function. We have verified this property within the limits of our experiment with an uncertainty of a few mHz for a 20 THz frequency interval [10].

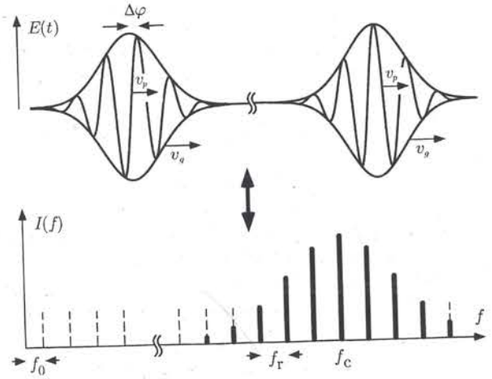


Fig. 1. Two consecutive pulses of the pulse train emitted by a mode-locked laser and intensity spectrum of the train. Within the cavity, the envelope is traveling with the group velocity v_g which, in general, differs from the phase velocity of the carrier v_p. The carrier phase relative to the envelope changes from pulse to pulse by $\Delta\varphi$. The modes are offset from being integer multiples of the pulse repetition rate f_r by $f_0 = (\Delta\varphi/2\pi) f_r$.

In general, the carrier frequency f_c and therefore the frequency of each mode f_n is *not* an integer multiple of the pulse repetition rate. The reason for this is obvious, if an ideal pulse train consisting of a pure amplitude modulated carrier frequency is assumed: The envelope of the circulating pulse travels with the group velocity, while the carrier phase advances with its phase velocity. Thus, the carrier phase will be shifted after each round trip with respect to the pulse envelope by say $\Delta\varphi$ (see Fig. 1). This phase shift can be calculated from the difference of the group velocity of the pulse and the phase velocity of the carrier and can be chosen to obey $0 \le \Delta\varphi \le 2\pi$. Clearly, the electric field emitted by the laser is in general not periodic with the pulse repetition time $T = f_r^{-1}$ so that it can not be expressed by a Fourier series in f_r. The comb of laser frequencies is therefore shifted by an offset frequency f_0 from the integer multiples of f_r. This shift is given by

$$f_0 = (\Delta\varphi/2\pi) T^{-1} = (\Delta\varphi/2\pi) f_r. \qquad (3)$$

Since $0 \le \Delta\varphi \le 2\pi$, the offset frequency f_0 is smaller than f_r and by comparison with Eq. (2) the frequency of the nth cavity mode is given by

$$f_n = n f_r + f_0 = (n + \Delta\varphi/2\pi) f_r. \qquad (4)$$

where we set $f_c = n_c f_r + f_0$ with some large number n_c.

In a real laser the carrier frequency is usually not constant across the pulse. This so called frequency chirp can be described by a complex envelope function $A(t) = |A(t)| e^{-i\alpha(t)}$ in Eq. (2). The phase variation across the pulse $\alpha(t)$ is the same from pulse to pulse i.e. $\alpha(t) = \alpha(t - T)$, as confirmed by our experiment proving the mode spacing constancy [10]. Independent of the particular shape of $\alpha(t)$ the pulse is collecting a phase factor $e^{-2\pi i f_c T}$ during the round trip time T, which equals $e^{-2\pi i (n_c + f_0 T)} = e^{-i\Delta\varphi}$. The relation $f_0 = (\Delta\varphi/2\pi) f_r$ still holds even though $\Delta\varphi$ does not have the clear interpretation sketched in Fig. 1. The mode spacing constancy is thus maintained even for a chirped pulse and Eq. (4) remains valid. In our recent experiments we were able to control both f_r and f_0 independently, which supports the intuitive picture presented here.

The spectral width of the frequency comb can be broadened while maintaining the mode spacing by self phase modulation in a nonlinear optical material. Additional modes outside the original spectrum are created from the existing modes by this four wave mixing process: The frequency of one mode is subtracted from the sum frequency of two other modes. This $\chi^{(3)}$-process is most efficient if all possible combinations of original modes, that lead to a specific new mode, add up coherently. This is the case if the phases of the original modes are adjusted to give the shortest pulse, i.e. the highest peak power. The strong focusing of the pulses over an extended length in a single mode optical fiber has been used for this purpose [11]. Due to group velocity dispersion and self phase modulation the pulse is broadened and the peak intensity is reduced as it travels along the fiber so that the effective broadening comes to an end. The useful fiber length is limited to a value proportional to the initial pulse length squared. If the initial pulse has a negative chirp and the fiber a positive group velocity dispersion the pulse will reach its shortest duration in the fiber enhancing the process of self phase modulation. The group velocity dispersion of the fiber imposes a large frequency chirp on the pulses. As long as this chirp stays the same from pulse to pulse the mode spacing remains constant. To circumvent systematic uncertainties caused by slow drifts of the ambient fiber temperature the beat signals for phase-locking, as described below, are measured after the fiber passage. Fig. 2 shows the observed broadening of the spectrum of pulses obtained from a commercial Ti:Sapphire Kerr-lens mode-locked laser (Coherent model Mira 900 pumped by a 5 W frequency-doubled single-frequency Nd:YVO_4 laser, Coherent model Verdi). This set-up was used for an absolute frequency measurement of the hydrogen 1S–2S transition [12].

Like f_r, the frequency offset f_0 lies in the radio frequency domain. Eq. (4) would therefore allow a direct determination of the optical frequency f_n. While the pulse repetition rate is easily measured the frequency offset could be measured in principle by cross correlation of subsequent pulses [17], but not with radio frequency accuracy. As shown in Fig. 1 the peak electric field should depend on the relative phase φ of the carrier to the envelope if the pulses are sufficiently short. Highly nonlinear processes like high harmonic generation [18] and above threshold ionization [19] could then be sensitive to φ and should therefore be modulated with $2f_0$. This would allow a radio frequency measurement of f_0. Assuming a pulse shape in the time domain [2] of $E(t) = E_0 e^{-t^2/2\tau^2} \cos(2\pi f_c t + \varphi)$, like in Fig. 1, the detec-

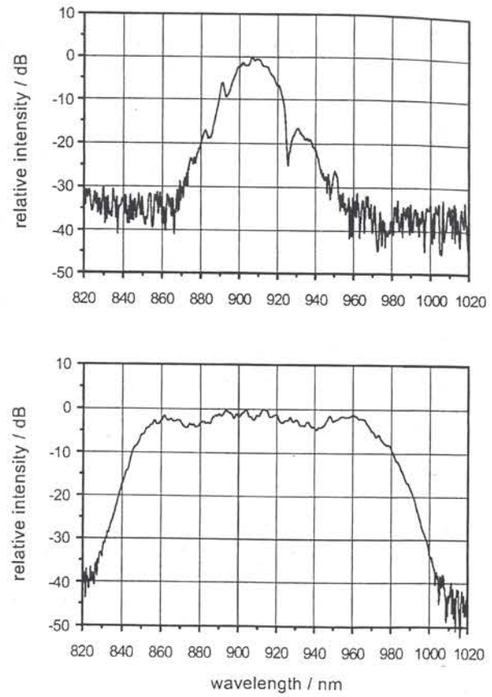


Fig. 2. Observed spectral broadening of 73 fs pulses ($f_r = 76$ MHz, 1.5 times the Fourier limited time-bandwidth product) after passage through a 40 cm long single mode optical fiber (Newport FS-F). Top: 8 mW average power from a Ti:Sapphire Kerr-lens mode-locked laser is coupled through the fiber. Bottom: The same with 225 mW average power. With our current set-up it is possible to phase-lock a laser diode to the modes that are more than 10 dB less intense than the peak of the spectrum.

[2] The intensity pulse width (FWHM) is given $2\tau\sqrt{\ln(2)} = 1.67\tau$.

tion after a process that depends on the Nth power of the electric field will yield a signal proportional to

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(\frac{-Nt^2}{2\tau^2}\right)\cos^N(2\pi f_c t+\varphi)\,\mathrm{d}t$$
$$= \frac{1}{2^N}\int_{-\infty}^{+\infty}\exp\left(\frac{-Nt^2}{2\tau^2}\right)\sum_{j=0}^{N}\binom{N}{j}$$
$$\times\cos([N-2j](2\pi f_c t+\varphi))\,\mathrm{d}t$$
$$= \frac{1}{2^N}\sum_{j=0}^{N}\binom{N}{j}\sqrt{\frac{2\pi}{N}}\,\tau$$
$$\times\exp\left(-\frac{[N-2j]^2}{2N}(2\pi f_c\tau)^2\right)$$
$$\times\cos([N-2j]\varphi)\,. \qquad (5)$$

If N is an even number, which is usually the case if the intensity of the nonlinear yield is measured (e.g. $N=4$ for the second harmonic), then the largest contribution ($N-2j=\pm 2$) to the signal is proportional to

$$1+\frac{2N}{N+2}\,\mathrm{e}^{-2(2\pi f_c\tau)^2/N}\cos(2\varphi)\,. \qquad (6)$$

The second term, which is modulated with $2f_0$, is exceedingly small compared to 1 unless a very short pulse length and/or a high harmonic of the electric field is used. For constant pulse-to-pulse energy the result should be divided by this energy term ($N=2$), but the relative correction to the second term in Eq. (6) is small. The creation of high harmonics of femtosecond-pulses usually demands high pulse powers. These can be created with the help of regenerative amplifiers which, however, reduce the repetition rate down to a few 100 kHz or less. A low repetition rate, i.e. a dense frequency comb, is difficult to use for frequency metrology, as the number of unwanted beat notes is drastically increased. Additionally, assuming unchanged average output power, the available power per mode is reduced with the repetition rate.

Another way to measure the offset frequency becomes possible if the frequency comb contains at the blue side the second harmonic of modes from the red side. In this case two modes with frequencies $f=n_1 f_r+f_0$ and $n_2 f_r+f_0$ with $n_2=2n_1$ should oscillate at the same time. By phase-locking a laser diode to f which is then frequency doubled the beat note $2f-(n_2 f_r+f_0)=f_0$ can be observed. A white light continuum covering the visible range could for example serve this purpose if it can be created with a sufficiently high repetition rate. If the width of the frequency comb is not wide enough a number of optical frequency interval dividers [2] may be employed reducing the necessary span by a factor of two for each installed divider.

This method of measuring an absolute optical frequency f as an interval between f and its second harmonic $2f$ can be viewed as a special case of the general principle. Other combinations of nonlinear processes can be used to convert an absolute optical frequency into a frequency gap whose measurement with mode-locked lasers relies solely on the mode spacing constancy. A prototype of such a new type

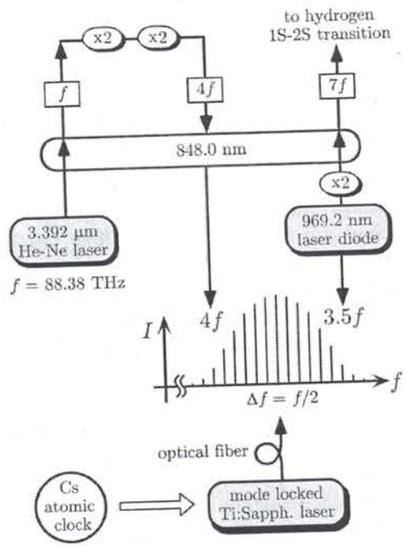


Fig. 3. Example for a new type of frequency chain (simplified scheme) as used in our recent experiment to determine the hydrogen 1S–2S transition frequency at 121 nm ($4\times 7f$). The optical frequency interval divider (big oval symbol) fixes the ratio of its frequencies to f:$4f$:$7f$. Measuring the frequency of a stabilized He–Ne laser as an interval of $f/2$ at 900 nm determines all other frequencies in this system setup.

of frequency chain, that has already been demonstrated in our laboratory in an experiment to measure the 1S–2S transition frequency in atomic hydrogen [12], is shown in Fig. 3.

To measure large frequency differences with high accuracy, the beat signal of a mode of the comb with a CW laser must be detected in presence of a large number of other modes that only contribute to noise. A low noise beat signal can be achieved by mode preselection with the help of a grating as shown in Fig. 4. In this case the noise due to the unused modes is reduced by preventing them from reaching the detector. The shot-noise limited signal to noise ratio of the beat signal with the nth mode on a detector with a quantum efficiency η and a detection bandwidth B_w is calculated from [20]

$$S/N=\frac{\eta}{h\nu B_w}\,\frac{tP_n(1-t)P_{\mathrm{LD}}}{t\sum_k P_k+(1-t)P_{\mathrm{LD}}}\,, \qquad (7)$$

where P_{LD} and P_n are the power of the laser diode and the nth mode respectively and $h\nu$ is the energy of a single photon. The transmission of the adjustable beam splitter used to match the beams is given by t. The summation Σ_k extends over all the modes that reach the detector, this might be approximated by NP_n if the resolution Nf_r of the grating in combination with the detector aperture is such that the power is approximately constant within the sum:

$$S/N\approx\frac{\eta}{h\nu B_w}\,\frac{tP_n(1-t)P_{\mathrm{LD}}}{NtP_n+(1-t)P_{\mathrm{LD}}}\,. \qquad (8)$$

If we assume that t is always adjusted to give the optimum signal to noise ratio $t_{\mathrm{opt}}=\sqrt{P_{\mathrm{LD}}}/(\sqrt{NP_n}+\sqrt{P_{\mathrm{LD}}})$ we find that for $N\ll P_{\mathrm{LD}}/P_n$ the detection is limited only by the shot noise of the weak signal P_n:

$$(S/N)_{\mathrm{opt}}=\frac{\eta P_n}{h\nu B_w}\,. \qquad (9)$$

As a rule, the grating must therefore remove enough modes so that the total power of the remaining modes is much smaller than the power of the laser diode. In the wings of the frequency comb a rather poor resolution is usually sufficient to achieve a signal to noise ratio limited by the shot noise of the weak signal P_n.

To create the beat notes necessary for the determination of the Cs D_1 line and the hydrogen 1S–2S

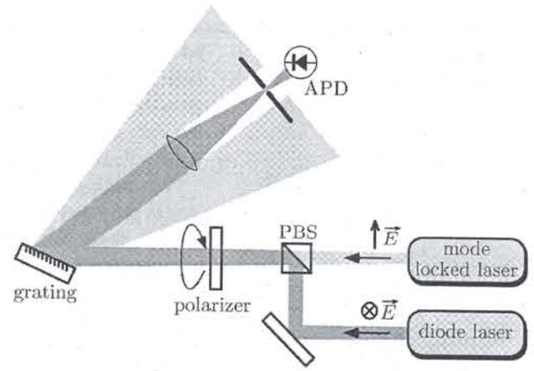


Fig. 4. Detection of a low noise beat signal with the mode-locked laser on a Si avalanche photo diode (APD). The relative intensity of the matched beams is adjusted by rotating the polarizer that is placed after the polarizing beam splitter (PBS). To avoid possible beam pointing changes and to provide the polarization for the optimal refraction efficiency of the grating the rotatable beam splitter may be replaced by a fixed beam splitter and a half wave plate. In most cases, the width of the aperture shown is not critical and could be the area of the photo diode itself.

frequency we used a 15×10 mm^2 grating with 1800 lines/mm and a $f = 15$ mm lens at a distance of 50 cm from the grating. The aperture of the lens (diameter of 5 mm) was sufficient for selecting one of the modes in vicinity of the laser diode frequency and reliably phase-locking the diode to it [21].

To use the mode-locked laser as a ruler to measure large optical frequency differences, the mode spacing, i.e. the pulse repetition rate of the laser, must either be measured very accurately or set to a predefined value by phase-locking it to a radio frequency reference. In principle, this can be done by controlling the laser cavity length with a piezo driven mirror. However, for most applications, it is desirable to phase-lock the pulse repetition rate *and* the beat note of one of the modes with another laser simultaneously. For this purpose it is necessary to control the phase velocity of that particular mode and the group velocity of the pulse independently. A piezo driven folding mirror changes both the pulse round trip time and the mode wavelength. Changing the cavity length in this way, no extra dispersion is added leaving the pulse to pulse phase shift $\Delta\varphi$ constant. According to Eq. (4), the optical frequencies are shifted by $\Delta f_n/f_n = \Delta f_\tau/f_\tau = -\Delta L/L$.

A mode-locked laser that uses two intra cavity prisms to compensate the intra cavity group velocity dispersion provides us with an elegant means to independently control the pulse repetition rate. As shown in Fig. 5, we use a second piezo-transducer to tilt the cavity end mirror near one of the prisms. The reflection thus introduces an additional phase delay proportional to the frequency distance $f - f_n$ for all frequency components f of the pulse. This displaces the pulse in time and changes the effective cavity round trip time. The frequency f_n corresponds to the cavity mode that coincides with the tilting axis on the surface of the cavity end mirror. A similar scheme has been used before in a rapid scanning optical delay line [22].

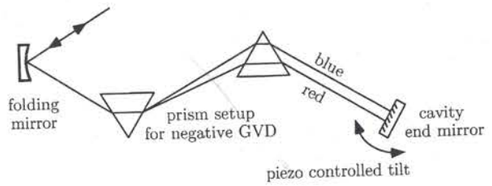


Fig. 5. The usual prism set-up at one of the end mirrors used to compensate the group velocity dispersion can be used to change the group delay time per round trip. This is done by introducing an additional round trip phase delay that is a linear function of the optical frequency.

Arguing in the frequency domain, the insertion of an additional length proportional to $f_m - f_n$ for each laser mode f_m simply changes the mode separation. Ideally the absolute frequency f_n is the one that is phase-locked with the folding mirror. In this case the tilt angle will change every frequency in the comb except f_n so that the control of the f_τ decouples from the control of f_n. However, the phase-lock of f_n with the folding mirror is not decoupled from the control of the pulse repetition rate. Using this method [3] with our commercial femtosecond system we found that it operates well if the bandwidth that controls the cavity length is as high as possible (typically 10 kHz) while the bandwidth that controls the cavity end mirror tilt (f_τ) is low in order to exploit the short term stability provided by the laser cavity. The position of the tilt axis was not critical and was situated even beyond the mirror. The misalignment of the cavity due to the necessary tilting of the end mirror was negligible. To reduce the necessary servo bandwidth for phase-locking one of the modes to a laser diode with a piezo transducer controlling the cavity length, we used a prescaler that divides the phase-locked beat frequency by 128. In addition we used a large range ($\pm 32\pi$) digital phase detector [21]. In principle, a fast phase-lock by an intra-cavity electro-optic modulator seems to be feasible as well, if the dispersion compensation in the resonator is designed appropriately.

When phase-locking the pulse repetition rate to a signal provided by a synthesizer one faces the problem of phase noise multiplication. It is well known that the integrated phase noise intensity grows as N^2 when a radio frequency is multiplied by a factor of N [23]. By the detection and phase locking process of the pulse repetition rate additional phase noise is

[3] Patent pending.

introduced. We reduced this noise contribution by a factor of 100^2 since we did not phase-lock the fundamental pulse repetition rate but its 100th harmonic. Further, we used a low servo bandwidth to exploit the intrinsic stability of the laser resonator. The small servo bandwidth and the intrinsic stability of the laser resonator that is filtering the modes helps to prevent the high frequency noise components from propagating through the frequency comb [24]. In fact, using an externally referenced low noise DRO (dielectric resonator oscillator, CTI Communication Techniques model XPDRO-6313) instead of a synthesizer (Hewlett–Packard model 8360) for this purpose did not improve the performance in any noticeable way. Unlike the synthesizer the DRO showed a small but significant frequency drift attributed to drifts or instabilities of the DRO's internal phase locked loops to the reference. The observed frequency drift relative to its reference frequency was as high as several 100 mHz per second at the measured frequency interval of 4 THz.

To unambiguously measure large optical frequency differences with a mode-locked laser, it is necessary to determine the number of modes between the two CW laser frequencies that form the interval. If the pulse repetition rate is sufficiently high a wavemeter could identify the modes, provided it has a resolution better than f_τ. However, this is not the case with a commonly used commercial wavemeter (e.g. Burleigh WA-20 Series model) in connection with a pulse repetition rate around 75 MHz commonly employed in commercial femtosecond systems. The observation of a frequency shift $n \times \delta f_\tau$ of one of the modes after changing f_τ by δf_τ may be difficult because it demands a resolution of δf_τ to distinguish between the mode number n and $n \pm 1$. The shift $n \times \delta f_\tau$ could not be chosen too large if one has to track it with a phase-locked diode laser. This scheme becomes particularly difficult when using large mode numbers which is of course the main interest.

When applied to a determination of some optical reference frequency the mode number may be unambiguous if a previous measurement with sufficient accuracy exists. If this is not possible another solution of the problem is to use an external cavity that is adjusted to have a free spectral range of some multiple N of f_τ. This cavity then, when operated on resonance, would transmit only every Nth mode of the frequency comb and is therefore increasing the mode spacing by a factor of N. In the time domain, one could argue that the pulse is bouncing N times in the cavity until the next pulse arrives. The pulse repetition rate is thereby multiplied by N. To make

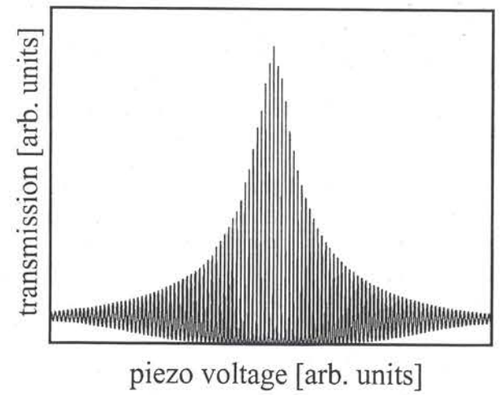


Fig. 6. The transmitted light from a mode-locked laser through a cavity of finesse F as a function of the piezo supply voltage that controls the mirror separation. Far detuned the cavity will transmit one out of $\pi/2F \approx 0.005$ modes giving rise to the constant background. At the central peak the ratio of the pulse repetition rate and the free spectral range of the cavity is exactly 1:20.

sure that the free spectral range of the cavity is indeed N times the pulse repetition rate the transmission through the cavity is observed. If the fraction of the free spectral range and the pulse repetition rate is some arbitrary number, the cavity will transmit on average one out of $2F/\pi$ modes from the frequency comb where F is the finesse of the external cavity. Taking into account the large number of modes in the frequency comb the transmission is not changed if the cavity length is scanned with a piezo mounted mirror. If however the fraction of the free spectral range and the pulse repetition rate is a small integer, resonant fringes appear as shown in Fig. 6. The transmitted intensity has a peak if the piezo controlled mirror spacing allows the transmission of every Nth mode and it vanishes if these modes are blocked [9,25]. Higher order ratios produce fringes with smaller contrast. Although all peaks shown in Fig. 6 correspond to a transmission of every 20th laser mode for a certain spectral range, the matching of the cavity resonance spacing to the comb of laser modes is fulfilled best for the central peak. In this case, dispersion in the external cavity limits the spectral width of the transmission. The cavity used by us allowed the simultaneous transmission of modes 18 THz apart as necessary in our experiment. Applying this mode number counting method to much larger intervals would demand a cavity with flat dispersion over a larger spectral range. To validate this scheme we have used 26,500 modes of our mode-locked laser and checked the resulting frequency difference [10] by comparison with a frequency comb produced by a fast electro optic modulator [26].

If two frequency combs are available at the same time the mode number can be determined most conveniently by operating them at slightly different repetition frequencies say f_{r1} and f_{r2}. If the difference is say 1 Hz then the beat frequency $nf_{r1} - nf_{r2}$ yields immediately the mode number.

In conclusion, we have provided and applied the techniques necessary to operate a mode-locked femtosecond laser as a ruler to measure large optical frequency differences. Full frequency stabilization of the comb of modes has been achieved, while the mode spacing constancy had been confirmed on a level of 3 parts in 10^{17} for a 20 THz interval before. This new approach to measuring optical frequencies can be understood in an intuitive picture. The reported techniques have made it possible to construct a new type of frequency chain which has been applied for an absolute frequency measurement of the 1S–2S transition in hydrogen. The next step is the implementation of these ideas with all solid state and diode lasers that will allow a continuous operation of such a chain as a reliable optical clockwork.

References

[1] See for example: M. Roberts, P. Taylor, G.P. Barwood, P. Gill, H.A. Klein, W.R.C. Rowley, Phys. Rev. Lett. 78 (1997) 1876.
[2] Th. Udem, A. Huber, B. Gross, J. Reichert, M. Prevedelli, M. Weitz, T.W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 79 (1997) 2646.
[3] G. Santarelli, Ph. Laurent, P. Lemonde, A. Clairon, A.G. Mann, S. Chang, A.N. Luiten, C. Salomon, Phys. Rev. Lett. 82 (1999) 4619.
[4] H. Schnatz, B. Lipphardt, J. Helmcke, F. Riehle, G. Zinner, Phys. Rev. Lett. 76 (1996) 18.
[5] B. de Beauvoir, F. Nez, L. Julien, B. Cagnac, F. Biraben, D. Touahri, L. Hilico, O. Acef, A. Clairon, J.J. Zondy, Phys. Rev. Lett. 78 (1997) 440.
[6] T.W. Hänsch, in: G.F. Bassani, M. Inguscio, T.W. Hänsch (Eds.), The Hydrogen Atom, Springer, Berlin, 1989.
[7] H.R. Telle, D. Meschede, T.W. Hänsch, Opt. Lett. 15 (1990) 532.
[8] J.N. Eckstein, A.I. Ferguson, T.W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 40 (1978) 847.
[9] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, T.W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 82 (1999) 3568.
[10] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, T.W. Hänsch, Opt. Lett. 24 (1999) 881.
[11] G.P. Agrawal, Nonlinear Fiber Optics, Academic Press, New York 1989.
[12] J. Reichert, M. Niering, R. Holzwarth, M. Weitz, Th. Udem, T.W. Hänsch, to be published.
[13] U. Morgner, F.X. Kärtner, S.H. Cho, Y. Chen, H.A. Haus, J.G. Fujimoto, E.P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, T. Tschudi, Opt. Lett. 24 (1999) 411.
[14] See for example: C. Rullière, Femtosecond Laser Pulses, Springer, Berlin, 1998.
[15] R. Szipöcs, K. Ferencz, Ch. Spielmann, F. Krausz, Opt. Lett. 19 (1994) 201.
[16] R.L. Fork, O.E. Martinez, J.P. Gordon, Opt. Lett. 9 (1984) 150.
[17] L. Xu, Ch. Spielmann, A. Poppe, T. Brabec, F. Krausz, T.W. Hänsch, Opt. Lett. 21 (1996) 2008.
[18] A. L'Huillier, Ph. Balcou, Phys. Rev. Lett. 70 (1993) 774.
[19] G.G. Paulus, W. Nicklich, F. Zacher, P. Lambropoulos, H. Walther, J. Phys. B 29 (1996) L249.
[20] R.H. Kingston, Detection of Optical and Infrared Radiation, Springer, Berlin, 1978.

[21] M. Prevedelli, T. Freegarde, T.W. Hänsch, Appl. Phys. B 60 (1995) S241.
[22] K.F. Kwong, D. Yankelevich, K.C. Chu, J.P. Heritage, A. Dienes, Opt. Lett. 18 (1993) 558.
[23] F.L. Walls, A. De Marchi, IEEE Trans. Instrum. Meas. 24 (1975) 210.
[24] In connection with his work on electro-optic comb generators M. Kourogi observed this noise reduction before (private communication).
[25] A.I. Ferguson, R.A. Taylor, Opt. Commun. 41 (1982) 271.
[26] M. Kourogi, B. Widiyatomoko, Y. Takeuchi, M. Ohtsu, IEEE J. Quantum Electron. 31 (1995) 2120.

Die nachfolgende Referenz [1] enthält die Beschreibung der bislang höchsten gemessenen Frequenz, der 1s-2s Übergangsfrequenz in atomarem Wasserstoff. Diese wurde durch einen phasenkohärenten Vergleich mit einer Cäsiumfontänenuhr, mit einer relative Unsicherheit von 2×10^{-14}, bestimmt.

VOLUME 84, NUMBER 24 PHYSICAL REVIEW LETTERS 12 JUNE 2000

Measurement of the Hydrogen 1*S*-2*S* Transition Frequency by Phase Coherent Comparison with a Microwave Cesium Fountain Clock

M. Niering, R. Holzwarth, J. Reichert, P. Pokasov,* Th. Udem, M. Weitz, and T. W. Hänsch
Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Strasse 1, 85748 Garching, Germany

P. Lemonde,[1] G. Santarelli,[1] M. Abgrall,[1] P. Laurent,[1] C. Salomon,[2] and A. Clairon[1]
[1]*BNM-LPTF, Observatoire de Paris, 61 Avenue de l'Observatoire, 75014 Paris, France*
[2]*Laboratoire Kastler Brossel, ENS, 24 rue Lhomond, 75005 Paris, France*
(Received 6 March 2000)

We report on an absolute frequency measurement of the hydrogen 1*S*-2*S* two-photon transition in a cold atomic beam with an accuracy of 1.8 parts in 10^{14}. Our experimental result of 2 466 061 413 187 103(46) Hz has been obtained by phase coherent comparison of the hydrogen transition frequency with an atomic cesium fountain clock. Both frequencies are linked with a comb of laser frequencies emitted by a mode locked laser.

PACS numbers: 32.30.–r, 06.30.Ft, 06.20.Jr, 42.62.Fi

The 1*S*-2*S* two-photon transition in atomic hydrogen has played a central role in the progress of high resolution laser spectroscopy and optical frequency metrology [1]. It provides a cornerstone for the determination of fundamental constants such as the Rydberg constant, which has become the most precisely measured constant in physics, and the 1*S*-Lamb shift to yield the most stringent test of quantum electrodynamics in an atom [2–4].

Here, we report on a new measurement of the absolute frequency of the hydrogen 1*S*-2*S* transition, which is obtained by phase coherent comparison with an atomic cesium fountain clock as a primary frequency standard. The achieved accuracy of 1.8 parts in 10^{14} surpasses previous measurements of the 1*S*-2*S* transition frequency, already the most precisely measured optical transition frequency, by an order of magnitude [5].

The hydrogen 1*S*-2*S* transition is excited by Doppler-free two-photon spectroscopy with a standing laser wave near 243 nm in a cold atomic beam. To provide an accurate link between the optical- and radio-frequency domain, we use a novel frequency chain based on measuring absolute frequencies with a train of femtosecond laser pulses [5,6]. The femtosecond laser provides a wide comb of precisely equidistant frequencies, which correspond to the modes of the laser cavity mutually phase locked via Kerr-lense mode locking [7]. The pulse repetition rate, which equals the mode spacing, is electronically phase locked to the radio-frequency standard, such that large optical frequency intervals can be accurately measured. Such a difference frequency measurement can be translated into an absolute frequency measurement by determining the differential frequency between two multiples of an optical frequency. The present measurement takes advantage of a transportable and currently most precise cesium frequency standard in the radio-frequency domain [8,9]. The use of an atomic fountain with laser cooled cesium atoms allows an accuracy of 2×10^{-15}.

At this high level of accuracy, a detailed understanding of the hydrogen 1*S*-2*S* two-photon line shapes and several systematic effects, notably the second-order Doppler effect and the ac-Stark shift, becomes necessary. The frequency stability of our chain is sufficient to resolve and explore the ac-Stark shift of this weak UV two-photon transition. With the laser intensities used, this shift amounts to 1 kHz at the most and is thus 2 or 3 orders of magnitude below that observed in hydrogenic 2*S*-*nS* and 2*S*-*nD* two-photon transitions [3,10]. For an accurate determination of the hydrogen 1*S*-2*S* transition frequency, we apply a theoretical model for the line shape taking into account both the excitation geometry and systematic effects [11]. We anticipate that the use of colder hydrogen atoms would allow a considerable further increase in resolution and accuracy.

The achieved accuracy establishes the 1*S*-2*S* resonance of atomic hydrogen as a *de facto* optical frequency standard. Ultimately, this hydrogen resonance could allow a definition of time in terms of other fundamental constants. Further, when repeating the frequency measurement with time, the present level of accuracy would already set stringent limits for possible slow relative changes of fundamental constants [12].

The experimental setup is shown in Fig. 1. The hydrogen spectrometer, illustrated at the top of the figure, is similar to the one described previously [11]. The frequency of a dye laser at 486 nm is locked to an external high-finesse reference cavity. The light of this ultrastable laser is frequency doubled, and the resulting UV radiation at 243 nm is coupled into a linear enhancement cavity inside a vacuum chamber for excitation of the two-photon Doppler-free 1*S*-2*S* transition. Hydrogen atoms escape from a nozzle cooled to 5–6 K by a liquid-helium flow-through cryostat and form an atomic beam. In the interaction region, shielded from stray electric fields by a Faraday cage, the atoms are excited from the 1*S* ground state to the excited 2*S* metastable state. After a distance $d \approx 13$ cm the atoms enter the detection region. A small electric field

 0031-9007/00/84(24)/5496(4)$15.00 © 2000 The American Physical Society

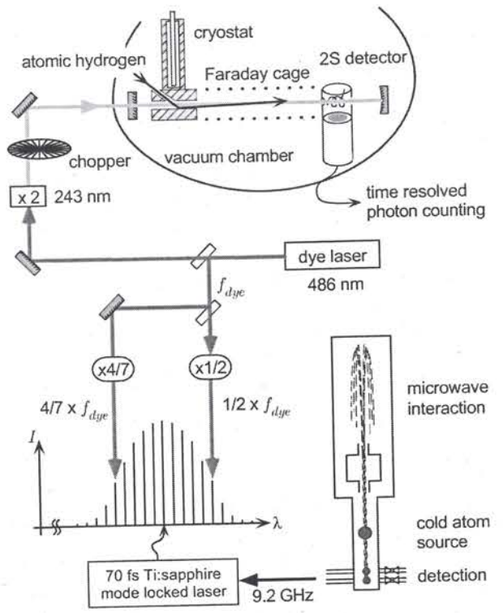


FIG. 1. Experimental setup for comparison of the hydrogen $1S$-$2S$ transition frequency with an atomic cesium fountain clock.

mixes the $2S$ and $2P$ states, forcing the excited atoms to decay and emit Lyman-α photons, which can be detected by a photomultiplier. Spurious background counts caused by the excitation light field are efficiently suppressed by periodically blocking the UV light with a mechanical chopper (165 to 465 Hz) and reading out the photomultiplier only in dark times. By enabling signal detection only after a certain delay time τ after blocking the UV light, we select the signal of slow atoms from the thermal beam. This technique further reduces the main systematic effects: the second-order Doppler effect and the time-of-flight broadening. With the help of a multichannel photon counter we detect photons time resolved and record them in a two-dimensional matrix as a function of laser detuning and discrete delay times τ. Figure 2 shows a typical set of 12 simultaneously recorded spectra.

To measure the frequency $f^{\mathrm{hf}}_{1S\text{-}2S}$ of the $1S(F = 1, m_F = \pm 1) \rightarrow 2S(F = 1, m_F = \pm 1)$ transition, we phase coherently compare the frequency of the dye laser $f_{\mathrm{dye}} \approx 616.5$ THz with an atomic cesium fountain clock. As sketched in Fig. 1, the new concept of measuring the frequency of light [5] is based on the measurement of a large frequency difference in the optical region between multiples (harmonics or subharmonics) of a laser frequency. From the dye laser frequency, we first derive the two optical frequencies $4/7 f_{\mathrm{dye}}$ and $1/2 f_{\mathrm{dye}}$ as described below. The frequency gap $4/7 f_{\mathrm{dye}} - 1/2 f_{\mathrm{dye}} = 1/14 f_{\mathrm{dye}} \approx 44$ THz is sufficiently small that it can be measured with the wide comb of regularly spaced laser

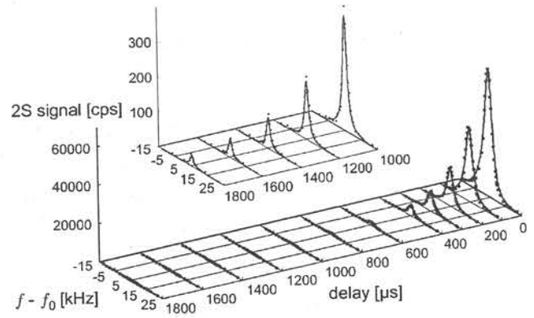


FIG. 2. Time-resolved Doppler-free $1S$-$2S$ two-photon spectrum in atomic hydrogen. The recorded $2S$ count rate is plotted versus delay time and absolute frequency, where $f_0 = 2\,466\,061\,102\,470$ kHz.

modes emitted by a mode locked femtosecond laser. The separation of these modes is given by the repetition rate of the femtosecond laser, which is phase locked to the radio frequency of the atomic cesium fountain clock.

The subharmonic $1/2 f_{\mathrm{dye}}$ of the dye laser, whose fourth harmonic coincides with the hydrogen $1S$-$2S$ frequency, is produced by locking the second harmonic of a 972 nm laser diode ($2 \times 1/2 f_{\mathrm{dye}}$) to it. Two laser frequencies $1/7 f_{\mathrm{dye}}$ and $4/7 f_{\mathrm{dye}}$ are produced with an optical frequency interval divider [13], which is a means to fix the relation of three laser frequencies such that the center one phase coherently divides the interval spanned by the others: $1/7 f_{\mathrm{dye}}$:$4/7 f_{\mathrm{dye}}$:f_{dye}. At the same time $4/7 f_{\mathrm{dye}}$ is phase locked to the fourth harmonic of $1/7 f_{\mathrm{dye}}$. Because our 3.39 μm He-Ne laser could not be tuned far enough to reach $1/7 f_{\mathrm{dye}}$ we used an additional laser diode and measured a second frequency gap of about 1 THz at its fourth harmonic. A more detailed description of the frequency chain is found in Ref. [5].

The frequency reference for the measurement is provided by a transportable cesium fountain frequency standard, which is described in [9]. A quartz oscillator is frequency locked to the cesium resonance. The relative frequency stability of the device is $1.8 \times 10^{-13} (\mathrm{Hz}\,\tau)^{-1/2}$, where τ is the averaging time, limited by the quartz oscillator phase noise. It has been measured by comparison with a hydrogen maser and corresponds to a relative stability per day of 6×10^{-16}. A preliminary accuracy evaluation of the fountain has been performed. The total uncertainty on the three major frequency shifts, namely, the Zeeman effect, the shift due to blackbody radiation, and the shift due to collisions between cold atoms, is below 10^{-15}. To set an upper limit on other possible frequency shifts, the fountain has been compared to the other BNM-LPTF cesium fountain, FO1, before and after transportation to Garching. Both clocks are found to agree within the 10^{-15} statistical uncertainty of the comparison. A quoted uncertainty of 2×10^{-15} for the absolute frequency of the fountain is then a conservative value.

Figure 2 shows a typical time-resolved hydrogen $1S$-$2S$ two-photon spectrum, as measured by comparison with the cesium atomic clock. We needed about 1 s to record one data point. Within ten days of measurement time we recorded about 600 of such spectra, corresponding to some 2000 data points per day. The high-finesse reference cavity is used as a fly wheel in the optical region. During data analysis, we measure the frequency of the light standing in the cavity and eliminate the drift of our cavity, typically 100 Hz/s at 121 nm, by fitting the drift versus time with a third-order polynomial. The absolute frequency of the dye laser is then calculated from the recorded time tags by adding the frequency difference between the dye laser and the cavity as selected by the acousto-optical modulator. The best fit for the drift is obtained by including not only the time interval for a single recorded spectrum, but an additional 50 data points before and after each spectrum. This procedure is repeated for each spectrum.

To calculate the theoretical $1S$-$2S$ line shape and fit the experimental data, we have numerically integrated the Bloch equations for an atom starting at the nozzle in the $1S$ ground state and traveling on a classical trajectory through the Gaussian 243 nm standing wave to the detector. In addition, we have integrated over all possible trajectories and the atomic velocity distribution $f(v)$. The line-shape model correctly predicts a dependence of the line center frequency on the delay time, as caused by the velocity dependence of the second-order Doppler effect.

A whole set of experimental spectra with different delay times is simultaneously fitted with the Levenberg-Marquart algorithm [14], which is performed with spline interpolated amplitude values from the line-shape model. We use an universal amplitude A and a laser detuning Δ_{det} for all delayed spectra as free parameters. The relative amplitudes and detunings are given by the line-shape model. As the atomic velocity distribution is *a priori* not known with sufficient accuracy, we leave some characteristic parameters of this distribution as additional fitting parameters. The atomic velocity distribution $f(v)$ is given by a Maxwellian velocity distribution [15], which needs to be modified due to the reduction of the number of slow atoms in the atomic beam caused by collisions inside the nozzle, known as the Zacharias effect [16]. The amount of the suppression of slow atoms depends on the Knudsen number $K := \bar{\lambda}/L_n$, where $\bar{\lambda}$ denotes the atomic mean free path length in the nozzle, and L_n is the length of the cylindrical nozzle. In a first step, only the temperature T of the atomic beam and the Knudsen number K were used to describe the atomic velocity distribution. However, satisfactory fits of the time-resolved experimental spectra with the theoretical model could not be obtained until introducing two further fit parameters to more accurately model the atomic velocity distribution. We have accounted for an additional suppression of slow atoms, which we ascribe to atomic collisions with the background gas. This additional suppression is modeled by replacing the v^3 dependence in $f(v)$ below a certain velocity v_s by $v^{v_{\mathrm{exp}}}$. With the two additional fit parameters v_s and v_{exp}, we are able to describe the atomic velocity distribution, as deduced from the time-resolved spectra, quite satisfactorily. To account for additional broadening effects, e.g., the linewidth of the laser, we fold our theoretical spectrum with a Lorentzian profile of linewidth Γ_{Lor} and leave this value as the final fit parameter. The solid lines in Fig. 2 show the result of the described fitting procedure for a typical time-resolved $1S$-$2S$ spectrum.

Besides the second-order Doppler shift, the ac-Stark shift introduces a significant systematic correction to our experimental $1S$-$2S$ two-photon spectra. Our theoretical line-shape model predicts a light shift of 2.45(5) Hz/mW for our excitation geometry when averaging over all possible atomic trajectories. As the shift of the line center is linearly dependent on the excitation light intensity, we can correct for this shift by recording spectra at different light intensities and extrapolating to zero intensity. On a typical measurement day we have recorded 40–90 spectra for different excitation light field powers.

In the upper part of Fig. 3 the measured transition frequencies for a typical day of measurement, as derived from the fits with the theoretical line-shape model, are plotted versus the light power. Linear extrapolation to zero intensity allows the correction for the ac-Stark shift. With this procedure we derive ten values for the $1S$-$2S$ transition frequency and calculate the weighted mean value, as

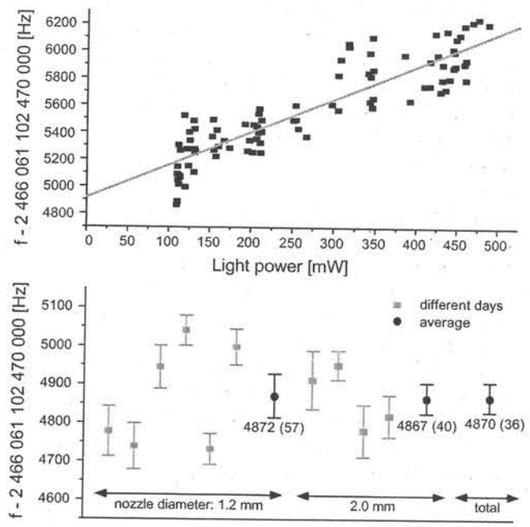


FIG. 3. Experimental results for the $1S$-$2S$ absolute frequency. The upper graph shows the results for all spectra recorded in a typical measurement day, where the absolute frequency, derived from our line-shape model, is plotted versus the excitation light field power. The graph below shows the complete set of data with the results of extrapolations to zero light intensity for ten different measurement days.

shown in the lower part of Fig. 3. We find a frequency of $f^{\mathrm{hf}}_{1S\text{-}2S} = 2\,466\,061\,102\,474\,870$ Hz, with a statistical uncertainty of 36 Hz. We estimated the systematic uncertainty given by the line shape to be 20 Hz [11], which is mainly determined by the uncertainty to which we can correct for second-order Doppler shift and ac-Stark shift. The slope derived from the linear fit and the measured light power is given by 2.64(45) Hz/mW and is in good agreement with the theoretical value. Line shifts due to blackbody radiation remain below 1 Hz [17].

Residual electric fields lead to a dc-Stark shift of the $1S$-$2S$ transition frequency of $\Delta\nu_{\mathrm{dc\text{-}Stark}} = 3600E^2\ \mathrm{Hz(V/cm)^{-2}}$ [18]. We estimate stray electric fields to be below 30 mV/cm, corresponding to a dc-Stark effect of less than 5 Hz. The pressure shift of the atomic hydrogen $1S$-$2S$ line from molecular hydrogen has been previously measured in a gas cell to be $\Delta\nu_P = 8.4$ MHz/mbar [19]. In our apparatus, the background pressure of 10^{-6} mbar is mainly due to molecular hydrogen, leading to a pressure shift of about 10 Hz. However, the density in the relatively short nozzle region is certainly higher, which could lead to an additional collisional shift of the line center. We have recorded data sets for two different nozzle diameters to vary the pressure inside the nozzle. Figure 3 shows that no statistical significant difference in the results for the line center is observed at the present level of accuracy. Residual recoil shifts due to the finite size of the excitation field optical mode (460 μm diameter) can be estimated to be less than 10 Hz [11].

The frequency $f_{1S\text{-}2S}$ of the hyperfine centroid is obtained by adding a correction $f_{\mathrm{hf}} = 310\,712\,233(13)$ Hz to account for the well known hyperfine splitting of the $1S$ and $2S$ levels [20] to the measured transition frequency $f^{\mathrm{hf}}_{1S\text{-}2S}$. Taking the pressure shift into account the obtained result is

$$f_{1S\text{-}2S} = 2\,466\,061\,413\,187\,103(46)\ \mathrm{Hz},$$

where the quoted uncertainty was obtained by quadratically adding the uncertainties of the frequencies $f^{\mathrm{hf}}_{1S\text{-}2S}$ and f_{hf}, the systematic uncertainty in the line shape, and 100% uncertainty for the pressure shift, the dc-Stark effect, the blackbody shift, and residual recoil shifts. This result represents the most precisely measured optical frequency in the ultraviolet and visible optical region. Further improvements should be possible by reducing the vacuum background pressure and the stability of the dye laser. Ultimately, a source of colder hydrogen atoms, e.g., in an atomic fountain could allow frequency measurements of the $1S$-$2S$ transition with an accuracy exceeding 10^{-16} [21,22].

Both the $1S$-Lamb shift and the Rydberg constant can be derived by comparison of two transition frequencies in the hydrogen atom. At the presented level of accuracy, an improvement is here possible only if other hydrogenic transition frequencies, e.g., that of the $2S$-nS or $2S$-nD ($n = 4, 8, \ldots$) two-photon transitions, are measured more accurately. An interesting option for a comparison with $1S$-$2S$ could be the direct excitation of a $1S$-nS two-photon line [23].

*Permanent address: Institute of Laser Physics of SB RAS, prospect Academician Lavrentieva 13, 630090 Novosibirsk-90, Russia.

[1] See, articles in *The Hydrogen Atom,* edited by G. F. Bassani, M. Inguscio, and T. W. Hänsch (Springer-Verlag, Berlin, 1989).
[2] Th. Udem *et al.,* Phys. Rev. Lett. **79,** 2646 (1997).
[3] C. Schwob *et al.,* Phys. Rev. Lett. **82,** 4960 (1999).
[4] D. J. Berkeland, E. A. Hinds, and M. G. Boshier, Phys. Rev. Lett. **75,** 2470 (1995).
[5] J. Reichert *et al.,* Phys. Rev. Lett. **84,** 3232 (2000).
[6] J. Reichert, R. Holzwarth, Th. Udem, and T. W. Hänsch, Opt. Commun. **172,** 59 (1999).
[7] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch, Opt. Lett. **24,** 881 (1999).
[8] G. Santarelli *et al.,* Phys. Rev. Lett. **82,** 4619 (1999).
[9] P. Lemonde *et al.,* in *Frequency Measurement and Control,* edited by A. N. Luiten (Springer-Verlag, Berlin, 2000).
[10] M. Weitz *et al.,* Phys. Rev. A **52,** 2664 (1995).
[11] A. Huber, B. Gross, M. Weitz, and T. W. Hänsch, Phys. Rev. A **59,** 1844 (1999).
[12] A. Godone, C. Novero, P. Tavella, and K. Rahimullah, Phys. Rev. Lett. **71,** 2364 (1993).
[13] H. R. Telle, D. Meschede, and T. W. Hänsch, Opt. Lett. **15,** 532 (1990).
[14] W. H. Press *et al., Numerical Recipes in Pascal* (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1989).
[15] G. Scoles *et al., Atomic and Molecular Beam Methods* (Oxford University Press, New York, 1988), Vol. I.
[16] N. F. Ramsey, Rev. Mod. Phys. **62,** 541 (1990).
[17] J. W. Farley and W. H. Wing, Phys. Rev. A **23,** 2397 (1981).
[18] H. A. Bethe and E. E. Salpeter, *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms* (Plenum, New York, 1977).
[19] D. H. McIntyre *et al.,* Phys. Rev. A **39,** 4591 (1989).
[20] L. Essen *et al.,* Nature (London) **229,** 110 (1971); J. W. Heberle, H. A. Reich, and P. Kusch, Phys. Rev. **101,** 612 (1956).
[21] R. G. Beausoleil and T. W. Hänsch, Phys. Rev. A **33,** 1661 (1986).
[22] D. G. Fried *et al.,* Phys. Rev. Lett. **81,** 3811 (1998).
[23] S. Bourzeix *et al.,* Phys. Rev. Lett. **76,** 384 (1996).

Die folgende Veröffentlichung [25] beschreibt einen von uns durchgeführten Vergleich zweier optischer Synthesizer (Abschnitt 9.4). Auf diese Weise wurde zum ersten Mal der komplette Multiplikationsschritt einer Radiofrequenz ins Optische mit hoher Präzision überprüft.

Optical Frequency Synthesizer for Precision Spectroscopy

R. Holzwarth, Th. Udem, and T. W. Hänsch
Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Straße 1, 85748 Garching, Germany

J. C. Knight, W. J. Wadsworth, and P. St. J. Russell
Optoelectronics Group, Department of Physics, University of Bath, Claverton Down, Bath BA2 7AY, United Kingdom
(Received 4 May 2000)

We have used the frequency comb generated by a femtosecond mode-locked laser and broadened to more than an optical octave in a photonic crystal fiber to realize a frequency chain that links a 10 MHz radio frequency reference phase-coherently in one step to the optical region. By comparison with a similar frequency chain we set an upper limit for the uncertainty of this new approach to 5.1×10^{-16}. This opens the door for measurement and synthesis of virtually any optical frequency and is ready to revolutionize frequency metrology.

PACS numbers: 32.30.Jc, 06.30.Ft, 42.62.Eh

For precision optical spectroscopy one has to determine optical frequencies of several 100 THz in terms of the definition of the SI second represented by the cesium ground state hyperfine splitting at 9.2 GHz. In the past heroic efforts were required to measure optical frequencies with harmonic frequency chains which create successive harmonics from the cesium radio frequency reference. These frequency chains were large, delicate to handle and usually designed to measure only one particular optical frequency [1–4]. Because of the 10^5 times higher frequencies and the narrow width of selected optical transitions, it is worthwhile to consider atomic clocks based on such optical transitions. The major obstacle for the construction of optical clocks has been the fact that no reliable clockwork was available that could count these rapid oscillations. Projected accuracies for optical frequency standards reach the 10^{-18} level and put up extraordinary demands on this clockwork. The f:$2f$ interval frequency chain [5–7] using a femtosecond (fs) frequency comb finally provides the missing clockwork in a compact and reliable setup.

It has been long recognized that the periodic pulse train of a mode-locked laser can be described in the frequency domain as a comb of equidistant modes. Such a comb can be used to measure large optical frequency differences by counting modes if the spacing between them is known [8]. As the spectral width of these lasers scales inversely with the pulse duration the advent of fs lasers has opened the possibility to directly access THz frequency gaps [9,10]. Previously we have shown that the easily accessible repetition rate of such a laser equals the mode spacing within the experimental uncertainty of a few parts in 10^{16} [11] and that the frequency comb is equally spaced even after further spectral broadening in a standard single mode fiber on the level of a few parts in 10^{18} [12]. Extending this principle of determining frequency differences to the intervals between harmonics of optical frequencies [13] leads naturally to the absolute measurement of optical frequencies. The first frequency chain following this principle has been used in a recent determination of the hydrogen $1S$-$2S$ transition and measured the interval between $3.5f$ and $4f$ where f is the frequency of a HeNe laser at 3.39 μm (88.4 THz) [5].

The latest developments in photonic crystal fibers (PCF) [14–17], with specifically engineered wave guiding and dispersion properties, allow very efficient spectral broadening of fs pulses to more than one optical octave. It has been demonstrated that such a broad comb can be used as a freely floating ruler to directly measure the frequency interval between the fundamental (f) and the second harmonic ($2f$) of a Nd:YAG laser at 1064 nm/532 nm locked to an iodine transition [6]. To exploit the full potential of this approach we have now used such a broadened frequency comb to stabilize the frequency interval between a laser frequency f and its second harmonic $2f$, and therefore the frequency $f = 2f - f$ itself. Alternatively, the comb itself can be frequency doubled [6,7,18]. At the end point of this development we have arrived at a frequency chain that consists of one fs laser and an optional Nd:YAG laser only and nevertheless links a 10 MHz rf reference phase coherently in one step to almost 10^6 distinct optical frequencies. To evaluate the performance of such a frequency chain we report in this Letter on the comparison of two such chains, setting an upper limit of 5.1×10^{-16} for their uncertainties.

To understand the mode structure of a fs frequency comb, consider a pulse circulating in a laser cavity with length L at a carrier frequency f_c that is subject to strong amplitude modulation described by an envelope function $A(t)$. This function defines the pulse repetition time $T = f_r^{-1}$ by demanding $A(t) = A(t - T)$ where T is calculated from the cavity mean group velocity: $T = 2L/v_{\mathrm{gr}}$. Fourier transformation of $A(t)$ shows that the resulting spectrum consists of a comb of laser modes separated by the pulse repetition frequency and centered at f_c [19]. Since f_c is not necessarily an integer multiple of f_r, the modes are shifted from being exact harmonics of the pulse repetition frequency by an offset $f_o < f_r$:

$$f_n = nf_r + f_o, \qquad n = \text{a large integer.} \tag{1}$$

 0031-9007/00/85(11)/2264(4)$15.00 © 2000 The American Physical Society

This equation maps two radio frequencies f_r and f_o onto the optical frequencies f_n. While f_r is readily measurable, f_o is not easily accessible unless the frequency comb contains more than an optical octave [19]. In the time domain the frequency offset is obvious because group velocity differs from phase velocity, and therefore the carrier wave does not repeat itself after one round trip but appears phase shifted by, say, $\Delta\varphi$. The offset frequency is then calculated from $f_o = \Delta\varphi/T2\pi$ [19]. To compensate for small frequency drifts caused, for example, by acoustics or temperature variations of the fiber we control the absolute position and the mode separation with beat signals obtained after the fiber.

Our PCF is a strongly guiding fiber waveguide that uses an array of submicron-sized air holes running the length of a silica fiber to confine light to a pure silica region embedded within the array [14]. The large refractive index contrast between the pure silica core and the "holey" cladding and the resultant strong optical confinement allow the design of fibers with very different characteristics from those of conventional fibers. In the fiber used here, a very small core diameter of approximately 1.5 μm leads to increased nonlinear interaction of the guided light with the silica. At the same time the very strong waveguide dispersion substantially compensates the material dispersion of the silica at wavelengths below 1 μm [15]. This gives an overall group velocity dispersion (GVD) which is zero around 700 nm. The absolute value of the GVD over much of the visible and near-infrared range is smaller than in conventional fibers, and the GVD is anomalous at much shorter wavelengths. As a result, fs pulses travel farther in these fibers before being dispersed, which further increases the nonlinear interaction. Consequently, substantially broader spectra can be generated in PCFs at relatively low peak powers [16,17]. The creation of additional modes by the fiber action can be understood by self-phase modulation or alternatively in the frequency domain by four wave mixing. Although self-phase modulation is likely the dominant mechanism of spectral broadening, there are other processes like stimulated Raman and Brillouin scattering or shock wave formation that might spoil the usefulness of these broadened frequency combs. And, indeed, in an experiment using 8 cm of PCF and 73 fs pulses at 75 MHz repetition rate from a Mira 900 system (Coherent Inc.) we have seen an exceptionally broad spectrum from 450 to 1400 nm, but we have not been able to observe beat notes with a signal to noise ratio sufficient for phase locking. We did not observe these problems with a higher repetition rate and shorter pulse length. So far we have not encountered any degradation of the fiber as one might expect due to the high peak intensities.

The f:$2f$ interval frequency chain sketched in Fig. 1 is based on a Ti:sapphire ring laser with a bandwidth supporting 25 fs and a 625 MHz repetition rate (GigaOptics, model GigaJet). While the ring design makes it almost immune to feedback from the fiber, the high repetition rate increases the available power per mode. The highly efficient spectral broadening of the PCF compensates for the decrease of available peak power connected with a high repetition rate. To generate an octave spanning comb we have coupled 190 mW average power through 35 cm PCF. In our experiments we have used two repetition rates, 625 and 624.87 MHz, two offset frequencies $f_o = 0$ Hz and 64 MHz, as well as operation with and without an auxiliary frequency doubled Nd:YAG laser (InnoLight, model Prometheus) defining the frequencies f and $2f$.

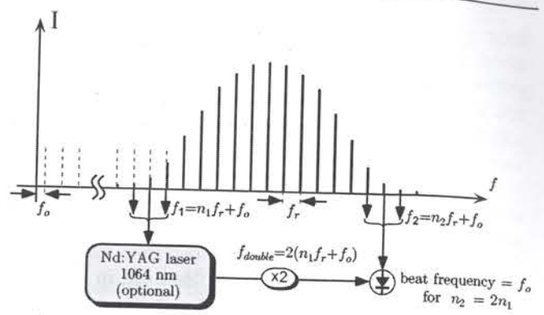


FIG. 1. The f:$2f$ interval frequency chain is based on the stabilization of the interval between an optical frequency f and its second harmonic $2f$ with the help of a fs frequency comb. Once the offset frequency and repetition rate are locked, all the modes in the comb can be used for optical frequency measurements.

We lock the pulse repetition frequency f_r to the rf reference provided by a 10 MHz quartz oscillator (Oscilloquartz, model 8607-BM) by controlling the fs laser cavity length with a piezomounted folding mirror. To reduce noise in the detection process we use a 12.5 GHz signal provided by a synthesizer (Hewlett-Packard, model 8360) to phase lock the 20th harmonic of f_r [9,19]. Then the fundamental wave f_{1064} of the Nd:YAG laser is locked to one of the modes of the frequency comb by forcing their beat note to oscillate in phase with a radio frequency reference LO_{1064}, the local oscillator [19,20]. As shown in Fig. 1 we then observe a beat note at $2f_{1064} = f_{532} = 2(nf_r + f_o - \mathrm{LO}_{1064})$ with the frequency comb whose closest mode frequency is given by $2nf_r + f_o$. The beat frequency $f_o - 2\mathrm{LO}_{1064}$ is locked to another local oscillator: $f_o - 2\mathrm{LO}_{1064} = -\mathrm{LO}_{532}$. This is accomplished by adjusting the power of the pump laser (Coherent, model Verdi) with an electro-optic modulator (Gsänger, LM0202) [12,21]. Primarily this changes the mean power of the fs laser and thus the optical path length in the Ti:sapphire crystal via its optical Kerr effect. Although the two controls (i.e., cavity length and pump power) are not orthogonal, they affect the round trip group delay T and the round trip phase delay differently, and this is what is needed [19]. Note that for the case $f_o = 0$ Hz according to Eq. (1) the mode frequencies are exact harmonics of the repetition rate. By choosing the value of $2\mathrm{LO}_{1064} - \mathrm{LO}_{532} = f_o = \Delta\varphi/T2\pi$ we can adjust the pulse to pulse phase shift $\Delta\varphi$ to a selected value (e.g., $\Delta\varphi = 0$). We have therefore precise control of the

time evolution of the absolute carrier phase versus the envelope. Stabilization of f_o is in turn a prerequisite for the next generation of ultrafast experiments making use of few cycle driven high field processes [7,18]. However, the ultimate carrier-to-envelope phase control, i.e., the control over φ rather than $\Delta\varphi$, has not yet been achieved.

For the second operating mode we directly frequency double the infrared part of the spectrum around 1060 nm and observe a beat note with the green part [6,7]. The infrared part of the spectrum is separated from the green part with the help of a dichroic mirror, doubled in a $3 \times 3 \times 7$ mm^3 KTP (potassium titanyl phosphate) crystal properly cut and antireflection coated and recombined with the green part on a polarizing beam splitter. For the green part an optical delay line is included to match the optical path lengths. The polarization axes of the recombined light are mixed using a rotatable polarizer. A grating which serves as 5 nm wide bandpass filter selects the wavelengths around 530 nm. A beat signal with a signal to noise ratio exceeding 40 dB in 400 kHz bandwidth, sufficient for phase locking [12], has been obtained. In this way we have direct access to the offset frequency f_o that we have locked to 64 MHz using the offset locking technique described above, although any other value is possible.

To check the integrity of the broad frequency comb and evaluate the overall performance of the f:$2f$ interval frequency chain we compare it with a similar frequency chain that has already been used in a recent comparison of the hydrogen $1S$-$2S$ transition frequency (at 121 nm) with a cesium fountain clock [22]. This chain was modified to replace a dye laser by a frequency doubled diode laser/tapered amplifier combination at 969 nm [23] and by removing an additional frequency gap of 1 THz by operating the diode laser at exactly $3.5f$ where f is the frequency of a HeNe laser at 88.4 THz (3.39 μm). The 44.2 THz frequency comb used here is generated by a Mira 900 system with a regular single mode fiber and has been thoroughly tested [11,12]. It is used to stabilize the frequency gap set by two diode lasers at $3.5f$ and $4f$ as sketched in Fig. 2. This relates the difference $4f - 3.5f = 0.5f$ and therefore f to the rf source controlling the repetition rate. A frequency interval divider [24] fixes the relation between the frequencies f, $4f$, and $7f$, and additional nonlinear steps are used to generate $4f$ and $3.5f$. Just like the simple f:$2f$ frequency chain the latter phase coherently links every laser in the chain to the 10 MHz rf reference that controls the pulse repetition rate and the local oscillators.

To compare the two frequency chains we use the 848 nm laser diode of Fig. 2 and a second 848 nm laser diode locked to the frequency comb of the f:$2f$ chain. The frequencies of these two laser diodes measured relative to the quartz are 353 504 624 750 000 Hz and 353 504 494 400 000 Hz for the f:$2f$ and the $3.5f$:$4f$ chains, respectively. So we expect a beat note of 130.35 MHz that we measure with a radio frequency counter (Hewlett Packard, model 53132A) referenced to the same quartz oscillator. To avoid cycle-slipping events

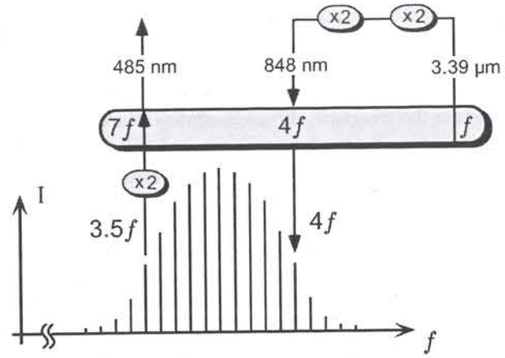


FIG. 2. The first realization of the novel frequency chain that has been used in Refs. [5,22] uses an optical frequency interval divider (oval symbol) [24] that fixes the relation between the frequencies f, $4f$, and $7f$. The 3.39 μm laser at f is locked through the divider after the frequency comb locked $3.5f$ on $4f$.

entering our data we continuously monitor all in-lock beat signals with additional counters that are started shortly before and stopped shortly after the recording of any data point. If one of these counters displays a frequency different from the local oscillator frequency we exclude this point from evaluation. The cycle slip threshold was set to 1 Hz for a counter gate time of 1 s and was reduced as the inverse of the gate time for longer gate times. Because of the small servo bandwidth of the HeNe laser lock, it was operated with a 1024-cycle phase detector [20]. This servo showed by far the largest phase excursions so that the cycle slip threshold was set to 40 times the value of the other phase locked loops.

After averaging all data we obtained a mean deviation from the expected beat frequency of 71 ± 179 mHz at 354 THz. This corresponds to a relative uncertainty of 5.1×10^{-16}. No systematic effect is visible at this accuracy and the distributions of data points look almost ideally Gaussian. The results are summarized in Table I. Figure 3 shows the measured Allan standard deviation for counter gate times of 1, 3, 10, 30, and 100 s. As both 354 THz signals are phase locked to each other (via the quartz oscillator) and the rms phase fluctuation is expected to be constant in time, the Allan standard deviation should fall off like the inverse counter gate time. The large margin phase detector together with the slow servo controlling the phase of the HeNe laser relative to the diode lasers causes frequency fluctuations of 14 Hz at 1 s gate time as measured from the in-lock beat signal. Instabilities could be caused not only by the large margin phase locked loops and slow servos but also by mechanical vibrations or thermal expansion. Note that the large frequency chain of Fig. 2 is resting on two separate optical tables whose relative position is not controlled. Another source of instability could be the specified 1.5×10^{-13} Allan standard deviation (within 1 s) of the quartz oscillator together with time delays present in both systems. To check whether or not the synthesizers

TABLE I. Summary of results from the frequency chain comparison with statistical uncertainties derived from the data. Two additional points have been removed from the 1 s data set that have been more than 50 kHz off but have not been detected as cycle slips. The weighted mean of column 3 yields 71 ± 179 mHz (5.1×10^{-16}).

Gate time	Allan standard deviation	Mean deviation from 130.35 MHz	Relative uncertainty	Approved readings
1 s	3.3×10^{-13}	−1.2 ± 1.8 Hz	5.1×10^{-15}	4310
3 s	7.0×10^{-14}	−0.54 ± 1.8 Hz	5.1×10^{-15}	181
10 s	2.6×10^{-14}	207 ± 376 mHz	1.1×10^{-15}	574
30 s	1.1×10^{-14}	551 ± 441 mHz	1.6×10^{-15}	65
100 s	3.9×10^{-15}	−82 ± 233 mHz	6.6×10^{-16}	39

introduce additional noise we operated both chains with the same synthesizer to stabilize the repetition rates without any significant difference.

To summarize, we have realized a compact f:$2f$ interval frequency chain, evaluated its performance, and operated it fully phase locked over periods of hours. It occupies only 1 square meter on our optical table with considerable potential for further miniaturization. At the same time it supplies us with a reference frequency grid across much of the visible and infrared spectrum with modes that are separated by 625 MHz and can easily be distinguished with a commercial wave meter. This makes it an ideal laboratory tool for precision spectroscopy that is ready to serve as a clockwork in future optical clocks. In the reverse direction we expect this clockwork to transfer not only the accuracy but also the superior stability of optical oscillators to the rf domain. Other important applications arise in the time domain where the carrier offset slippage frequency is an important parameter and needs to be controlled for the next generation of ultrafast experiments.

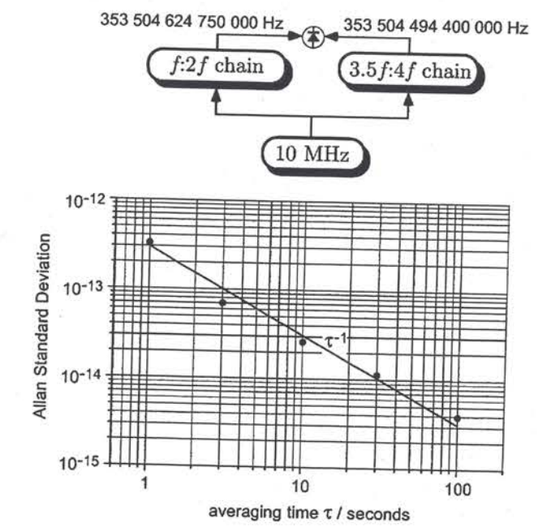


FIG. 3. Top: The setup is shown schematically with the f:$2f$ and the $3.5f$:$4f$ chains as detailed in Figs. 1 and 2, respectively. The graph below shows the measured relative Allan standard deviation derived from the comparison of the two frequency chains. The values are also stated in Table I.

We thank F. Krausz and A. Poppe (Vienna, Austria), as well as S. Diddams and J. Hall (Boulder, Colorado, USA), for fruitful discussions.

[1] Th. Udem *et al.*, Phys. Rev. Lett. **79**, 2646 (1997).
[2] H. Schnatz *et al.*, Phys. Rev. Lett. **76**, 18 (1996).
[3] C. Schwob *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 4960 (1999).
[4] J. E. Bernard *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 3228 (1999).
[5] J. Reichert *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 3232 (2000).
[6] S. A. Diddams *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 5102 (2000).
[7] D. Jones *et al.*, Science **288**, 635 (2000).
[8] J. N. Eckstein, A. I. Ferguson, and T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **40**, 847 (1978).
[9] Th. Udem *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 3568 (1999).
[10] S. A. Diddams *et al.*, Opt. Lett. **25**, 186 (2000).
[11] Th. Udem *et al.*, Opt. Lett. **24**, 881 (1999).
[12] R. Holzwarth *et al.* (to be published).
[13] See contributions of T. W. Hänsch *et al.*, in *The Hydrogen Atom* (Springer, Berlin, 1989), and references therein; D. J. Wineland, *ibid.*
[14] J. C. Knight *et al.*, Opt. Lett. **21**, 1547 (1996).
[15] M. J. Gander *et al.*, Electron. Lett. **35**, 63 (1999).
[16] J. K. Ranka, R. S. Windeler, and A. J. Stentz, Opt. Lett. **25**, 25 (2000).
[17] W. J. Wadsworth *et al.*, Electron. Lett. **36**, 53 (2000).
[18] A. Apolonski *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 740 (2000).
[19] J. Reichert *et al.*, Opt. Commun. **172**, 59 (1999).
[20] M. Prevedelli, T. Freegarde, and T. W. Hänsch, Appl. Phys. B **60**, S241 (1995).
[21] L. Xu *et al.*, Opt. Lett. **21**, 2008 (1996).
[22] M. Niering *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 5456 (2000).
[23] C. Zimmermann *et al.*, Appl. Phys. Lett. **66**, 2318 (1995).
[24] D. McIntyre and T. W. Hänsch, in *Digest of the Annual Meeting of the Optical Society of America* (Optical Society of America, Washington, DC, 1988); H. R. Telle, D. Meschede, and T. W. Hänsch, Opt. Lett. **15**, 532 (1990).

In der nachfolgenden Referenz [3] sind die Absolutfrequenzmessungen an gespeicherten Quecksilberionen und gespeichertem neutralen Kalzium beschrieben, die ich zusammen mit der Gruppe von Leo Hollberg und Jim Bergquist am *National Institute of Standards and Technology* (NIST) in Boulder CO/USA durchgeführt habe.

VOLUME 86, NUMBER 22 PHYSICAL REVIEW LETTERS 28 MAY 2001

Absolute Frequency Measurements of the Hg^+ and Ca Optical Clock Transitions with a Femtosecond Laser

Th. Udem,* S. A. Diddams, K. R. Vogel, C. W. Oates, E. A. Curtis, W. D. Lee, W. M. Itano, R. E. Drullinger, J. C. Bergquist, and L. Hollberg

Time and Frequency Division, National Institute of Standards and Technology, 325 Broadway, Boulder, Colorado 80305

(Received 4 January 2001)

The frequency comb created by a femtosecond mode-locked laser and a microstructured fiber is used to phase coherently measure the frequencies of both the Hg^+ and Ca optical standards with respect to the SI second. We find the transition frequencies to be $f_{Hg} = 1\,064\,721\,609\,899\,143(10)$ Hz and $f_{Ca} = 455\,986\,240\,494\,158(26)$ Hz, respectively. In addition to the unprecedented precision demonstrated here, this work is the precursor to all-optical atomic clocks based on the Hg^+ and Ca standards. Furthermore, when combined with previous measurements, we find no time variations of these atomic frequencies within the uncertainties of $|(\partial f_{Ca}/\partial t)/f_{Ca}| \leq 8 \times 10^{-14}$ yr^{-1} and $|(\partial f_{Hg}/\partial t)/f_{Hg}| \leq 30 \times 10^{-14}$ yr^{-1}.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.86.4996 PACS numbers: 06.30.Ft, 32.30.Jc, 32.80.Pj

Optical standards based on a single ion or a collection of laser-cooled atoms are emerging as the most stable and accurate frequency sources of any sort [1–5]. However, because of their high frequencies (~500 THz), it has proven difficult to count cycles as required for building an optical clock and comparing to the cesium microwave standard. Only recently, a reliable and convenient optical clockwork fast enough to count optical oscillations has been realized [6–8]. Here, we report an optical clockwork based on a single femtosecond laser that phase coherently divides down the visible radiation of the Hg^+ and Ca optical frequency standards to a countable radio frequency. By this means we determine the absolute frequencies of these optical transitions with unparalleled precision in terms of the SI second as realized at National Institute of Standards and Technology (NIST) [9]. Indeed, for the Hg^+ standard, the statistical uncertainty in the measurement is essentially limited by our knowledge of the SI second at $\sim 2 \times 10^{-15}$. The high precision and high demonstrated stability of the standards [1,4] combined with the straightforward femtosecond-laser-based clockwork suggest Hg^+ and Ca as excellent references for future all-optical clocks. Additionally, the comparison of atomic frequencies over time provides constraints on the possible time variation of fundamental constants. When combined with previous measurements, the current level of precision allows us to place the tightest constraint yet on the possible variation of optical frequencies with respect to the cesium standard.

The Hg^+ and Ca systems have recently been described elsewhere [1,4,10,11], so we summarize only the basic features. The heart of the mercury optical frequency standard is a single, laser-cooled $^{199}Hg^+$ ion that is stored in a cryogenic, radio frequency spherical Paul trap. The $^2S_{1/2}(F = 0, M_F = 0) \leftrightarrow {}^2D_{5/2}(F = 2, M_F = 0)$ electric-quadrupole transition at 282 nm [Fig. 1(a)] provides the reference for the optical standard [1]. We lock the frequency-doubled output of a well-stabilized 563 nm dye laser to the center of the quadrupole resonance by irradiating the Hg^+ ion alternately at two frequencies near the maximum slope of the resonance signal and on opposite sides of its center. Transitions to the metastable $^2D_{5/2}$ state are detected with near unit efficiency since the absorption of a single 282 nm photon suppresses the scattering of many 194 nm photons on the strongly allowed $^2S_{1/2} - {}^2P_{1/2}$ transition [12,13]. Because the fractional frequency instability of the probe laser is $\leq 10^{-15}$ for measurement times $0.1\ \text{s} < t < 10\ \text{s}$ [11], usually 48 measurements are made on each side of the resonance prior to correcting the average frequency of the 282 nm source. The resonance probe period was either 10 or 20 ms, but each measurement cycle was longer by the time used (for example) for state preparation (15 ms) and detection (10 ms), as well as the decay time ($\tau_D \approx 90$ ms) of the metastable state if an excitation was made. A new interrogation cycle is begun when the 194 nm fluorescence intensity rises above a preset threshold level. This reduces dead time, since it would otherwise be necessary to wait more than the lifetime of

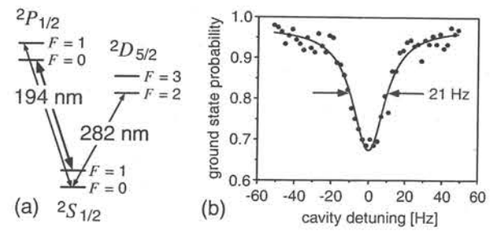


FIG. 1. (a) Partial level scheme for $^{199}Hg^+$. The 194 nm radiation is used for Doppler cooling, state preparation, and detection. The 282 nm transition from the ground state $^2S_{1/2}(F = 0, M_F = 0)$ to the metastable $^2D_{5/2}(F = 2, M_F = 0)$ state provides the reference for the optical clock frequency. (b) A typical spectrum of the 282 nm clock transition obtained under lock conditions is shown. Here, the excitation pulse length was 20 ms, and the measured linewidth is Fourier transform limited to about 20 Hz at 563 nm (40 Hz at 282 nm).

the metastable state to ensure that the ion has returned to the ground state. If an asymmetry between the number of excitations detected on the high- and low-frequency sides is found, then the frequency of the probe radiation is adjusted to minimize the asymmetry. In this way, we steer the frequency of the 282 nm source to the center of the $S - D$ quadrupole resonance with an uncertainty that is less than 2×10^{-15} for averaging times $\tau \leq 30$ s and that decreases as $\tau^{-1/2}$ for $\tau > 30$ s [14]. In Fig. 1(b) we show an example of a normalized spectrum that was obtained from multiple bidirectional scans through the resonance during the lockup, where the probe time was 20 ms.

The calcium standard is based on a collection of $\sim 10^7$ laser-cooled ^{40}Ca atoms held in a magneto-optic trap. The 423 nm $^1S_0 \leftrightarrow {}^1P_1$ transition is used for Doppler cooling and trapping the atoms to a residual temperature of ~ 2 mK, while the 657 nm $^1S_0(M_J = 0) \leftrightarrow {}^3P_1(M_J = 0)$ clock transition (400 Hz natural linewidth) is used for the frequency standard [Fig. 2(a)]. We excite the clock transition with a four-pulse Bordé-Ramsey sequence (pulse duration $= 1.5$ μs) with light from a continuous wave (cw) frequency-stabilized diode laser. Using a shelving detection technique similar to that employed in the Hg^+ system, near-resonant 423 nm pulses (5 μs duration) are used before and after the 657 nm excitation to determine the fraction of atoms transferred from the ground state. Figure 2(b) shows Bordé-Ramsey fringes taken at a resolution of 960 Hz. This system has demonstrated a fractional frequency instability of $4 \times 10^{-15}\tau^{-1/2}$, when probing subkilohertz linewidths [4]. For the measurements presented here the Ca spectrometer was operated with linewidths ranging from 0.96 to 11.55 kHz which are integer subharmonics of the recoil splitting.

The recent introduction of mode-locked lasers to optical frequency metrology greatly simplifies the task of optical frequency measurements [6–8,15–17]. The spectrum emitted by a mode-locked laser consists of a comb of regular spaced continuous waves that are separated by the pulse repetition rate f_r. The frequency of the nth mode of the comb is given by $f_n = nf_r + f_o$ [18,19], where f_o is the frequency offset common to all modes that is caused

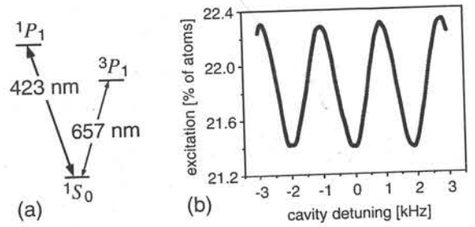


FIG. 2. (a) Simplified diagram of the relevant energy levels in the Ca standard. (b) Optical Bordé-Ramsey fringes with a 960 Hz (FWHM) resolution. The total averaging time to generate this figure was 20 s.

by the difference between the group and the phase velocity inside the laser cavity. Whereas f_r can be measured by direct detection of the laser output with a photodiode, f_o is measured by heterodyning the harmonic of a mode $f_n = nf_r + f_o$ from the infrared wing of the comb with a mode $f_{2n} = 2nf_r + f_o$ from the blue side of the comb [7,8]. While an octave spanning comb can be produced directly from a mode-locked laser [20], launching the longer pulses from a commercially available femtosecond laser into an air-silica microstructure fiber [21,22] also produces a frequency comb that spans an octave. Via nonlinear processes in the fiber, additional equally spaced and phase-coherent modes are added to the comb. It has been demonstrated that this process of spectral broadening preserves the uniformity of spacing and spectral fidelity of the comb to at least a few parts in 10^{16} [8].

We couple approximately 200 mW average power from a femtosecond Ti:sapphire ring laser ($f_r \approx 1$ GHz) [23] into a 15 cm piece of a microstructure fiber that has a 1.7 μm core and a group velocity dispersion that vanishes near 770 nm [21]. This power is sufficient to increase the spectral width of the laser from 13 THz to more than 300 THz, spanning from ~ 520 to ~ 1170 nm. The infrared part of the comb from the fiber ($\lambda \approx 1060$ nm) is split off by a dichroic mirror and frequency doubled into the green portion of the visible spectrum with a 2 mm long $KNbO_3$ crystal. Following an adjustable delay line that matches the optical path lengths, the frequency-doubled light is spatially combined with the green part of the original comb using a polarizing beam splitter. A second rotatable polarizer projects the polarization of the combined beams onto a common axis so that they can interfere on a photodiode. This polarizer is also used to adjust the relative power of the two beams for optimum signal-to-noise ratio in the heterodyne signal. A small grating prior to the photodiode helps to select only that part of the frequency comb that matches the frequency-doubled light, thereby reducing noise from unwanted comb lines [19]. We phase lock both f_o and f_r to synthesized frequencies derived from a cavity-tuned hydrogen maser. Control of f_r is achieved with a cavity folding mirror that is mounted on a piezotransducer, while f_o is controlled by adjusting the 532 nm pump beam intensity with an electro-optic modulator [8]. When f_o and f_r are both phase locked, the frequency of every mode in the comb is known with the same precision as the reference maser.

The cw light from the Hg^+ (563 nm) and Ca (657 nm) spectrometers is transferred to the mode-locked laser system via two single mode optical fibers that are 180 m and 10 m long, respectively. Approximately 2 mW of cw light from each fiber is mode matched with the appropriate spectral region of the frequency comb to generate a beat signal f_b with a nearby mode. This beat note is amplified and measured with a radio frequency counter. The optical frequency is then expressed as $f_{\text{opt}} = f_o + mf_r + f_b$, where m is a large integer uniquely determined for each system from previous coarse measurements of f_{opt}.

We detect cycle slips in both of the phase locks by monitoring f_r and f_o with additional counters [24]. We selectively discard any measurement of f_{opt} for which the measured f_o or f_r deviate from the expected value by more than $1/\tau_{\text{gate}}$, where τ_{gate} is the counter gate time in seconds. We avoid miscounts of f_b by using an auxiliary counter to record the ratio r between f_b and $f_b/4$, where the division by 4 is implemented digitally. Any measurements of f_b where the auxiliary counter gives a result that does not satisfy $(r - 4)f_b < 10/\tau_{\text{gate}}$ are discarded. We rely on the assumption that the two counters recording f_b and r, if in agreement, do not make the *same* mistake. For each data point the three additional counters (f_r, f_o, and r) are started before the counting of f_b and operated with 50 ms longer gate times to ensure temporal overlap.

Figure 3 summarizes the frequency measurements of Hg^+ made between 16 August and 31 August 2000, and Fig. 4 summarizes the Ca measurements made from 26 October to 17 November 2000. All measurements are corrected for the second-order Zeeman shift and for the offset of the reference maser frequency. The uncertainty for the Zeeman correction is $< 1 \times 10^{-15}$ for the Hg^+ system and $< 2.5 \times 10^{-15}$ in the Ca system. The frequency of the maser is calibrated by comparing to the local NIST time scale (5 hydrogen masers and 3 commercial cesium clocks), which in turn is calibrated by the local cesium fountain standard (NIST-F1 [9]), as well as international cesium standards. This resulted in a fractional uncertainty in the frequency of the reference maser of about 1.8×10^{-15} for the measurements.

The weighted mean of our measurements of the Hg^+ clock transition is $f_{\text{Hg}} = 1\,064\,721\,609\,899\,143$ Hz, where the statistical uncertainty of 2.4 Hz is near the fractional frequency instability of the reference maser ($\sim 2 \times 10^{-13}$ at 1 s, decreasing to $\sim 4 \times 10^{-16}$ at a few days). We have not yet made a full evaluation of the systematic uncertainties of the Hg^+ standard; however, we believe that 10 Hz

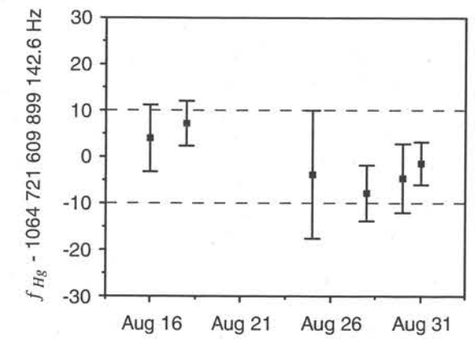


FIG. 3. A chronological record of the average daily frequency of the $^{199}Hg^+$ clock transition measured on six days over a 15 day period representing 21 651 s of total measurement time. The error bars represent statistical fluctuations. The dashed lines represent an estimated systematic uncertainty of ± 10 Hz in the Hg^+ system in the absence of a full evaluation.

is a conservative upper bound for the total systematic uncertainty. The largest systematic uncertainty is due to the interaction between the atomic quadrupole moment of the $^2D_{5/2}$ state and a static electric field gradient. In the currently used spherical Paul trap, no static field gradient is deliberately applied. A potential difference between the ring and the end cap electrodes of as large as 0.5 V due to contact potentials or stray charges, for example, would result in a quadrupole shift of only 1 Hz [25]. The magnetic field is evaluated before and after each run by measuring the frequency of one or more of the magnetic field dependent electric-quadrupole transitions. This results in an uncertainty of the second-order Zeeman shift of the clock transition of less than 0.5 Hz. The accuracy of this calibration has been verified by varying the magnitude of the magnetic field for successive runs. The blackbody radiation shift of the clock transition would be -0.08 Hz at 300 K and is considerably lower in the cryogenic trap environment of approximately 4 K. At the Doppler cooling limit, the second-order Doppler shift due to thermal motion is -0.003 Hz. Finally, the second-order Doppler shift due to residual micromotion caused by the trapping field is estimated to have a magnitude no greater than 0.1 Hz. We anticipate that the uncertainties of all systematic shifts in the Hg^+ system can be reduced to values approaching 1×10^{-18} [1,25].

For the Ca data shown (Fig. 4), an additional correction is applied each day to account for a frequency shift caused by residual phase chirping on the optical Ramsey pulses produced by amplitude modulating an acousto-optic modulator (AOM). The phase chirping produced a resolution dependent frequency shift on the order of 100 Hz for 11.5 kHz wide fringes but only 10 Hz for 0.96 kHz

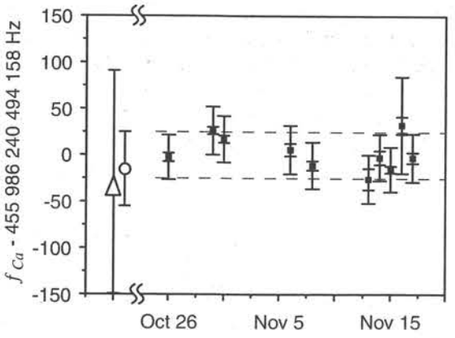


FIG. 4. The filled squares are the measured Ca frequencies on ten days over a 23 day period representing 38 787 s of total measurement time. The inner and outer error bars for each day represent the statistical and total uncertainties, respectively. The dashed lines show the 26 Hz systematic uncertainty assigned to the mean. The open triangle is the Physikalisch-Technische Bundesananstalt (PTB) measurement reported in Ref. [26], and the open circle is the Ca frequency calculated from the present Hg^+ result and our previous measurement of the 76 THz gap between Ca and Hg^+ [27].

wide fringes. On each day, the Ca frequency was measured for ~30 min at each of several fringe resolutions, and the zero intercept of a linear fit to the data was used as the corrected frequency. On the last three days of measurements, we were able to reduce this shift by a factor of ~3 with improvements to the rf pulses that drive the AOM's. With horizontal beams we can achieve <20 Hz gravity-induced frequency shift, which can be readily quantified and eliminated simply by reversing the pulse sequence. The statistical uncertainty for each day's measurement (typically 8 Hz) is smaller than the uncontrolled systematic uncertainties in the Ca frequency. The largest systematic uncertainty stems from incomplete knowledge of the angular overlap of the counterpropagating beams in the Ca spectrometer, combined with a transverse drift velocity of the cold Ca ensemble. This leads to a residual first-order Doppler shift with a magnitude <15 Hz (except on 16 November 2000, where a large drift velocity led to a ~52 Hz uncertainty). Other significant uncertainties include our lack of knowledge or control of electronic offsets and baseline asymmetries (<12 Hz), wave front curvature (<10 Hz), and cold-atom collisional shifts (<10 Hz). Taking all known systematic uncertainties in quadrature gives a confidence level of ~26 Hz for the measured mean value as indicated by the dashed lines in Fig. 4. Again, for the Ca measurement we find that the stability is limited by the maser.

Figure 4 also shows the good agreement between our measurement and the most recent value measured with a harmonic frequency chain [26], which provides a degree of confidence in the reproducibility of the Ca standards. An additional measure of the Ca frequency can be made by using the present absolute measurement of Hg^+ and our earlier measurement of the 76 374 564 455 429(40) Hz gap between $f_{Hg}/2$ and the Ca standard [27]. This yields a value $f_{Ca} = 455\,986\,240\,494\,143(40)$ Hz in good agreement with the present absolute measurement of f_{Ca}.

Finally, these results also provide data on the relative time variability of atomic frequencies. Karshenboim has recently reviewed the implications of such comparisons and their contribution toward constraining the possible time variation of fundamental constants [28]. In this regard Hg^+ and Ca are two of the most interesting cases to study. Comparing our present measurement of f_{Ca} to measurements made by PTB in 1997 [26] gives $(\partial f_{Ca}/\partial t)/f_{Ca} = (+2 \pm 8) \times 10^{-14}\ \mathrm{yr}^{-1}$. Similarly, combining this result with our May 2000 measurement of f_{Hg} with respect to f_{Ca} [27] provides an initial baseline constraint on the time variation of f_{Hg} of $(\partial f_{Hg}/\partial t)/f_{Hg} = (-7 \pm 30) \times 10^{-14}\ \mathrm{yr}^{-1}$. Here we use the defined unit of time based on the frequency of the Cs hyperfine interval and assume that any time dependence is slow and dominantly linear over the relevant time scale. At our present level of precision we find no evidence of any relative time variation between these three frequency standards, two optical and one microwave.

The authors are most grateful to T. Parker for providing the crucial maser calibration and to A. Bartels of GigaOptics GmbH for his valuable assistance with the femtosecond laser. We are also indebted to R. Windeler of Lucent Technologies for providing the microstructure optical fiber. We further acknowledge many illuminating discussions with D. Wineland, J. Hall, S. Karshenboim, and F. Walls. This work was partially supported by the Office of Naval Research and through a cooperative research and development agreement with Timing Solutions, Inc., Boulder, CO.

Note added.—Since the submission of this work a new measurement of the Ca clock transition was conducted at PTB with a femtosecond system similar to the one described here [29]. Although less precise, this most recent PTB measurement is in agreement with the value we report.

*Present address: Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Strasse 1, 85748 Garching, Germany.

[1] R. Rafac *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 2462 (2000).
[2] J. E. Bernard *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 3228 (1999).
[3] H. Schnatz *et al.*, Phys. Rev. Lett. **76**, 18 (1996).
[4] C. W. Oates *et al.*, Opt. Lett. **25**, 1603 (2000).
[5] J. von Zanthier *et al.*, Opt. Lett. **25**, 1729 (2000).
[6] S. A. Diddams *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 5102 (2000).
[7] D. J. Jones *et al.*, Science **228**, 635 (2000).
[8] R. Holzwarth *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 2264 (2000).
[9] S. R. Jefferts *et al.* (to be published); S. R. Jefferts *et al.*, in *Proceedings of the IEEE International Frequency Control Symposium* (IEEE, Piscataway, NJ, 2000), pp. 714–717.
[10] C. W. Oates *et al.*, J. Phys. D **7**, 449 (1999).
[11] B. Young *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 3799 (1999).
[12] H. Dehmelt, Bull. Am. Phys. Soc. **20**, 60 (1975).
[13] J. C. Bergquist *et al.*, Phys. Rev. A **36**, 428 (1987).
[14] D. J. Wineland *et al.*, *The Hydrogen Atom,* edited by T. W. Hänsch (Springer, Berlin, Heidelberg, 1989), pp. 123–133.
[15] Th. Udem *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 3568 (1999).
[16] J. Reichert *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 3232 (2000).
[17] M. Niering *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 5496 (2000).
[18] A. I. Ferguson, J. N. Eckstein, and T. W. Hänsch, Appl. Phys. **18**, 257 (1979).
[19] J. Reichert *et al.*, Opt. Commun. **172**, 59 (1999).
[20] R. Ell *et al.*, Opt. Lett. **26**, 373 (2001).
[21] J. K. Ranka *et al.*, Opt. Lett. **25**, 25 (2000).
[22] W. J. Wadsworth *et al.*, Electron. Lett. **36**, 53 (2000).
[23] A. Bartels, T. Dekorsy, and H. Kurz, Opt. Lett. **24**, 996 (1999).
[24] Th. Udem *et al.*, Opt. Lett. **23**, 1387 (1998).
[25] W. M. Itano, J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. **105**, 829 (2000).
[26] F. Riehle *et al.*, in *Proceedings of the Joint European Frequency and Time Forum and the IEEE International Frequency Control Symposium* (IEEE, Piscataway, NJ, 1999), pp. 700–705.
[27] K. R. Vogel *et al.*, Opt. Lett. **26**, 102 (2001).
[28] S. Karshenboim, Can. J. Phys. **78**, 639 (2000).
[29] J. Stenger *et al.*, Phys. Rev. A **63**, 021802 (2001).

In der folgenden Veröffentlichung [2] ist die erste vollständige optische Atomuhr beschrieben (Abschnitt 10). Diese Arbeit wurde ebenfalls in der Gruppe von Leo Hollberg und Jim Bergquist am *National Institute of Standards and Technology* (NIST) in Boulder CO/USA durchgeführt. Weiterhin ist die direkte Messung von optischen Frequenzverhältnissen (Abschnitt 10.3) beschrieben.

An Optical Clock Based on a Single Trapped $^{199}Hg^+$ Ion

S. A. Diddams,[1]* Th. Udem,[1]† J. C. Bergquist,[1] E. A. Curtis,[1,2]
R. E. Drullinger,[1] L. Hollberg,[1] W. M. Itano,[1] W. D. Lee,[1]
C. W. Oates,[1] K. R. Vogel,[1] D. J. Wineland[1]

Microwave atomic clocks have been the de facto standards for precision time and frequency metrology over the past 50 years, finding widespread use in basic scientific studies, communications, and navigation. However, with its higher operating frequency, an atomic clock based on an optical transition can be much more stable. We demonstrate an all-optical atomic clock referenced to the 1.064-petahertz transition of a single trapped $^{199}Hg^+$ ion. A clockwork based on a mode-locked femtosecond laser provides output pulses at a 1-gigahertz rate that are phase-coherently locked to the optical frequency. By comparison to a laser-cooled calcium optical standard, an upper limit for the fractional frequency instability of 7×10^{-15} is measured in 1 second of averaging—a value substantially better than that of the world's best microwave atomic clocks.

Since the development of the first atomic clocks around 1950, it was recognized that the stability and accuracy of standards based on atomic transitions would benefit from choosing transition frequencies as high as possible. However, because it was not possible to count cycles of an oscillator at an arbitrarily high frequency in order to generate time, most time standards have been based on hyperfine transitions in atoms that occur at microwave frequencies where the period of one oscillation corresponds to roughly 0.1 to 1 ns. In fact, since 1967 the internationally accepted definition of the second has been based on the 9,192,631,770-Hz ground-state hyperfine transition in Cs, and Cs-based clocks are currently the world's most accurate time standards with a fractional frequency uncertainty of about 1×10^{-15} (*1–4*). Although the stability and accuracy of an optical clock based on a spectrally narrow atomic transition in the visible/ultraviolet (UV) region might be better, the frequency is about 10^{15} Hz, where the period of one oscillation is on the order of 1 fs. Until recently, it was not practical to count such high frequencies without loss of cycles, but the introduction of mode-locked femtosecond lasers has now made it possible to conveniently and accurately divide optical frequencies to countable microwave or radio frequencies (*5–10*). The all-optical atomic clock reported here is based on a single, laser-cooled, trapped $^{199}Hg^+$ ion and a femtosecond laser comb that provides the phase-coherent clockwork. Our optical clock demonstrates a fractional frequency instability of $\leq 7 \times 10^{-15}$ with 1 s of averaging—a value substantially better than that of the world's best microwave atomic standards—and promises accuracy that would be difficult to achieve with atomic clocks based on microwave transitions. This optical clock provides two distinct outputs: a comb of stable and accurate optical frequencies throughout the visible and near infrared, and a pulsed electronic signal at 1 GHz that is phase-coherent with the optical frequency comb. The quantum-limited instability of the Hg^+ ion optical clock is expected to be around $1 \times 10^{-15}\,\tau^{-1/2}$, where τ is the averaging time measured in seconds, with an ultimate fractional frequency uncertainty approaching 10^{-18} (*11*).

Ultrastable and accurate optical metrology tools can be expected to provide an even finer-grained view of the physical world, much as precision spectroscopy in the past 50 years has opened the door to an improved understanding of many fundamental aspects of atoms and molecules (*12*, *13*). Of particular interest will be the continued application of optical frequency standards in spectroscopy and the improved determination of the fine structure constant α and the Rydberg constant R_∞ (*14*). As measurement stability and accuracy improve, metrologists may find themselves in the unique position of being able to observe physical "constants" evolve in time (*15*). Indeed, laboratory tests on the possible divergence of clocks based on different atomic transitions already provide some of the most stringent constraints of the variation of α. Other experiments of fundamental importance for which precision clocks/oscillators are of value include searches for variations in the isotropy of space, a preferred reference frame, and Lorentz and charge-parity-time (CPT) symmetry violation (*16–20*). From a technological standpoint, there is little dispute that stable and accurate microwave atomic clocks have greatly improved navigation and communications. It is likely that optical clocks of the future will have a similarly important impact.

Atomic clock basics. All clocks consist of two major components: some device that produces periodic events or "clock ticks," and some means for counting, accumulating, and displaying each tick. For example, the swing of a pendulum provides the periodic events that are counted, accumulated, and displayed by means of a set of gears driving a pair of clock hands. Similarly, in a quartz watch, the mechanical vibrations of a small quartz crystal are electronically detected, accumulated, and displayed to generate time. Atomic clocks add a third component: the resonance of a well-isolated atomic transition, which is used to control the oscillator frequency. If the frequency of the oscillator is made to match the transition frequency (i.e., the oscillator is locked to the atomic transition frequency) between two nondegenerate and unperturbed atomic states, then the time generated can have improved long-term stability and accuracy. For an atomic clock based on a microwave transition, high-speed electronics count and accumulate a defined number of cycles of the reference oscillator to mark a second of time. The basic concepts are the same for an atomic clock based on an optical transition at a much higher frequency. In this case the oscillator is a laser locked to an optical transition, but no electronic device exists that can count the very fast optical oscillations. For this purpose, a specialized frequency divider (commonly called a frequency chain) is required. Until very recently, optical-to-microwave frequency chains have been complicated, large-scale devices, requiring significant resources for operation (*21*). However, as described below, a femtosecond laser–based clockwork greatly simplifies this problem of directly counting the optical frequency.

All other factors being equal, a higher transition frequency can produce a more stable frequency standard. This is the principal advantage of an optical atomic clock over a microwave clock because the operating frequency is ~100,000 times higher, providing a finer division of time and thus potentially higher precision. This is seen in the Allan deviation $\sigma_y(\tau)$ which provides a convenient measure of the fractional frequency instability of a clock as a function of the averaging time τ (*22*). For an oscillator locked to an atomic transition of frequency ν_0 and linewidth $\Delta\nu$,

$$\sigma_y(\tau) \approx \left\langle \frac{\Delta\nu_{rms}}{\nu_0} \right\rangle_\tau \approx \frac{\Delta\nu}{\pi\nu_0}\sqrt{\frac{T}{\tau N}} \qquad (1)$$

where $\Delta\nu_{rms}$ is the measured frequency fluctuation, N is the number of atoms, and T is the cycle time (i.e., the time required to make a determination of the line center) with $\tau > T$.

[1]Time and Frequency Division, National Institute of Standards and Technology, 325 Broadway, Boulder, CO 80305, USA. [2]Department of Physics, University of Colorado, Boulder, CO 80309, USA.

*To whom correspondence should be addressed. E-mail: sdiddams@boulder.nist.gov

†Present address: Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann Strasse 1, 85748, Garching, Germany.

This expression assumes that technical noise is reduced to a sufficiently small level such that the quantum-mechanical atomic projection noise is the dominant stability limit (*23*, *24*). In this limit $\sigma_y(\tau)$ decreases as the square root of the averaging time for all clocks, so a 10-fold decrease in the short-term instability leads to a 100-fold reduction in averaging time τ to reach a given stability and uncertainty. This point is particularly important if one ultimately hopes to reach a fractional frequency uncertainty of 10^{-18}, which is the anticipated level for optical clocks. In this case, $\sigma_y(\tau) \leq 1 \times 10^{-15}\,\tau^{-1/2}$ is clearly desirable to avoid inordinately long averaging times.

Principles of the optical clock. Fundamental ideas and technical developments principally in three areas have brought us to the point where we are now able to demonstrate an optical frequency standard representative of clocks of the future: (i) the idea (*25*, *26*) and demonstration of laser cooling of atoms (*27*, *28*), (ii) the frequency stabilization of lasers (*29–32*), and (iii) the concept (*33*) and demonstration (*5–10*) that femtosecond mode-locked lasers combined with nonlinear fibers can provide a simple, direct, and phase-coherent connection between radio frequencies and optical frequencies. Although most of these concepts have existed for some time, and preliminary demonstrations of optical clocks have even been made (*34–36*), only now have the techniques and tools advanced to the levels required for optical frequency standards to move beyond the benchmark results of the microwave standards. Trapped ions have been laser-cooled into the Lamb-Dicke regime to the zero-point energy limit of a trap potential (*37*), dramatically reducing the Doppler shifts and providing near-stationary, relatively unperturbed atomic references for extended observation times (*11*). Similarly, large numbers of neutral atoms that are suitable references for optical clocks are routinely laser-cooled and then trapped in magneto-optic traps (*38–43*). Stabilized lasers have now been demonstrated with linewidths less than 0.2 Hz (*32*, *44*) and with the center frequency reproducibly controlled for extended times at the levels of $|\Delta f/f| < 10^{-15}$ (*45*). And finally, a practical method for measuring optical frequencies based on femtosecond laser technology has been developed (*5–8*) and its measurement uncertainty tested to a few parts in 10^{16} (*9*).

These advances are exploited in our optical clock, which consists of a stable continuous wave (CW) laser oscillator that is frequency doubled and locked to a narrow UV transition of a single trapped and laser-cooled $^{199}Hg^+$ ion. Thus stabilized, the frequency of the laser light is coherently divided down to lower frequencies by means of a femtosecond mode-locked laser that ultimately produces an electronic output at a frequency of 1 GHz. A simplified representation of the coherent relation between the optical frequency standard and the microwave pulses is shown in Fig. 1. The envelope of the pulse train is made synchronous with the optical phase of the CW laser with, in our case, ~532,361 optical cycles between pulses (*46*). The pulses thus provide "clock ticks" that are coherently connected to the Hg^+ transition.

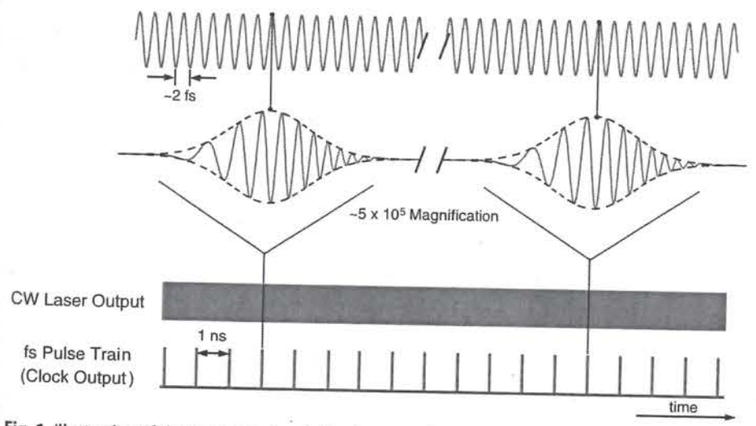


Fig. 1. Illustration of the time-domain relation between the atomically stabilized 532-THz CW laser field and the mode-locked femtosecond laser pulses. The two lines at the bottom show the near delta-function optical pulse train with a f_r = 1-GHz repetition rate and the CW laser output without the optical oscillation resolved. When the system is locked as an optically referenced femtosecond clockwork, the pulse repetition rate is phase-coherently related to the 532-THz CW field. This is indicated schematically in the upper portion of the figure where an expanded view of the lower two traces shows how the phase of the pulse envelope is related to the phase of the CW laser field. The net result is that the frequency of the pulse repetition rate is simply a rational fraction of the Hg^+ transition frequency.

The Hg^+ standard and optical clockwork. Figure 2 shows the optical clock in more detail, consisting of the optical frequency standard and the femtosecond laser–based optical clockwork. The $^{199}Hg^+$ optical frequency standard has been described in detail elsewhere (*32*, *45*), so we provide only the most relevant details. The $^2S_{1/2}$ (F = 0, M_F = 0) ↔ $^2D_{5/2}$ (F = 2, M_F = 0) electric-quadrupole transition at 282 nm provides the reference for the optical frequency standard. The natural linewidth of the S↔D resonance is about 2 Hz at 1.064 PHz, and recently a Fourier-transform–limited linewidth of only 6.7 Hz ($Q = 1.5 \times 10^{14}$) has been observed (*45*). The "local oscillator" for the standard is the output of a well-stabilized 532-THz (563 nm) dye laser (*32*, *44*) that is frequency doubled and locked to the center of the 1.064-PHz (282 nm) S ↔ D resonance. The short-term (1 to 10 s) fractional frequency instability of the probe laser is $\leq 5 \times 10^{-16}$. This short-term laser instability is low enough that information gathered from probing the ion transition can be integrated for about 10 s before it is used to steer the average laser frequency. The net result is a $\sigma_y(\tau) \leq 2 \times 10^{-15}$ for averaging times up to ~30 s, at which point $\sigma_y(\tau)$ begins to average down as $\tau^{-1/2}$.

The Hg^+ standard provides high accuracy and stability, but for distribution purposes and to realize a countable clock output, we must phase-coherently convert the optical signal to a lower frequency. The clockwork that divides the 1.064-PHz optical frequency to a countable microwave frequency f_r is based on a femtosecond laser and a novel microstructure optical fiber. The Ti:sapphire femtosecond ring laser emits a train of pulses (compressible to ~25-fs duration) at the nominal repetition rate of f_r = 1 GHz (*47*). The frequency-domain spectrum of the pulse train is a uniform comb of phase-coherent continuous waves separated by f_r. The frequency of the nth mode of this comb is $f_n = nf_r + f_o$ (*48*, *49*), where f_o is the frequency offset common to all modes that results from the difference between the group- and the phase-velocity inside the laser cavity. If the frequency comb of the laser covers an entire octave, then f_o can be measured by frequency doubling an infrared mode (n) and heterodyning it with an existing mode ($2n$) in the visible portion of the comb (*7*, *9*). The heterodyne signal yields the frequency difference $2(nf_r + f_o) - (2nf_r + f_o) = f_o$. Only recently, with the arrival of microstructure silica fibers (also called photonic crystal fibers), has the required octave-spanning spectrum been attained with high repetition rate, low-power femtosecond lasers (*50*, *51*). The unique dispersion properties of the microstructure fiber provide guidance in a single

spatial mode (~1.7-μm diameter) with zero group velocity dispersion near 800 nm (*50*). Because temporal spreading of the pulse is minimized, peak intensities in the range of hundreds of GW/cm^2 are maintained over a considerable propagation length, thus providing enhanced spectral broadening due to self-phase modulation. With ~200 mW (average power) coupled into a 15-cm piece of microstructure fiber, the total spectral width is broadened from ~15 to ~300 THz (spanning from ~520 nm to ~1170 nm).

In addition to f_o, a second heterodyne beat f_b is measured between an individual comb element $f_m = mf_r + f_o$ (m is an integer) and the 532-THz local oscillator of the Hg^+ standard. As shown in Fig. 2, two phase-locked loops (PLL) are used to control f_o and f_b, thereby fixing the clock output f_r. PLL-1 forces $f_o = \beta f_r$ by controlling the pump power of the femtosecond laser (*9*). Similarly, PLL-2 changes the cavity length of the femtosecond laser with a piezo-mounted mirror, such that $f_b = \alpha f_r$. The constants α and β are integer ratios implemented with frequency synthesizers that use $f_r/100$ as a reference. In this manner, the frequencies of both PLLs are phase-coherently linked to f_r such that all oscillators used in the clock are referenced to the 532-THz laser oscillator itself. When f_o and f_b are phase-locked, every element of the femtosecond comb, as well as their frequency separation f_r, is phase-coherent with the laser locked to the Hg^+ standard (*52*). With no other frequency reference as an input, we realize all aspects of a high-accuracy, high-stability optical atomic clock: a stable local oscillator (the laser) locked to a narrow atomic reference, and a pulsed microwave output that can be recorded with a counter.

High-stability output. With both PLLs closed, the ~1-GHz microwave output has the value of $f_r = f_{Hg}/(m \pm \alpha \pm \beta)$. If we choose the signs of beats f_o and f_r such that $\alpha = -\beta$, then f_r would be an exact subharmonic of f_{Hg}. The stability of the 532-THz laser (given above) should be transferred to each element of the femtosecond comb, in addition to f_r. We obtain f_r from the bandpass-filtered photocurrent generated with ~5 mW of the broadened comb light incident on a p-i-n photodiode. We have measured the instability of f_r by subtracting it from the output of a synthesizer that is referenced to a hydrogen maser for which $\sigma_y(1\ s) \approx 2.5 \times 10^{-13}$. The stability of this difference frequency is then analyzed with both a high-resolution counter and a dual-mixer time-measurement system (*53*). Both results are consistent with the resolutions of the respective measurements and the maser stability, demonstrating that the 1-s instability of f_r is at least as good as that of the hydrogen maser.

Before we can conclusively state that a microwave signal with stability matching that of the optical standard can be obtained from the optical clock, f_r needs to be compared to an oscillator with stability substantially better than that of the hydrogen maser. This could be either the microwave output of a second optical clock, or the high-stability output of a cryogenic microwave oscillator (*54*). Nonetheless, lacking these we can verify the exceptional stability of the comb in the optical domain and thereby infer the expected stability of f_r. This is done by comparing one element of the optical comb to the Ca optical standard that operates at 456 THz (657 nm). For this measurement the femtosecond comb is phase-locked to the $^{199}Hg^+$ standard as described above. For short averaging times, the femtosecond comb is effectively controlled by the stable Fabry-Perot cavity of the

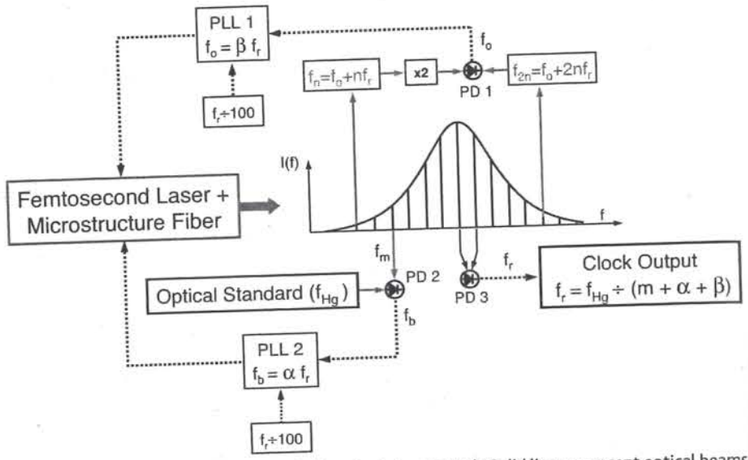


Fig. 2. Schematic of the self-referenced all-optical atomic clock. Solid lines represent optical beams, and dashed lines represent electrical paths. Photodiodes are designated by PD. The femtosecond laser, having repetition rate f_r, combined with the spectral broadening microstructure fiber produces an octave-spanning comb of frequencies in the visible/near infrared, represented by the array of vertical lines in the center of the figure. As shown above this comb, the low-frequency portion of the comb is frequency-doubled and heterodyned against the high-frequency portion in PD 1, yielding the offset frequency f_o that is common to all modes of the comb. Additionally, an individual element of the comb is heterodyned with the optical standard laser oscillator (f_{Hg} = 532 THz) that is locked to the clock transition frequency of a single $^{199}Hg^+$ ion. When detected on PD 2, this yields the beat frequency f_b. Two phase-locked loops (PLL) control f_o and f_b with the result that the spacing (f_r) of the frequency comb is phase-locked to the Hg^+ optical standard. Thus, f_r is the countable microwave output of the clock, which is readily detected by illuminating PD 3 with the broadband spectrum from the frequency comb. See the text for further details.

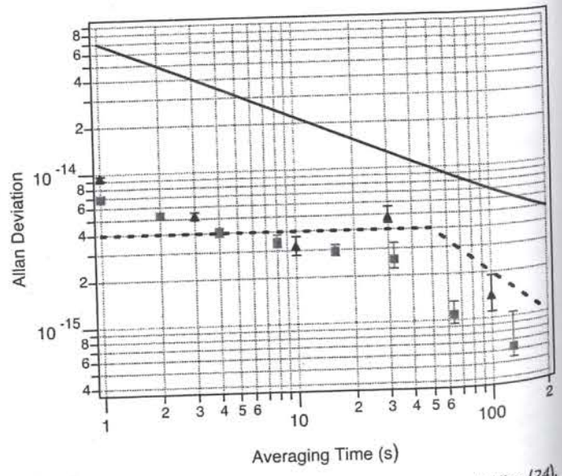


Fig. 3. Measured stability of the heterodyne signal between one element of the femtosecond comb and the Ca optical standard at 456-THz (657 nm). The femtosecond comb is phase-locked to the 532-THz laser oscillator. The black triangles are the stability data without cancellation of the additive fiber noise, which is represented by the dashed line. The red squares are the measured stability with active cancellation of the fiber noise and improved stability in the Ca standard. These results are about an order of magnitude better than the best stability reported with a Cs microwave standard, which is designated by the solid line (*24*).

532-THz laser oscillator, and for $\tau \geq 30$ s the control shifts to the $^{199}Hg^+$ ion. We detect, filter, and count the heterodyne beat signal between a single element of the comb at 456 THz and a frequency-stabilized diode laser locked to the $^1S_0 \leftrightarrow {}^3P_1$ intercombination transition of a laser-cooled ensemble of Ca atoms (*43*, *55*). The Bordé-Ramsey technique (*56*) is used for locking the diode laser to the 456-THz clock transition with resolutions ranging from 0.96 to 11.55 kHz, which are integer subharmonics of the recoil splitting. When the Ca standard is operated with 0.96-kHz resolution, the Allan deviation of the heterodyne signal between the Hg^+-stabilized comb and the Ca standard is shown as the triangles in Fig. 3. For $\tau < 10$ s, the Allan deviation averages down roughly as $9 \times 10^{-15}\ \tau^{-1/2}$, which is consistent with the expected instability of the Ca standard in its present configuration. We also observe a monotonic degradation in the 1-s instability of the heterodyne beat frequency as the stability of the Ca standard is degraded by using lower resolution Ramsey fringes. However, for $\tau > 10$ s, fluctuations introduced by the 180-m-long optical fiber that transmits the 532-THz light to the femtosecond system begin to pose a limitation. We have measured the fiber-induced noise by double-passing the light through the optical fiber, and the average fractional frequency fluctuations are indicated by the dashed line in Fig. 3. Furthermore, for $\tau > 30$ s, the instability of the Hg^+ standard is anticipated to contribute to the measurement at approximately the same level as the Ca standard. Nonetheless, the measured stability improves with averaging to $\sim 1.5 \times 10^{-15}$ at 100 s.

More recently, we have implemented active cancellation (*44*, *57*) of this fiber noise and have further improved the signal-to-noise ratio in the Ca spectroscopy. Data taken under these conditions reveal a fractional frequency instability of 7×10^{-15} at $\tau = 1$ s. These results are plotted as the square data points in Fig. 3. In this case, we cannot place great significance in the stability for $\tau > 1$ s for two reasons. First, the Allan deviation for averaging times $\tau > 1$ s is calculated from the juxtaposition of 1-s averages. Such data analysis is known to result in biases for certain noise processes (*58*). Second, although not generally the case, for this specific data the 532-THz laser oscillator was not locked to the $^{199}Hg^+$ ion, and therefore it was necessary to subtract out the smooth and predictable drift (~1 Hz/s) of the Fabry-Perot cavity to which this laser is stabilized. However, neither of these affect the measured 1-s Allan deviation, which provides an upper limit for the short-term (1-s) instability of 7×10^{-15} for the optical comb. Again, this 1-s instability is consistent with that of the Ca standard in its present configuration. Similar stability in the ~1-GHz clock output remains to be verified.

Conclusion. We have constructed an optical clock based on the 1.064-PHz (282 nm) electric-quadrupole transition in a laser-cooled, single $^{199}Hg^+$ ion. The optical frequency is phase-coherently divided down to provide a coherent microwave output through the use of a mode-locked femtosecond laser and a microstructured optical fiber. The short-term (1-s) instability of the optical output of the clock is measured against an independent optical standard to be $\leq 7 \times 10^{-15}$. This optically referenced femtosecond comb provides a countable output at 1 GHz, which should ultimately be usable as a higher accuracy reference for time scales, synthesis of frequencies from the radio frequency to the UV, comparison to other atomic standards, and tests of fundamental properties of nature.

References and Notes

1. P. Laurent *et al.*, in *Laser Spectroscopy XIV*, R. Blatt, J. Eschner, D. Leibfried, F. Schmidt-Kaler, Eds. (World Scientific, Singapore, 1999), pp. 41–50.
2. S. R. Jefferts, D. M. Meekhof, J. H. Shirley, M. Stepanovic, T. E. Parker, in *Proceedings of the 2000 IEEE International Frequency Control Symposium*, Kansas City, 7 to 9 June 2000 (IEEE, Piscataway, NJ, 2000), pp. 714–717.
3. S. Weyers, R. Schröder, A. Bauch, in *Proceedings of the 15th European Frequency and Time Forum*, Neuchâtel, Switzerland, 6 to 8 March 2001 (Fondation Suisse pour la Recherche en Microtechnique, Neuchâtel, Switzerland, in press).
4. S. Weyers, U. Hübner, R. Schröder, Chr. Tamm, A. Bauch, *Metrologia* **38**, 4 (2001).
5. Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3568 (1999).
6. J. Reichert *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3232 (2000).
7. D. J. Jones *et al.*, *Science* **288**, 635 (2000).
8. S. A. Diddams *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5102 (2000).
9. R. Holzwarth *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2264 (2000).
10. J. Stenger *et al.*, *Phys. Rev. A* **63**, 021802R (2001).
11. A. A. Madej, J. E. Bernard, in *Frequency Measurement and Control*, A. N. Luiten, Ed. (Springer-Verlag, Berlin, 2001), pp. 153–194.
12. See, for example, J. L. Hall, *Colloques Internationaux du C.N.R.S. No. 217—Méthodes de Spectroscopie Sans Largeur Doppler de Niveaux Excités de Systèmes Moléculaires* (CNRS, Paris, 1974), pp. 105–125.
13. T. W. Hänsch, A. L. Schawlow, G. W. Series, *Sci. Am.* **240**, 72 (March 1979).
14. See, for example, the contributions of F. Biraben *et al.* (pp. 17–41) and Th. Udem *et al.* (pp. 125–144), in *The Hydrogen Atom: Precision Physics of Simple Atomic Systems*, S. V. Karshenboim, F. S. Pavone, F. Bassani, M. Inguscio, T. W. Hänsch, Eds. (Springer-Verlag, Berlin, 2001).
15. S. V. Karshenboim, *Can. J. Phys.* **78**, 639 (2000).
16. A. Brillet, J. L. Hall, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 549 (1979).
17. M. P. Haugen, C. M. Will, *Phys. Today* **40**, 69 (1987).
18. D. Hils, J. L. Hall, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1697 (1990).
19. V. A. Kostelecky, Ed. *CPT and Lorentz Symmetry* (World Scientific, Singapore, 1999).
20. D. Bear, R. E. Stoner, R. L. Walsworth, V. A. Kostelecky, C. D. Lane, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 5038 (2000).
21. See, for example, C. O. Weiss, G. Kramer, B. Lipphardt, H. Schnatz, in *Frequency Measurement and Control*, A. N. Luiten, Ed. (Springer-Verlag, Berlin, 2001), pp. 215–247.
22. J. A. Barnes *et al.*, *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **20**, 204 (1971).
23. W. M. Itano *et al.*, *Phys. Rev. A* **47**, 3554 (1993).
24. G. Santarelli *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4619 (1999).
25. T. W. Hänsch, A. L. Schawlow, *Opt. Commun.* **13**, 68 (1975).
26. D. J. Wineland, H. G. Dehmelt, *Bull. Am. Phys. Soc.* **20**, 637 (1975).
27. D. J. Wineland, W. M. Itano, *Phys. Today* **40**, 34 (1987).
28. C. Cohen-Tannoudji, W. D. Phillips, *Phys. Today* **43**, 33 (1990).
29. J. L. Hall, *Science* **202**, 147 (1978).
30. Ch. Salomon, D. Hils, J. L Hall, *J. Opt. Soc. Am. B*, **8**, 1576 (1988).
31. S. N. Bagaev, Yu. D. Kolomnikov, V. N. Lisitsyn, V. P. Chebotayev, *IEEE J. Quant. Electr.* **4**, 868 (1968).
32. B. C. Young, F. C. Cruz, W. M. Itano, J. C. Bergquist, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3799 (1999).
33. J. N. Eckstein, A. I. Ferguson, T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **40**, 847 (1978).
34. V. P. Chebotayev *et al.*, *Appl. Phys. B* **29**, 63 (1982).
35. C. O. Weiss, G. Kramer, B. Lipphardt, E. Garcia, *IEEE J. Quant. Electr.* **24**, 1970 (1988).
36. J. Ye, J. L. Hall, S. A. Diddams, *Opt. Lett.* **25**, 1675 (2000).
37. F. Diedrich, J. C. Bergquist, W. M. Itano, D. J. Wineland, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 403 (1989).
38. T. Kurosu, F. Shimizu, *Jpn. J. Appl. Phys.* **29**, L2127 (1990).
39. Th. Kisters, K. Zeiske, F. Riehle, J. Helmcke, *Appl. Phys. B* **59**, 89 (1994).
40. F. Ruschewitz *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3173 (1998).
41. H. Katori, T. Ido, Y. Isoya, M. Kuwata-Gonokami, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1116 (1999).
42. K. R. Vogel, T. P. Dinneen, A. Gallagher, J. L Hall, in *Proceedings of the Joint Meeting of the European Frequency and Time Forum and the IEEE International Frequency Control Symposium*, Besançon, France, 13 to 16 April 1999 (IEEE, Piscataway, NJ, 1999), pp. 692–695.
43. C. W. Oates, F. Bondu, R. W. Fox, L. Hollberg, *J. Phys. D* **7**, 449 (1999).
44. B. C. Young *et al.*, in *Laser Spectroscopy XIV*, R. Blatt, J. Eschner, D. Leibfried, F. Schmidt-Kaler, Eds. (World Scientific, Singapore, 1999), pp. 61–70.
45. R. Rafac, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2462 (2000).
46. The coherent relation between the pulse envelope and the 532-THz CW laser oscillator is established by first phase-locking the rate f_o at which the pulse carrier advances with respect to the envelope from pulse to pulse. For illustrative purposes in Fig. 1, we have chosen this rate to be $f_o = f_r/10$, such that every 10th pulse is identical. The pulse envelope is then made phase coherent with the CW laser oscillator by detecting and controlling the heterodyne beat between the CW laser and the carrier field of the pulsed laser. The frequency domain description is given in the text.
47. A. Bartels, T. Dekorsy, H. Kurz, *Opt. Lett.* **24**, 996 (1999).
48. A. I. Ferguson, J. N. Eckstein, T. W. Hänsch, *Appl. Phys.* **18**, 257 (1979).
49. J. Reichert, R. Holzwarth, Th. Udem, T. W. Hänsch, *Opt. Commun.* **172**, 59 (1999).
50. J. K. Ranka, R. S. Windeler, A. J. Stentz, *Opt. Lett.* **25**, 25 (2000).
51. W. J. Wadsworth *et al.*, *Electron. Lett.* **36**, 53 (2000).
52. We count the phase-locked beats f_o and f_b with a high-resolution counter and verify that they fluctuate about their respective phase-locked values by less than 100 mHz in 1 s. This implies that the stability of the 532-THz laser oscillator is transferred to the femtosecond comb with a relative uncertainty $<2 \times 10^{-16}$ in 1 s.
53. S. Stein *et al.*, in *Proceedings of the 1982 IEEE International Frequency Control Symposium*, Philadelphia, PA, 2 to 4 June 1982 (IEEE, Piscataway, NJ, 1982), pp. 24–30.
54. S. Chang, A. G. Mann, A. N. Luiten, *Electron. Lett.* **36**, 480 (2000).
55. C. W. Oates, E. A. Curtis, L. Hollberg, *Opt. Lett.* **25**, 1603 (2000).
56. C. J. Bordé, *Phys. Lett. A* **140**, 10 (1989).
57. L-S. Ma, P. Jungner, J. Ye, J. L. Hall, *Opt. Lett.* **19**, 1777 (1994).
58. P. Lesage, *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **32**, 204 (1983).

59. We are grateful to A. Bartels (GigaOptics GmbH) for assistance with the femtosecond laser. We are also indebted to R. Windeler (Lucent Technologies) for providing the microstructure optical fiber. We acknowledge many illuminating discussions with J. Hall, S. Cundiff, J. Ye, S. Karshenboim, and F. Walls. Contribution of the National Institute of Standards and Technology—not subject to U.S. copyright.

29 March 2001; accepted 11 June 2001
Published online 12 July 2001;
10.1126/science.1061171
Include this information when citing this paper.

Auf den folgenden Seiten findet sich ein Übersichtsartikel [193] über optische Frequenzmessungen mit modengekoppelten Lasern, den ich für die Zeitschrift *Nature* verfasst habe.

Optical frequency metrology

Th. Udem, R. Holzwarth & T. W. Hänsch

Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Strasse 1, 85748 Garching, Germany (e-mail: thomas.udem@mpq.mpg.de)

Extremely narrow optical resonances in cold atoms or single trapped ions can be measured with high resolution. A laser locked to such a narrow optical resonance could serve as a highly stable oscillator for an all-optical atomic clock. However, until recently there was no reliable clockwork mechanism that could count optical frequencies of hundreds of terahertz. Techniques using femtosecond-laser frequency combs, developed within the past few years, have solved this problem. The ability to count optical oscillations of more than 10^{15} cycles per second facilitates high-precision optical spectroscopy, and has led to the construction of an all-optical atomic clock that is expected eventually to outperform today's state-of-the-art caesium clocks.

For more than a century, precise spectroscopy of atoms and molecules has been crucial in the discovery of the laws of quantum physics, in the determination of fundamental constants, and in the realization of standards for time, frequency and length. The advent of highly monochromatic, tunable lasers and techniques for nonlinear Doppler-free spectroscopy in the early 1970s had a marked impact on the field of precision spectroscopy[1,2]. Today, we are able to observe extremely narrow optical resonances in cold atoms or single trapped ions, with resolutions ranging from 10^{-13} to 10^{-15}, so that it might ultimately become possible to measure the line centre of such a resonance to a few parts in 10^{18}. Laboratory experiments searching for slow changes of fundamental constants would then reach unprecedented sensitivity. An all-optical atomic clock[3] based on such resonances could satisfy the growing demands of optical frequency metrology, fibre-optical telecommunication or navigation. However, until recently, the lack of an optical frequency counter to act as the clockwork mechanism prevented the construction of such a device.

Most spectroscopic experiments still rely on a measurement of optical wavelengths rather than frequencies. Unavoidable distortions in the geometric wavefront have so far made it impossible to exceed an accuracy of a few parts in 10^{10} with a laboratory-sized wavelength interferometer. To obtain highly accurate results it is necessary to measure the frequency of light rather than its wavelength. This is because time can be measured much more precisely than any other physical quantity, and counting the number of cycles in a second is as accurate as the clock that is used to determine the duration of the second. Because the value of the speed of light was defined in 1983 to be precisely 299,792,458 m s^{-1} in vacuum, the conversion between frequency and wavelength can be done without loss in accuracy. But the potential for high accuracy of frequency measurement has been restricted mainly to radio frequencies (up to 100 GHz) for many years, and it has been extremely difficult to extend it to the domain of rapid optical oscillations.

The early approach to this problem made use of harmonic frequency chains. Such chains start with a caesium atomic clock that operates, by definition of the SI second, at 9,192,631,770 Hz (equivalent to the ground-state hyperfine splitting of the caesium atom). This clock defines the frequency at the lower end of the chain from which higher harmonics in nonlinear diode mixers, crystals and other nonlinear devices are generated[4–8]. Phase-locked transfer oscillators are needed after each step, so that a chain traversing a vast region of the electromagnetic spectrum becomes highly complex, large and delicate, and requires substantial resources and considerable efforts to build and operate. This is the reason why only a few harmonic chains have ever been constructed. Another significant drawback of this approach is that the chains are designed to measure just one single optical frequency.

None of the problems associated with harmonic frequency chains has been solved since the first chain was constructed about 30 years ago[4]. In 1998 our laboratory introduced a revolutionary new approach that vastly simplifies optical frequency measurements[9,10]. We showed that the modes of a mode-locked femtosecond laser can be used as a precise ruler in frequency space, as they form a series of frequency spikes called a frequency comb[11,12]. This work has now culminated in a compact and reliable all-solid-state optical frequency synthesizer that requires only a single mode-locked laser, but is nevertheless capable of measuring essentially any optical frequency[13–17]. As a universal optical frequency-comb synthesizer it provides the missing link between optical and microwave frequencies. For the first time, small-scale spectroscopy laboratories can measure or synthesize any optical frequency with extreme precision. Femtosecond frequency-comb techniques have since started to gain widespread use, with precision measurements in Rb (ref. 13), Ca (refs 18,19), CH_4 (ref. 20), H (refs 15,16), Hg^+ (ref. 18), I_2 (refs 14,21–24), Sr^+ (refs 24,25), Yb^+ (refs 24,26) and In^+ (ref. 27).

The same femtosecond frequency-comb techniques are also opening new frontiers in ultrafast physics. Control of the phase evolution of few-cycle light pulses[9,17,28–30] provides a powerful new tool for the study of highly nonlinear phenomena that depend on the phase of the carrier wave relative to the pulse envelope, such as above-threshold ionization[31], strong-field photoemission or the generation of soft-X-ray attosecond pulses by high-order harmonic generation[32].

Femtosecond light pulses

More than 20 years ago, the frequency comb of a mode-locked picosecond dye laser was first used as a ruler in frequency space to measure the sodium 4*d* fine-structure splitting[33]. This route was pursued further in the 1980s (refs 34,35), but the attainable bandwidths were never large enough to make it a widespread technique for optical frequency metrology. Broadband femtosecond Ti:sapphire lasers have existed since the beginning of the

© 2002 Macmillan Magazines Ltd

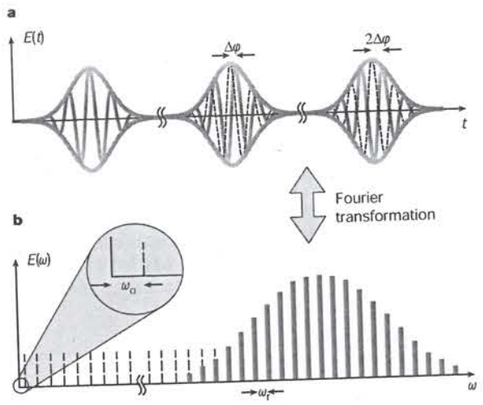


Figure 1 Consecutive pulses of the pulse train emitted by a mode-locked laser and the corresponding spectrum. **a**, As the carrier wave at ω_c moves with the phase velocity while the envelope moves with a different group velocity, the carrier wave (blue) shifts by $\Delta\varphi$ after each round trip with respect to the pulse envelope (red). **b**, This continuous shift results in a frequency offset $\omega_o = \Delta\varphi/T$, which prevents the comb from being comprised of exact harmonics of the pulse repetition frequency ω_r (refs 9,10,29,56,57).

1990s, and we have shown conclusively that such lasers can be crucial in this field[11,12].

To understand the mode structure of a femtosecond frequency comb and the techniques applied for its stabilization, consider the idealized case of a pulse circulating in a laser cavity with length L with a carrier frequency ω_c, as shown in Fig. 1. The output of this laser is a sequence of pulses that are essentially copies of the same pulse separated by the round-trip time $T = v_g/2L$, where v_g is the cavity's mean group velocity defined by the round-trip time and the cavity length. But the pulses are not quite identical. This is because the pulse envelope $A(t)$ propagates with v_g, whereas the carrier wave travels with its phase velocity. As a result, the carrier shifts with respect to the pulse envelope after each round trip by a phase angle $\Delta\varphi$ (Fig. 1). Unlike the envelope function, which provides us with a more rigorous definition of the pulse repetition time $T = \omega_r^{-1}$ by demanding $A(t) = A(t-T)$, the electric field is, in general, not expected to be periodic in time. If the periodicity of the envelope function is assumed, the electric field at a given place outside the laser resonator can be written as

$$E(t) = \mathrm{Re}(A(t)\exp(-i\omega_c t)) = \mathrm{Re}(\Sigma_n A_n \exp(-i(\omega_c + n\omega_r)t)) \qquad (1)$$

where A_n are Fourier components of $A(t)$. This equation shows that, under the assumption of a periodic pulse envelope, the resulting spectrum consists of a comb of laser modes that are separated by the pulse repetition frequency ω_r.

Because ω_c is not necessarily an integer multiple of ω_r, the modes are shifted from being exact harmonics of the pulse repetition frequency by an offset that can be chosen to obey $\omega_o < \omega_r$ simply by renumbering the modes

$$\omega_n = n\omega_r + \omega_o \qquad (2)$$

with a large ($\approx 10^5$–10^6) integer n. This equation maps two radio frequencies ω_r and ω_o onto the optical frequencies ω_n. Although ω_r is readily measurable, and usually lies between a few tens of megahertz and a few gigahertz depending on the length of the laser resonator, ω_o is not easy to access unless the frequency comb contains more than an optical octave. The intuitive picture given here can even cope with a frequency chirp, that is, a carrier frequency that varies across the pulse. In this case the envelope function becomes complex in value and the comb structure derived above remains valid provided the chirp is the same for all the pulses. Under this assumption, which is reasonable for a stationary pulse train, $A(t)$ remains a periodic function.

The main presumption of equation (2) is that the mode spacing is the same across the frequency comb and that it equals the pulse repetition rate. To be able to use this property for high-precision measurements, one has to make sure that the simple, intuitive picture given above is correct with a high degree of accuracy. Initially, the crucial question was whether pulse-to-pulse phase fluctuations or the large multiplication factor n might destroy the coherence[36] or prevent it from being a comb all together. We first verified that there is indeed a comb of continuous-wave laser frequencies by overlapping the beam from the femtosecond laser with a single-mode diode laser on a photo-detector to observe beat signals between the modes and the continuous-wave laser. To test the mode spacing we have used two laser diodes that were phase locked to distant modes of the comb and used simultaneously as an input for a so-called optical frequency interval divider (OFID)[37,38]. An OFID locks three laser frequencies f_1, f_2 and f_3 to obey the relation $2f_3 = f_1 + f_2$ in a phase-coherent manner. This could be used, for example, to produce an output (f_3) at the precise midpoint of the frequency interval given by two input laser diodes (f_1 and f_2). If the modes are distributed equally on the frequency axis, and if there is an odd number of modes between the two OFID inputs, then one would expect the OFID output to coincide with another mode of the comb. After averaging all our data we concluded that there was no deviation from the perfect regular grid larger than 3 parts in 10^{17} (ref. 11). This experiment was key to the development that followed.

Improving the versatility of frequency measurements

At this point, the frequency comb generated by our mode-locked Ti:sapphire laser could bridge roughly 45 THz. The fourth harmonic of a methane-stabilized He–Ne laser that operated with high accuracy was used as an absolute frequency reference for the femtosecond comb, which allowed us to access new targets. These included the transition frequency of the caesium D_1 line[12], which is needed for a new determination of the fine-structure constant α (refs 39,40). And a sharp resonance in a single trapped indium ion[27] may eventually serve as a precise reference for an optical clock[41]. With the previous measurement schemes it would have been very difficult to measure the frequency gap from the fourth harmonic of the He–Ne reference to these target frequencies, but with the frequency comb this was a straightforward task.

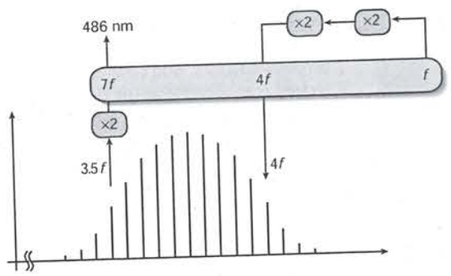


Figure 2 The first direct radio frequency–optical frequency conversion using a femtosecond laser. As explained in the text, the optical frequency interval divider (blue box) fixes the frequency ratios to precisely $7f{:}4f{:}f$. With the frequency quadrupling stage, which was already used to measure other optical transition frequencies relative to a He–Ne reference, the frequency comb fixes the interval $4f - 3.5f = 0.5f$ and therefore f and any other frequency in the set-up.

Direct radio frequency–optical frequency link

Combs used as rulers in frequency space can measure large frequency gaps between a precisely known optical reference and an unknown frequency. But to reference the comb directly to a precisely known radio frequency an absolute optical frequency could be mapped onto a frequency difference between harmonics or sub-harmonics of the same laser. In the simplest case this would be the interval between an optical frequency f and its own second harmonic $2f$ (ref. 14). The measurement of the large frequency gap $f = 2f - f$ by a chain of OFIDs or a femtosecond laser has been proposed in refs 37 and 9, respectively. But other intervals can be used as well, as illustrated in Fig. 2, which describes the first experiment of this kind[15,42]. The experimental set-up still uses the somewhat awkward quadrupling stage to create the fourth harmonic $4f$ of the methane-stabilized He–Ne laser. The frequency comb is then used to cross over from $4f$ to ~$3.5f$, and after doubling, a frequency in the vicinity of $7f$ is obtained. The loop is then closed by using an OFID stage that fixes f such that frequency ratios $7f{:}4f{:}f$ are precisely fulfilled ($2 \times 4f = 7f + f$). The easiest way to contemplate this is to note that the frequency comb locks $4f - 3.5f = 0.5f$ (44 THz) to an integer multiple of the caesium clock that controlled the mode spacing. By controlling $0.5f$ with a caesium atomic clock, we also know the frequency f and every other frequency in the set-up, including every mode of the comb, with the precision of the caesium clock. Thus the stabilization on methane is replaced by locking all frequencies directly to the caesium clock.

We have used the 486-nm output of this set-up (with some modifications not shown) to measure the absolute frequency of the hydrogen $1S$-$2S$ two-photon resonance, which occurs at the fourth harmonic of this wavelength. The mode spacing was controlled by a caesium atomic fountain clock constructed by André Clairon and co-workers at the Laboratoire Primaire du Temps et des Fréquences (LPTF, France). The outcome was one of the most precise measurements of an optical frequency so far recorded[16], providing a transition frequency value as accurate as 1.9 parts in 10^{14}, limited by the reproducibility of the hydrogen spectrometer. Together with other transition frequencies in hydrogen, our value for the $1S$-$2S$ resonance has resulted in much improved values for the Rydberg constant, which is now one of the most accurately known fundamental constants, and the Lamb shift of the $1S$ state, which now provides one of the most stringent tests of quantum electrodynamics[7].

Increasing the bandwidth of frequency combs

The first absolute measurement of an optical frequency with a femtosecond frequency comb has inspired further rapid advances in the art of frequency metrology. Spectral broadening resulting from self-phase modulation via the intensity-dependent index of refraction in an optical fibre was used to increase the widths of the frequency combs. Even though the dispersion inside the fibre changes the shape of the pulses significantly, it does so in the same way for all pulses. As the above arguments that led to the regular-spaced frequency comb assumed only the periodicity of the envelope function, they should also apply to whatever comes out of the fibre. With newly invented micro-structured photonic crystal fibres (PCF)[43–45], this spectral broadening is so pronounced that the resulting frequency comb can span more than an optical octave, even with the moderate output power from the laser oscillator. In collaboration with Phillip Russell, Jonathan Knight and William Wadsworth from the University of Bath, we have used such fibres to construct a much more compact version of the set-up (Fig. 3).

Alternative approaches to produce large-bandwidth frequency combs have also emerged. Short fibre tapers are now used for this purpose[46]; these are manufactured from standard telecom fibres by drawing them in a flame until their diameter shrinks to about 2 μm.

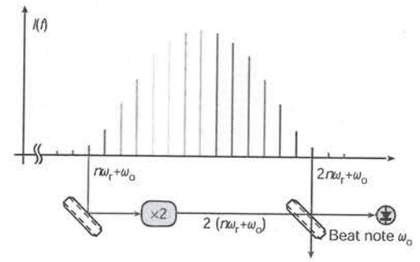


Figure 3 The principle of the single-laser optical synthesizer. A mode with the mode number n at the red wing of the comb and whose frequency is given according to equation (2) by $\omega_n = n\omega_r + \omega_o$ is frequency doubled in a nonlinear crystal. If the frequency comb covers a full optical octave, a mode with the number $2n$ should oscillate simultaneously at $\omega_{2n} = 2n\omega_r + \omega_o$. The beat note between the frequency-doubled mode and the mode at $2n$ yields the offset frequency $2(n\omega_r + \omega_o) - (2n\omega_r + \omega_o) = \omega_o$.

Just like in a PCF, the small core, which consists of the whole fibre, enhances the nonlinear interaction while the evanescent wave around the taper causes a smaller group-velocity dispersion. Another method uses the high intensity inside the laser cavity to efficiently broaden the spectrum[47].

The compact optical frequency synthesizer

With an octave-spanning frequency comb (Fig. 3), we can directly access the interval between an optical frequency f and its second harmonic $2f$, where f could be the 1064-nm line of a Nd:YAG laser. This greatly simplifies the experimental set-up shown in Fig. 2 and has first been reported by John Hall's group at the Joint Institute for Laboratory Astrophysics (JILA) in Boulder, Colorado, and by our group at the Max Planck Institute for Quantum Optics (MPQ) in Garching, near Munich[13–15,17]. The JILA group has also shown that

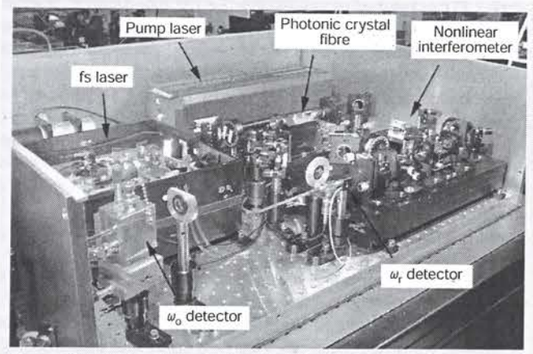


Figure 4 An optical synthesizer in a box. The device consists of one femtosecond laser powered by a green pump laser (Verdi model, Coherent), a photonic crystal fibre and a nonlinear interferometer (as illustrated in Fig. 3). It occupies only 1 m^2 on an optical bench with the potential for further miniaturization. The synthesizer is capable of linking a 10-MHz radio-frequency reference phase coherently in one step with the optical region, and provides a reference-frequency grid across much of the visible and infrared spectrum with comb lines that are separated by 625 MHz. This makes it an ideal laboratory tool for precision spectroscopy. The optical frequency synthesizer is now commercially available from Menlo Systems GmbH (www.menlosystems.com), co-founded by two of the authors (R.H. and T.W.H.).

© 2002 Macmillan Magazines Ltd

© 2002 Macmillan Magazines Ltd

the additional Nd:YAG laser was not necessary if the red part of the frequency comb itself is to be frequency doubled.

With this set-up, the two radio frequencies that enter equation (1), ω_r and ω_o, are determined. The pulse repetition rate ω_r is simply measured with a photo-detector anywhere in the beam and ω_o, which is smaller in value than ω_r, is derived as explained in Fig. 3. To obtain a stable comb for absolute optical frequency measurements, it is advantageous to phase lock both ω_r and ω_o to a precise radio-frequency reference such as a caesium atomic clock or Global Positioning System-controlled quartz oscillator. The mode number n may be determined by a coarse measurement of the mode in question, for example with a wavemeter. As soon as n, ω_r and ω_o are known, every frequency contained in the comb is known with roughly the same precision. Figure 4 shows the actual apparatus used in our laboratory.

To check the integrity of the broad frequency comb and evaluate the overall performance of the optical synthesizer we have compared it with the previous $7f$:$4f$:f variant. To compare the two we use its output at $4f$ (354 THz) and a mode at 354 THz of the f:$2f$ optical synthesizer. After averaging all data we obtained a mean deviation from the expected beat frequency of 71 ± 179 mHz at 353 THz. This corresponds to a relative uncertainty of 5.1×10^{-16} (ref. 17). Similar precise testings of octave-spanning combs have been performed recently by Scott Diddams and co-workers at the National Institute for Standards and Technology (NIST) in Boulder, Colorado[48].

The all-optical clock

An optical clock consists, like any other clock, of an oscillator that defines the ticks in time and a counter that keeps track of these cycles. In a caesium clock, for example, the oscillations are those of the electron precessing around the spin of the nucleus. An electronic counter advances the second hand every time the counter has completed 9,192,631,770 oscillations. This number was chosen when the SI second was redefined for the last time in 1967. If we consider the history of timekeeping and compare clocks as different as sun dials, pendulum clocks and quartz clocks it is obvious that they get more accurate as the oscillation frequency increases[3]. This is simply because a higher oscillation frequency divides time into smaller pieces.

The caesium 9.2-GHz oscillator has been used since the end of the 1950s. But operating at much higher frequencies has now become possible after tremendous advances in laser spectroscopy in the 1970s (refs 1,2) that resulted in trapped ions[49] and trapped atoms[50] standards in the 1980s. Systematic uncertainties can be reduced to 10^{-18} for some of these standards[41]. When it became possible to count these optical oscillations with harmonic frequency chains in the late 1960s (ref. 4), physicists started to think seriously of running an optical clock. However, working with these counters was so tedious that most of the chains never reached the stage where they could operate continuously, even for minutes. So these chains were used only to calibrate some chosen frequencies, such as iodine- or methane-stabilized He–Ne lasers, which could then be reproduced in other laboratories that could not afford the huge efforts and resources of setting up a harmonic frequency chain. The calibrated lasers were used mostly as wavelength references in interferometers for the realization of the metre, and in some scientific experiments as frequency references.

With the development of the femtosecond frequency synthesizer, a reliable, running optical clock has now come into reach. Owing to its simplicity it can already run for hours and may eventually become a genuine turn-key system.

Currently, the set-up that probably comes closest to an 'optical clock' is operated at NIST[3] and uses a transition at 1,064 THz in a trapped single mercury ion. The measurement of the stability of this clock is limited essentially by comparison with the NIST hydrogen maser ensemble, which is one of the most stable radio frequencies available. Other national standard institutions are making progress in the same direction, including work on Yb^+ by Physikalisch-Technische Bundesanstalt[26] and on Sr^+ by the National Research Council of Canada[25] and the National Physics Laboratory (Teddington, UK)[24]. At MPQ, Herbert Walther's research group are preparing a clock based on a trapped indium ion[41].

We believe that the development of accurate optical frequency synthesis marks only the beginning of an exciting new period of ultra-precise physics, and that optical clocks will open a new window to nature where we can expect new discoveries and phenomena. One example is the quest for natural constants that vary spatially or that would drift slowly in time as the Universe evolves, as discussed by some theoreticians[51,52]. Until now, experimental laboratory tests have not been able to detect such behaviour[53], but recent experiments are believed to provide evidence for a cosmological evolution of the fine-structure constant[54]. Additionally, these clocks may help to refine general relativity, which still poses one of the main problems in physics, as it refuses proper quantization. The precision of the best test is 'only' as good as 7 parts in 10^5 (ref. 55), which might be the reason why small corrections attributable to a quantized theory have not yet been discovered. Finally, industrial applications such as satellite navigation, communication and network synchronization could benefit greatly from this technology. □

1. Bloembergen, N. (ed.) *Non-linear Spectroscopy* (Proc. Int. School Phys. "Enrico Fermi") (North Holland, Amsterdam, 1977).
2. Hänsch, T. W. & Inguscio, M. (eds) *Frontiers in Laser Spectroscopy* (Proc. Int. School Phys. "Enrico Fermi") (North Holland, Amsterdam, 1994).
3. Diddams, S. A. *et al.* An optical clock based on a single trapped ^{199}Hg ion. *Science* **293**, 825–828 (2001).
4. Evenson, K. M., Wells, J. S., Petersen, F. R., Danielson, B. L. & Day, G. W. Accurate frequencies of molecular transitions used in laser stabilization: the 3.39-μm transition in CH_4 and the 9.33- and 10.18-μm transitions in CO_2. *Appl. Phys. Lett.* **22**, 192–195 (1973).
5. Schnatz, H., Lipphardt, B., Helmcke, J., Riehle, F. & Zinner, G. First phase-coherent frequency measurement of visible radiation. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 18–21 (1996).
6. Udem, Th. *et al.* Phase-coherent measurement of the hydrogen 1*S*-2*S* transition frequency with an optical frequency interval divider chain. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2646–2649 (1997).
7. Schwob, C. *et al.* Optical frequency measurement of the 2*S*-12*D* transitions in hydrogen and deuterium: Rydberg constant and Lamb shift determinations. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4960–4963 (1999); erratum *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4193 (2001).
8. Bernard, J. E. *et al.* Cs-based frequency measurement of a single trapped ion transition in the visible region of the spectrum. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3228–3231 (1999).
9. Udem, Th. *Phasenkohärente optische Frequenzmessungen am Wasserstoffatom.* Thesis, Ludwig-Maximilians Univ. (1997).
10. Reichert, J., Holzwarth, R., Udem, Th. & Hänsch, T. W. Measuring the frequency of light with mode-locked lasers. *Opt. Commun.* **172**, 59–68 (1999).
11. Udem, Th., Reichert, J., Holzwarth, R. & Hänsch, T. W. Accurate measurement of large optical frequency differences with a mode-locked laser. *Opt. Lett.* **24**, 881–883 (1999).
12. Udem, Th., Reichert, J., Holzwarth, R. & Hänsch, T.W. Absolute optical frequency measurement of the cesium *D*1 line with a mode-locked laser. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3568–3571 (1999).
13. Jones, D. J. *et al.* Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis. *Science* **288**, 635–639 (2000).
14. Diddams, S. A. *et al.* Direct link between microwave and optical frequencies with a 300 THz femtosecond laser comb. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5102–5105 (2000).
15. Reichert, J. *et al.* Phase coherent vacuum-ultraviolet to radio frequency comparison with a mode-locked laser. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3232–3235 (2000).
16. Niering, M. *et al.* Measurement of the hydrogen 1*S*-2*S* transition frequency by phase coherent comparison with a microwave cesium fountain clock. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5496–5499 (2000).
17. Holzwarth, R. *et al.* Optical frequency synthesizer for precision spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2264–2267 (2000).
18. Udem, Th. *et al.* Absolute frequency measurements of the Hg^+ and Ca optical clock transitions with a femtosecond laser. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4996–4999 (2001).
19. Stenger, J. *et al.* Phase-coherent frequency measurement of the Ca intercombination line at 657 nm with a Kerr-lens mode-locked femtosecond laser. *Phys Rev. A* **63**, 021802-1–021802-4 (2001).
20. Pokasov, P. V. *et al.* in *Proc. Sixth Symp. Freq. Standards Metrol.* (ed. Gill, P.) 510–512 (World Scientific, Singapore, 2002).
21. Nevsky, A. Yu. *et al.* Frequency comparison and absolute frequency measurement of I_2 stabilized lasers at 532 nm. *Opt. Comm.* **263**, 192–272 (2001).
22. Holzwarth, R. *et al.* Absolute frequency measurement of iodine lines with a femtosecond optical synthesizer. *Appl. Phys. B* **73**, 269 (2001).
23. Ye, J. *et al.* Accuracy comparison of absolute optical frequency measurement between harmonic-generation synthesis and a frequency division femtosecond-comb. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3797–3800 (2000).
24. Lea, S. N. *et al.* in *Proc. Sixth Symp. Freq. Standards Metrol.* (ed. Gill, P.) 144–151 (World Scientific, Singapore, 2002).
25. Dubé, P., Marmet, L., Bernard, J. E., Siemsen, K. J. & Madej, A. A. in *Proc. Sixth Symp. Freq. Standards Metrol.* (ed. Gill, P.) 489–491 (World Scientific, Singapore, 2002).
26. Stenger, J., Tamm, Ch., Haverkamp, N., Weyers, S. & Telle, H. R. Absolute frequency measurement of the 435.5 nm $^{171}Yb^+$-clock transition with a Kerr-lens mode-locked femtosecond laser. *Opt. Lett.* **26**, 1589–1591 (2001).
27. von Zanthier, J. *et al.* Absolute frequency measurement of the In^+ clock transition with a mode-locked laser. *Opt. Lett.* **25**, 1729–1731 (2000).
28. Apolonski, A. *et al.* Controlling the phase evolution of few-cycle light pulses. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 740–743 (2000).

© 2002 Macmillan Magazines Ltd

29. Telle, H. R., Steinmeyer, G., Dunlop, A. E., Sutter, D. H. & Keller, U. Carrier-envelope offset phase control: a novel concept for absolute optical frequency measurement and ultrashort pulse generation. *Appl. Phys. B* **69**, 327–332 (1999).
30. Xu, L. *et al.* Route to phase control of ultrashort light pulses. *Opt. Lett.* **21**, 2008–2010 (1996).
31. Paulus, G. G. *et al.* Evidence of 'absolute-phase' phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses. *Nature* **414**, 182–184 (2001).
32. Drescher M. *et al.* X-ray pulses approaching the attosecond frontier. *Science* **291**, 1923–1927 (2001).
33. Eckstein, J. N., Ferguson, A. I. & Hänsch, T. W. High-resolution two-photon spectroscopy with picosecond light. *Phys. Rev. Lett.* **40**, 847–850 (1978).
34. Chebotayev, V. P. & Ulybin, V. A. Synchronization of atomic quantum transitions by light pulses. *Appl. Phys.* **50**, 1–5 (1990).
35. Kane, D. M., Bramwell, S. R. & Ferguson, A. I. FM dye lasers. *Appl. Phys. B* **39**, 171–178 (1986).
36. Telle, H. R. in *Frequency Control of Semiconductor Lasers* (ed. Ohtsu, M.) 137–167 (Wiley, New York, 1996).
37. Hänsch, T.W. in *The Hydrogen Atom* (eds Bassani, G. F., Inguscio, M. & Hänsch, T. W.) 93–102 (Springer, Berlin, 1989).
38. Telle, H. R., Meschede, D. & Hänsch, T. W. Realization of a new concept for visible frequency division: phase-locking of harmonic and sum frequencies. *Opt. Lett.* **15**, 532–534 (1990).
39. Wicht, A., Hensley, J. M., Sarajlic, E. & Chu, S. A preliminary measurement of h/M_{Cs} with atom interferometry, in *Proc. Sixth Symp. Freq. Standards Metrol.* (ed. Gill, P.) (World Scientific, Singapore, in the press).
40. Hensley, J. M. *A Precision Measurement of the Fine Strucure Constant.* Thesis, Stanford Univ. (2001).
41. Becker, Th., von Zanthier, J. & Nevsky, A. Yu. High-resolution spectroscopy of a single In^+ ion: progress towards an optical frequency standard. *Phys. Rev. A* **63**, 051802-1–051802-4 (2001).
42. Udem, Th., Holzwarth, R. & Hänsch, T. W. in *Proceeding of Joint Meeting of the 13th European Frequency and Time Forum and 1999 IEEE International Frequency Control Symposium, Besancon, France, 13-16 April 1999* 620–625 (IEEE Publications, 1999)
43. Knight, J. C., Birks, T. A., Russell, P. St. J. & Atkin, D. M. Endlessly single-mode photonic crystal fibre. *Opt. Lett.* **22**, 961–964 (1996).
44. Wadsworth, W. J. *et al.* Soliton effects in photonic crystal fibres at 850 nm. *Electron. Lett.* **36**, 53 (2000).
45. Ranka, J. K., Windeler, R. S. & Stentz, A. J. Visible continuum generation in air-silica microstructure optical fibres with anomalous dispersion at 800 nm. *Opt. Lett.* **25**, 25–28 (2000).
46. Birks, T. A., Wadsworth, W. J. & Russell, P. St. J. Supercontinuum generation in tapered fibres. *Opt. Lett.* **25**, 1415–1417 (2000).
47. Ell, R. *et al.* Generation of 5-fs pulses and octave-spanning spectra directly from a Tisapphire laser. *Opt. Lett.* **26**, 373–375 (2001).
48. Diddams, S. A., Hollberg, L., Ma, L. S. & Robertson, L. A femtosecond-laser-based optical clockwork with instability 6.3×10^{-16} in 1 s. *Opt. Lett.* **27**, 58 (2002).
49. Madej, A. A. & Bernard, J. E. in *Frequency Measurement and Control* (ed. Luiten, A. N.) 153–194 (Springer, Berlin, 2001).
50. Riehle, F. & Helmcke, J. in *Frequency Measurement and Control* (ed. Luiten, A. N.) 95–129 (Springer, Berlin, 2001).
51. Dirac, P. A. M. The cosmological constants. *Nature* **139**, 323 (1937).
52. Karshenboim, S. G. Some possibilities for laboratory searches for variations of fundamental constants. *Can. J. Phys.* **78**, 639–678 (2000).
53. Salomon, Ch. *et al.* in *Atomic Physics 17: XVII Int. Conf. Atom. Phys.: ICAP 2000* (eds Arimondo, E., De Natale, P. & Inguscio, M.) 23–40 (AIP Conf. Proc. Vol. 551) (American Institute of Physics, 2001).
54. Webb, J. K. *et al.* Further evidence for cosmological evolution of the fine structure constant. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 091301-1–091301-4 (2001).
55. Vessot, R. F. C. *et al.* Test of relativistic gravitation with a space-borne hydrogen maser. *Phys. Rev. Lett.* **45**, 2081–2084 (1980).
56. Ferguson, A. I., Eckstein, J. N. & Hänsch, T. W. Polarization spectroscopy with ultrashort light pulses. *Appl. Phys.* **18**, 257 (1979).
57. Wineland, D. J., Bergquist, J. C., Itano, W. M. Diedrich, F. & Weimer, C. S. in *The Hydrogen Atom* (eds Bassani, G. F., Inguscio, M. & Hänsch, T. W.) 123–133 (Springer, Berlin, 1989.)

Acknowledgements

We thank our collaborators P. Lemonde, G. Santarelli, M. Abgrall, P. Laurent and A. Clairon (BNM-LPTF, Paris), C. Salomon (ENS, Paris), J. Knight, W. Wadsworth, T. Birks and P. St J. Russell (University of Bath), and J. Hall, S. Diddams, J. Ye and L. Hollberg (NIST, Boulder, Colorado) for the excellent teamwork and stimulating discussions.

© 2002 Macmillan Magazines Ltd

Literaturverzeichnis

[1] M. Niering, R. Holzwarth, J. Reichert, P. Pokasov, Th. Udem, M. Weitz, T. W. Hänsch, P. Lemonde, G. Santarelli, M. Abgrall, P. Laurent, C. Salomon, und A. Clairon, Phys. Rev. Lett. 84, 5496 (2000).

[2] S. A. Diddams, Th. Udem, J. C. Bergquist, E. A. Curtis, R. E. Drullinger, L. Hollberg, W. M. Itano, W. D. Lee, C. W. Oates, K. R. Vogel und D. J. Wineland, Science 293, 825 (2001).

[3] Th. Udem, S. A. Diddams, K. R. Vogel, C. W. Oates, E. A. Curtis, W. D. Lee, W. M. Itano, R. E. Drullinger, J. C. Bergquist, und L. Hollberg, Phys. Rev. Lett. 86, 4996 (2001).

[4] L. Hollberg, C. W. Oates, E. A. Curtis, E. N. Ivanov, S. A. Diddams, Th. Udem, H. G. Robinson, J. C. Bergquist, R. J. Rafac, W. M. Itano, R. E. Drullinger, und D. J. Wineland, IEEE J. Quant. Electr. 37, 1502 (2001).

[5] H. Dehmelt, IEEE Trans. Instrum. Meas. 31, 83 (1982).

[6] Th. Becker, J. v. Zanthier, A. Yu. Nevsky, Ch. Schwedes, M. N. Skvortsov, H. Walther, und E. Peik, Phys. Rev. A 63, 051802(R) (2001).

[7] P. A. M. Dirac, Nature (London) 139, 323 (1937).

[8] S. G. Karshenboim, Can. J. Phys. 78, 639 (2000).

[9] X. Calmet, und H. Fritzsch, hep-ph/0112110v4 (2002), hep-ph/0204258v2 (2002) und H. Fritzsch, hep-ph/0201198v1 (2002).

[10] J. K. Webb, M. T. Murphy, V. V. Flambaum, V. A. Dzuba, J. D. Barrow, C. W. Churchill, J. X. Prochaska, A. M. Wolfe, Phys. Rev. Lett. 87, 091301 (2001).

[11] Ch. Salomon, Y. Sortais, S. Bize, M. Abgrall, S. Zhang, C. Nicolas, C. Mandache, P. Lemonde, P. Laurent, G. Santarelli, A. Clairon, N. Dimarcq, P. Petit, A. Mann, A. Luiten, und S. Chang, *Atomic Physics 17*, E. Arimondo, P. deNatale, und M. Inguscio (Hrsg.) (AIP Conference Proceedings vol 551 2001) pp. 23. In diesem Artikel, wie in Referenz [3], wird von einer experimentellen Obergrenze der Variation zwischen verschiedenen atomaren Übergangsfrequenzen berichtet.

[12] J. D. Prestage, R. L. Tjoelker, und L. Maleki, Phys. Rev. Lett. 74, 3511 (1995).

[13] A. I. Shlyakhter, Nature (London) 264, 340 (1976); eine neuere Analyse setzt eine wesentlich größere obere Schranke für die Variation von α aus den Oklo Daten: P. Sisterna, und H. Vucetich, Phys. Rev. D 41, 1034 (1990).

[14] R. Teets, J. Eckstein, und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 38, 760 (1977).

[15] Ye. V. Baklanov, und V. P. Chebotayev, Appl. Phys. 12, 97 (1977).

[16] J. Eckstein, A. I. Ferguson, und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 40, 847 (1978).

[17] V. P. Chebotayev, und V. A. Ulbyn, Appl. Phys. B 50, 1 (1990).

[18] A. Apolonski, A. Poppe, G. Tempea, Ch. Spielmann, Th. Udem, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, und F. Krausz, Phys. Rev. Lett. 85, 740 (2000).

[19] A. Poppe, R. Holzwarth, A. Apolonski, G. Tempea, Ch. Spielmann, T. W. Hänsch, und F. Krausz, Appl. Phys. B 77, 977 (2001).

[20] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, und M. Kourogi, Proceedings of the 1999 Joint Meeting of the *European Frequency and Time Forum and the IEEE International Frequency Control Symposium*, Besançon Frankreich 13.-16. April 1999, pp. 620.

[21] J. Reichert, R. Holzwarth, Th. Udem, und T. W. Hänsch, Opt. Commun. 172, 59 (1999).

[22] J. Reichert, M. Niering, R. Holzwarth, M. Weitz, Th. Udem, und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 84, 3232 (2000).

[23] S. A. Diddams, D. J. Jones, J. Ye, S. T. Cundiff, J. L. Hall, J. K. Ranka, R. S. Windeler, R. Holzwarth, Th. Udem, und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 84, 5102 (2000).

[24] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, und S. T. Cundiff, Science 288, 635 (2000).

[25] R. Holzwarth, Th. Udem, T. W. Hänsch, J .C. Knight, W. J. Wadsworth, und P. St. J. Russell, Phys. Rev. Lett. 85, 2264 (2000).

[26] G. G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther, P. Villoresi, M. Nisoli, S. Stagira, E. Priori, und S. De Silvestri, Nature 414, 182 (2001).

[27] C. G. Durfee III, A. R. Rundquist, S. Backus, C. Herene, M. M. Murnane, und H. C. Kapteyn, Phys. Rev. Lett. 83, 2187 (1999).

[28] A. Baltuška, Th. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, Ch. Gohle, R. Holzwarth, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hänsch, und F. Krausz, Nature 421, 611 (2003).

[29] Th. Udem, Dissertation an der Fakultät für Physik der Ludwig-Maximilians-Universität München 1997.

[30] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, und T. W. Hänsch, Opt. Lett., 24, 881 (1999).

Harmonische Frequenzketten Ref. [31]-[45]:

[31] L. O. Hocker, A. Javan, D. R. Rao, und L. Frenkel, Appl. Phys. Lett. 10, 147 (1967). Harmonische Frequenzkette vom Radiofrequenzbereich bis zum 890 GHz HCN Laser.

[32] K. M. Evenson, J. S. Wells, F. R. Petersen, B. L. Danielson und G. W. Day, Appl. Phys. Lett. 22, 192 (1973). Harmonische Frequenzkette vom Radiofrequenzbereich bis zum 88 THz HeNe/CH_4 Laser.

[33] A. Clairon, B. Dahmani, und J. Rutman, IEEE Trans. Instrum. Meas. 29, 268 (1980). Harmonische Frequenzkette vom Radiofrequenzbereich bis zum 88 THz HeNe/CH_4 Laser.

[34] D. J. E. Knight, G. J. Edwards, P. R. Pearce, und N. R. Cross, IEEE Trans. Instrum. Meas. 29, 257 (1980). Harmonische Frequenzkette vom Radiofrequenzbereich bis zum 88 THz HeNe/CH_4 Laser.

[35] Yu. S. Domnin, N. B. Kosheljaevsky, V. M. Tatarenkov, und P. S. Shumjatsky, IEEE Trans. Instrum. Meas. 29, 264 (1980). Harmonische Frequenzkette vom Radiofrequenzbereich bis zum 88 THz HeNe/CH_4 Laser.

[36] V. P. Chebotayev, V. G. Goldort, V. M. Klementyev, M. V. Nikitin, B. A. Timchenko, und V. F. Zakhayah, Appl. Phys. B 29, 63 (1982). Harmonische Frequenzkette vom Radiofrequenzbereich bis zum 88 THz HeNe/CH_4 Laser.

[37] B. G. Whitford, Appl. Phys. B 35, 119 (1984). Harmonische Frequenzkette vom Radiofrequenzbereich bis zum 88 THz HeNe/CH_4 Laser.

[38] Y. Miki, A. Onae, T. Kurosawa, Y. Akimoto, und E. Sakuma, Jpn. J. Appl. Phys. 33, 1655 (1994). Harmonische Frequenzkette vom Radiofrequenzbereich bis zum 88 THz HeNe/CH_4 Laser.

[39] H. Schnatz, B. Lipphardt, J. Helmcke, F. Riehle, und G. Zinner, Phys. Rev. Lett. 76, 18 (1996). Harmonische Frequenzkette vom Radiofrequenzbereich bis zur 456 THz Ca Interkombinationslinie.

[40] J. E. Bernard, A. A. Madej, L. Marmet, B. G. Whitford, K. J. Siemsen, und S. Cundy, Phys. Rev. Lett. 82, 3228 (1999). Harmonische Frequenzkette vom Radiofrequenzbereich bis zum 445 THz "Uhrenübergang" in Sr^+.

[41] Th. Udem, A. Huber, B. Gross, J. Reichert, M. Prevedelli, M. Weitz, und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett., 79, 2646 (1997). Harmonische Frequenzkette vom 88 THz HeNe/CH_4 Laser bis zur 2466 THz $1S - 2S$-Resonanz im atomaren Wasserstoff.

[42] D. A. Jennings, C. R. Pollock, F. R. Petersen, R. E. Drullinger, K. M. Evenson, und J. S. Wells, Opt. Lett. 8, 136 (1983). Harmonische Frequenzkette mit einem CO_2-, und zwei HeNe/CH_4 Lasern (3.39 μm und 1.15 μm) zum 474 THz HeNe/I_2 Laser.

[43] O. Acef, J. J. Zondy, M. Abed, D. G. Rovera, A. H. Gérard, A. Clairon, Ph. Laurent, Y. Millerioux, und P. Juncar, Opt. Commun. 97, 29 (1993). Harmonische Frequenzkette vom 29 THz CO_2 Laser bis zum 473 THz HeNe/I_2 Laser.

[44] D. Touahri, F. Nez, M. Abed, J. J. Zondy, O. Acef, L. Hilico, A. Clairon, Y. Millerioux, F. Biraben, L. Julien, und R. Felder, IEEE Trans. Instrum. Meas. 44, 170 (1995). Harmonische Frequenzkette vom 30 THz CO_2 Laser bis zur 385 THz Rb $5S^2S_{1/2} - 5d^2D_{3/2}$ zwei-Photonen line.

[45] H. Schnatz, S. Ohshima, H. R. Telle, und F. Riehle, IEEE Trans. Instrum. Meas. 42, 273 (1993). Harmonische Frequenzkette vom 30 THz CO_2 Laser bis zur 456 THz Ca Interkombinationslinie.

[46] J. L. Hall, IEEE J. on Selected Topics in Quant. Electron. 6, 1136 (2000).

[47] L. O. Hocker, D. R. Sokoloff, V. Daneu, A. Szoke und A. Javan, Appl. Phys. Lett. 12, 401 (1968).

[48] K. M. Evenson, J. S. Wells, L. M. Mattarese, und L. B. Elwell, Appl. Phys. Lett. 16, 159 (1970).

[49] F. M. Gardener, *Phaselock Techniques*, (John Wiley & Sons, New York 1979).

[50] M. Prevedelli, T. Freegarde, T. W. Hänsch, Appl. Phys. B 60, S241 (1995).

[51] G. Santarelli, Ph. Laurent, P. Lemonde, A. Clairon, A. G. Mann, S. Chang, A. N. Luiten, und C. Salomon, Phys. Rev. Lett. 82, 4619 (1999).

[52] J. A. Barnes, A. R. Chi, L. S. Cutler, D. J. Healey, D. B. Leeson, T. E. McGunigal, J. A. Mullen Jr, W. L. Smith, R. L. Sydnor, R. F. C. Vessot, und G. M. R. Winkler, IEEE Trans. Instrum. Meas. 20, 105 (1971). Die darin definierte, aber nicht so genannte, Größe $\sigma_y(\tau)$) ist die Allan-Instabilität der Größe y.

[53] G. Ascheid, und H. Meyr, IEEE Trans. on Commun. 30, 2228, (1982).

[54] R. P. Kovacich, Dissertation am Department of Physics, University of Western Australia, Perth 2000.

[55] Th. Udem, J. Reichert, T. W. Hänsch, und M. Kourogi, Opt. Lett. 23, 1387 (1998).

[56] D. Leibfried, F. Schmidt-Kaler, M. Weitz, und T. W. Hänsch, Appl. Phys. B 56, 65 (1993).

[57] M. Kourogi, B. Widiyatomoko, Y. Takeuchi, und M. Ohtsu, IEEE J. Quantum Electron. 31, 2120 (1995).

[58] L. R. Brothers, und N. C. Wong, Opt. Lett. 22, 1015 (1997).

[59] K. Imai, M. Kourogi, und M. Ohtsu, IEEE Journal Quant. Electr. 34, 54 (1998).

[60] S. A. Diddams, L. S. Ma, J. Ye, und J. L. Hall, Opt. Lett., 24, 1747 (1999).

[61] T. W. Hänsch, *The Hydrogen Atom*, G. F. Bassani, M. Inguscio, und T. W. Hänsch (Hrsg.) (Springer Verlag 1989) pp. 93.

[62] H. R. Telle, D. Meschede, und T. W. Hänsch, Opt. Lett. 15, 532 (1990).

[63] A. N. Luiten, R. P. Kovacich, und J. J. McFerran, IEEE Trans. Instrum. Meas. 48, 558 (1999).

[64] T. Ikegami, S. Slyusarev, S. Ohshima, und E. Sakuma, Proceedings of the Fifth Symposium on *Frequency Standards and Metrology*, J. C. Bergquist (Hrsg.) (World Scientific, Singapore 1996) pp. 333.

[65] J. Stenger, und H. R. Telle, Opt. Lett. 15, 1553 (2000).

[66] H. R. Telle, G. Steinmeyer, A. E. Dunlop, J. Stenger, D. H. Sutter, und U. Keller, Appl. Phys. B 69, 327 (1999).

[67] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, D. N. Nikogosyan, *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*, (Springer, Berlin 1997).

[68] A. E. Siegman, *Lasers*, (University Science Books, Mill Valley Ca USA 1986) pp. 1043.

[69] A. I. Ferguson, und R. A. Taylor, Opt. Commun. 41, 271 (1982).

[70] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 82, 3568 (1999).

[71] D. E. Spence, P. N. Kean, und W. Sibbett, Opt. Lett. 16, 42 (1991).

[72] T. Brabec, Ch. Spielmann, P. F. Curley, und F. Krausz, Opt. Lett. 17, 1292 (1992).

[73] V. Magni, G. Cerullo, und S. De Silvestri, Opt. Commun. 101, 365 (1993).

[74] G. Cerullo, S. De Silvestri, V. Magni, und L. Pallaro, Opt. Lett. 19, 807 (1994).

[75] Ch. Spielmann, P. F. Curley, T. Brabec, und F. Krausz, IEEE J. Quant. Electr. 30, 1100 (1994).

[76] D. H. Sutter, G. Steinmeyer, L. Gallmann, N. Matuschek, F. Morier-Genoud, U. Keller, V. Scheuer, G. Angelow, und T. Tschudi, Opt. Lett. 24, 631 (1999).

[77] U. Morgner, F. X. Kärtner. S. H. Cho, Y. Chen, H. A. Haus, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, und T. Tschudi, Opt. Lett. 24, 411 (1999).

[78] R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann, und F. Krausz, Opt. Lett. 19, 201 (1994).

[79] R. L. Fork, O. E. Martinez, und J. P. Gordon, Opt. Lett. 9, 150 (1984).

[80] A. Hasegawa, und F. Tappert, Appl. Phys. Lett. 23, 142 (1973).

[81] A. Bartels, und H. Kunz, Opt. Lett. 27, 1839 (2002).

[82] F. L. Walls, und A. DeMarchi, IEEE Trans. Instrum. Meas. 24, 210 (1975).

[83] H. R. Telle, *Frequency Control of Semiconductor Lasers*, M. Ohtsu (Hrsg.) (Wiley, New York, 1996) pp. 137.

[84] S. R. Bramwell, D. M. Kane, und A. I. Ferguson, Opt. Comm. 56, 112 (1985)

[85] E. N. Ivanov, L. Hollberg, S. A. Diddams, Proceedings of the 2001 *IEEE International Frequncy Control Symposium*, Piscataway, NJ, USA 6.-8. Juni 2001, pp. 117.

[86] M. Nakazawa, und K. Suzuki, Opt. Lett. 26, 635 (2001).

[87] W. Ng, R. Stephens, D. Persechini, und K. V. Reddy, Electr. Lett. 37, 113 (2001).

[88] R. H. Kingston, *Detection of Optical and Infrared Radiation*, (Springer, Berlin, 1978).

[89] S. A. Diddams, D. J. Jones, L. S. Ma, S. T. Cundiff, und J. L. Hall, Opt, Lett. 25, 186 (2000).

[90] R. Holzwarth, Dissertation an der Fakultät für Physik der Ludwig-Maximilians-Universität München 2001.

[91] S. N. Bagayev, A. K. Dmitriyev, und P. V. Pokasov, Laser Physics, 7, 989 (1997).

[92] K. H. Weber, und C. J. Sansonetti, Phys. Rev. A 35, 4650 (1987).

[93] R. Holzwarth, A. Yu. Nevsky, M. Zimmermann, Th. Udem, T. W. Hänsch, J. v. Zanthier, H. Walther, J. C. Knight, W. J. Wadsworth, P. St. J. Russell, M. N. Skvortsov, und S. N. Bgayev, Appl. Phys. B 73, 269 (2001).

[94] O. Schmidt, K. M. Knaak, R. Wynands, und D. Meschede, Appl. Phys. B 59, 167 (1994).

[95] R. J. Rafac, und C. E. Tanner, Phys. Rev. A 56, 1027 (1997).

[96] T. Kinoshita, Rep. Prog. Phys. 59, 1459 (1996) und Referenzen darin.

[97] F. Biraben, T. W. Hänsch, M. Fischer, M. Niering, R. Holzwarth, J. Reichert, Th. Udem, M. Weitz, B. de Beauvoir, C. Schwob, L. Jozefowski, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, O. Acef, J. J. Zondy, und A. Clairon, *The Hydrogen Atom: Precision Physics of Simple Atomic Systems*, S. G. Karshenboim, F. S. Pavone, G. F. Bassani, M. Inguscio, und T. W. Hänsch (Hrsg.) (Springer Verlag 2001) pp. 17.

[98] P. J. Mohr, und B. N. Taylor, Rev. Mod. Phys. 72, 351 (2000).

[99] M. P. Bradley J. V. Porto, S. Rainville, J. K. Thompson, und D. E. Pritchard, Phys. Rev. Lett 83, 4510 (1999).

[100] J. M. Hensley, Dissertation am Department of Physics, Stanford University, Stanford CA, USA 2001.

[101] J. M. Hensley, A. Wicht, E. Sarajlic, und S. Chu, Proceedings of the XV International Conference on *Laser Spectroscopy (ICOLS)*, S. Chu, V. Vuletić, A. J. Kerman und C. Chin (Hrsg.) (World Scientific, Singapore, 2001), pp. 133.

[102] A. Wicht, J. M. Hensley, E. Sarajlic, und S. Chu, Proceedings of the Sixth Symposium on *Frequency Standards and Metrology*, P. Gill (Hrsg.) (World Scientific, Singapore, 2002), pp. 193.

[103] J. von Zanthier, Th. Becker, M. Eichenseer, A. Yu. Nevsky, Ch. Schwedes, E. Peik, H. Walther, R. Holzwarth, J. Reichert, Th. Udem, T. W. Hänsch, P. V. Pokasov, M. N. Skvortsov, und S. N. Bagayev, Opt. Lett. 25, 1729 (2000).

[104] A. Yu. Nevsky, M. Eichenseer,J. von Zanthier, und H. Walther, Opt. Commun. 201, 91 (2002).

[105] P. R. Bevington, *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences*, (McGraw-Hill Book, New York 1992).

[106] J. von Zanthier, J. Abel, Th. Becker, M. Fries, E. Peik, H. Walther, R. Holtzwarth, J. Reichert, Th. Udem, T. W. Hänsch, A. Yu. Nevsky, M. N. Skvortsov, und S. N. Bagayev, Opt. Commun. 166, 57 (1999).

[107] K. F. Kwong, D. Yankelevich, K. C. Chu, J. P. Heritage, und A. Dienes, Opt. Lett. 18, 558 (1993).

[108] S. T. Cundiff, J. Ye, und J. L. Hall, Rev. Scient. Instr. 72, 3749 (2001).

[109] L. Xu, Ch. Spielmann, A. Poppe, T. Brabec, F. Krausz, und T. W. Hänsch, Opt. Lett. 21, 2008 (1996).

[110] N. Nakagawa, M. Kourogi, und M. Ohtsu, Appl. Phys. B 57, 425 (1993).

[111] 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).

[112] A. Huber, B. Gross, M. Weitz, und T. W. Hänsch, Phys. Rev. A 59, 1844 (1999).

[113] J. Reichert, Dissertation an der Fakultät für Physik der Ludwig-Maximilians-Universität München 2000.

[114] A. Huber, Th. Udem, B. Gross, J. Reichert, M. Kourogi, K. Pachucki, M. Weitz, und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 80, 468 (1998).

[115] E. R. Cohen, K. M. Crowe, und J. W. Dumond, *The Fundamental Constants of Physics*, (Interscience Publishers, New York, 1957).

[116] K. Pachucki, D. Leibfried, M. Weitz, A. Huber, W. König, und T. W. Hänsch, J.Phys. 29, 177 (1996) + Erratum auf Seite 1573 desselben Bandes.

[117] 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 (1999).

[118] C. Schwob, L. Jozefowski, B. de Beauvoir, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, F. Biraben, O. Acef, und A. Clairon, Phys. Rev. Lett. 82, 4960 (1999).

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

[120] E. W. Hagley, und F. M. Pipkin, Phys. Rev. Lett. 72, 1172 (1994).

[121] A. van Wijngaarden, F. Holuj, und G. F. W. Drake, Can. J. Phys. 76, 95 (1998).

[122] 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).

[123] D. J. Berkeland, E. A. Hinds und M. G. Boshier, Phys. Rev. Lett. 75, 2470 (1995).

[124] 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).

[125] S. G. Karshenboim, Z. Phys. D 39, 109 (1997).

[126] B. de Beauvoir, C. Schwob, O. Acef, L. Jozefowski, L. Hilico, F. Nez, L. Julien, A. Clairon, und F. Biraben, Eur. Phys. J. D 12, 61-93 (2000).

[127] S. Mallampalli, und J. Sapirstein, Phys. Rev. Lett. 80, 5297-5300 (1998).

[128] L. N. Hand, D. J. Miller, und R. Wilson, Rev. Mod. Phys. 35, 335 (1963).

[129] R. Pohl, F. Biraben, C. A. N. Conde, C. Donche-Gay,T. W. Hänsch, F. J. Hartmann, P. Hauser, V. W. Hughes, O. Huot, P. Indelicato, P. Knowles, F. Kottmann,Y.-W. Liu, V. E. Markushin, F. Mulhauser, F. Nez, C. Petitjean, P. Rabinowitz, J. M. F. dos Santos, L. A. Schaller, H. Schneuwly, W. Schott, D. Taqqu, und J. F. C. A. Veloso *The Hydrogen Atom: Precision Physics of Simple Atomic Systems*, S. G. Karshenboim, F. S. Pavone, G. F. Bassani, M. Inguscio, und T. W. Hänsch (Hrsg.) (Springer Verlag 2001) pp. 454.

[130] G. G. Simon, C. Schmidt, F. Borkowski, und V. H. Walther, Nucl. Phys. A333, 381 (1980).

[131] P. Mergell, U. G. Meißner, und D. Dreschel, Nucl. Phys. A596, 367 (1996).

[132] E. R. Cohen, und B. N. Taylor, Rev. Mod. Phys. 59, 1121 (1987).

[133] A. J. Buchmann, H. Henning, und P. U. Sauer, Few-Body Systems 21, 149 (1996). Der Deuteron-Strukturradius lässt sich aus den Tabellen 4 und 6 berechnen (private Mitteilung von A. J. Buchmann).

[134] S. Kopecky, P. Riehs, J. A. Harvey und N. W. Hill, Phys. Rev. Lett. 74, 2427 (1995). Der Wert $r^2_{n,ch} = -0,114(3)$ fm^2 lässt sich aus dem in Tabelle I angegebenen Wert für $b_{ne} = -1.32(3) \times 10^{-3}$ fm berechnen.

[135] K. Pachucki, und S. G. Karshenboim, Phys. Rev. A 60, 2792 (1999).

[136] S.K. Klarsfeld, J. Martorell, J.A. Oteo, M. Nishimura, und D.W. Sprung, Nucl. Phys. A 456, 373 (1986).

[137] I. Sick, und D. Trautmann, Phys. Lett. B 375, 16 (1996).

[138] J. C. Knight, T. A. Birks, P. St. J. Russell, und D. M. Atkin, Opt. Lett. 21, 1547 (1996).

[139] J. K. Ranka, R. S. Windeler, und A. J. Stentz, Opt. Lett. 25, 25 (2000).

[140] W. J. Wadsworth, A. Ortigosa-Blanch, J. C. Knight, T. A. Birks, T. P. M. Man, und P. St. J. Russell, J. Opt. Soc. Am. B, 19, 2148 (2002).

[141] J. M. Dudley, L. Provino, N. Grossard, H. Maillotte, R. S. Windeler, B. J. Eggleton, und S. Coen, J. Opt. Soc. Am. B, 19, 765 (2002).

[142] A. V. Husakou, und J. Herrmann, Phys. Rev. Lett., 87, 203901 (2001).

[143] A. L. Gaeta, Opt. Lett. 27, 924 (2002).

[144] S. Coen, A. H. L. Chau, R. Leonhardt, J. D. Harvey, J. C. Knight, W. J. Wadsworth, und P. St. J. Russell, J. Opt. Soc. Am. B, 19, 753 (2002).

[145] K. Tai, A. Hasegawa, und A. Tomita, Phys. Rev. Lett. 56, 135 (1986).

[146] M. Nakazawa, K. Tamura, H. Kubota, und E. Yoshisda, Opt. Fiber Technol., 4, 215, (1998).

[147] A. Bartels, T. Dekorsy, und H. Kurz, Opt. Lett. 24, 996 (1999).

[148] Private Mitteilung T. Brabec.

[149] H. A. Haus, und E. P. Ippen, Opt. Lett. 26, 1654 (2001).

[150] T. A. Birks, W. J. Wadsworth, und P. St. J. Russell, Opt. Lett. 25, 1415 (2000).

[151] U. Morgner, R. Ell, G. Metzler, T. R. Schibli, F. X. Kärtner, J. G. Fujimoto, H. A. Haus, und E. P. Ippen, Phys. Rev. Lett. 86, 5462 (2001).

[152] R. Holzwarth, M. Zimmermann, Th. Udem, T. W. Hänsch, P. Russbüldt, K. Gäbel, R. Poprawe, J. C. Knight, W. J. Wagsworth, und P. St. J. Russell, Opt. Lett. 26, 1376 (2001).

[153] A. Baltuška, T. Fuji, und T. Kobayashi, Phys. Rev. Lett. 88, 133901 (2002).

[154] S. A. Diddams, L. Hollberg, L. S. Ma, und L. Robertsson, Opt. Lett. 27, 58 (2002).

[155] J. A. Barnes, Proc. IEEE 54, 207 (1966).
Bei drei Oszillatoren lassen sich drei verschiedene Allan-Instabilitäten zwischen diesen messen: $\sigma_{12}^2(\tau) = \sigma_1^2(\tau) + \sigma_2^2(\tau)$, $\sigma_{23}^2(\tau) = \sigma_2^2(\tau) + \sigma_3^2(\tau)$, und $\sigma_{31}^2(\tau) = \sigma_3^2(\tau) + \sigma_1^2(\tau)$. Die unbekannten $\sigma_i(\tau)$ für $i = 1, 2, 3$ lassen sich aus diesem Gleichungssystem berechnen, falls die Instabilitäten der Oszillatoren unabhängig voneinander ist.

[156] C. W. Oates, E. A. Curtis, und L. Hollberg, Opt. Lett. 25, 1603 (2000).

[157] C. W. Oates, F. Bondu, R. Fox, und L. Hollberg, Eur. J. Phys. D 7, 449 (1999).

[158] R. J. Rafac, B. C. Young, J. A. Beall, W. M. Itano, D. J. Wineland, und J. C. Bergquist, Phys. Rev. Lett. 85, 2462 (2000).

[159] C. J. Bordé, Phys. Lett. A 140, 10 (1989).

[160] Der genaueste Wert des Ca Uhrenübergangs von der PTB findet sich in: F. Riehle, H. Schnatz, B. Lipphardt, T. Trebst, T. Binnewies, G. Wilpers, und J. Helmcke, Proceedings of the Joint Meeting of the *European Frequency and Time Forum* and the *IEEE International Frequency Control Symposium* (IEEE, Piscataway, NJ, 1999), pp. 700. Der neuste, aber weniger genaue Wert findet sich in: J. Stenger, T. Binnewies, G. Wilpers, F. Riehle, H. R. Telle, J. K. Ranka, R. S. Windeler, und A. J. Stentz, Phys. Rev. A, 21802, (2001).

[161] K. R. Vogel, S. A. Diddams, C. W. Oates, E. A. Curtis, R. J. Rafac, W. M. Itano, J. C. Bergquist, R. W. Fox, W. D. Lee, J. S. Wells, und L. Hollberg, Opt. Lett. 26, 102 (2001).

[162] B. C. Young, F. C. Cruz, W. M. Itano, und J. C. Bergquist, Phys. Rev. Lett. 82, 3799 (1999).

[163] W. M. Itano, Journal of Research of the National Institute of Standards & Technology 105, 829 (2000).

[164] J. Stenger, H. Schnatz, C. Tamm, und H. R. Telle, Phys. Rev. Lett. 88, 073601 (2002).

[165] Private Mitteilung von Scott A. Diddams.

[166] J. Stenger, T. Binnewies, G. Wilpers, F. Riehle, H. R. Telle, J. K. Ranka, R. S. Windeler, und A. J. Stentz, Phys. Rev. A 53, 21802 2001.

[167] P.V. Pokasov, R. Holzwarth, Th. Udem, J. Reichert, M. Niering, M. Zimmermann, M. Weitz, T.W. Hänsch, A.K. Dmitriev, S.N. Bagayev, P. Lemonde, G. Santarelli, P. Laurent, M. Abgrall, A. Clairon, und C. Salomon, Proceedings of the Sixth *Symposium on Frequency Standards and Metrology*, P. Gill (Hrsg.) (World Scientific, Singapore, 2002), pp. 510.

[168] A. Yu. Nevsky, R. Holtzwarth, J. Reichert, Th. Udem, T. W. Hänsch, J. von Zanthier, H. Walther, H. Schnatz, F. Riehle, P. V. Pokasov, M. N. Skvortsov, und S. N. Bagayev, Opt. Commun., 263, 192 (2001).

[169] K. Sugiyama, A. Onae, F. Hong, H. Inaba, S. Slyusarev, T. Ikegami, J. Ishikawa, K. Minoshima, H. Matsumoto, J. Knight, W. Wadsworth, und P. St. J. Russell Proceedings of the Sixth *Symposium on Frequency Standards and Metrology*, P. Gill (Hrsg.) (World Scientific, Singapore, 2002), pp. 427.

[170] S. N. Lea, H. S. Margolis, G. Huang, W. R. C. Rowley, D. Henderson, G. P. Barwood, H. A. Klein, S. A. Webster, P. Blythe, P. Gill, und R. S. Windeler Proceedings of the Sixth *Symposium on Frequency Standards and Metrology*, P. Gill (Hrsg.) (World Scientific, Singapore, 2002), pp. 144.

[171] Chr. Tamm, T. Schneider, und E. Peik, Proceedings of the Sixth *Symposium on Frequency Standards and Metrology*, P. Gill (Hrsg.) (World Scientific, Singapore, 2002), pp. 369.

[172] J. Stenger, Ch. Tamm, N. Haverkamp, S. Weyers, und H. R. Telle, Opt. Lett. 26, 1589 (2001).

[173] J. Walz, A. Pahl, K. S. E. Eikema, und T. W. Hänsch, Hyperfine Interactions 127, 167 (2000).

[174] I. I. Shapiro, G. H. Pettengill, M. E. Ash, R. P. Ingalls, D. B. Campbell, und R. B. Dyce, Phys. Rev. Lett. 28, 1594 (1972).

[175] J. H. Taylor, L. A. Fowler, und P. M. McCutloch, Nature 277, 437 (1979).

[176] C. C. Counselinan III, S. M. Kent, C. A. Knight, I. I. Shapiro, T. A. Clark, H. F. Hinteregger, A. E. E. Rogers, und A. R. Whitney, Phys. Rev. Lett. 33, 1621 (1974).

[177] J. H. Taylor, Proceedings of the Second *Marcel Grossmann Meeting on General Relativity*, Part A, R. Ruffim (Hrsg.) (North-Holland Publishing, 1982), pp. 15.

[178] R. F. C. Vessot, M. W. Levine, E. M. Mattison, E. Blomberg, T. E. Hoffman, G. U. Nystrom, und B. F. Farrel, Phys. Rev. Lett. 45, 2081 (1980).

[179] A. deBohan, P. Antoine, D. B. Milošević, und B. Piraux, Phys. Rev. Lett. 81, 1837 (1998)

[180] P. Salières, P. Antoine, A. deBohan, und M.Lewenstein, Phys. Rev. Lett. 81, 5544 (1998)

[181] G. Tempea, M. Geissler, und T. Brabec, J. Opt. Soc. Am. B 16, 669 (1999).

[182] I. P. Christov, Opt. Lett. 24, 1425 (1999).

[183] T. Brabec, und F. Krausz, Rev. Mod. Phys. 72, 545 (2000).

[184] P. Dietrich, F. Krausz, und P. B. Corkum, Opt. Lett. 25, 16 (2000).

[185] I. P. Christov, M. M. Murnane, und H. C. Kapteyn, Phys. Rev. Lett. 78, 1251 (1997).

[186] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, G. Tempea, C. Spielmann, G. A. Reider, P. B. Corkum, und F. Krausz, Science 291, 1923 (2001).

[187] N. A. Papadogiannis, B. Witzel, C. Kalpouzos, und D. Charalambidis, Phys. Rev. Lett. 83, 4289 (1999).

[188] G. Tempea, A. Scrinzi, F. Krausz, und T. Brabec, Phys. Rev. Lett. 87, 109401 (2001).

[189] M. Kakehata, H. Takada, Y. Kobayashi, K. Torizuka, Y. Fujihira, T. Homma, und H. Takahashi, Opt. Lett. 26, 1436 (2001).

[190] L. Lepetit, G. Chériaux, und M. Joffre, J. Opt. Soc. Am. B 12, 2467 (1995)

[191] M. Mehendale, S. A. Mitchell, J. P. Likforman, D. M. Villeneuve, und P. B. Corkum, Opt. Lett. 25, 1672 (2000).

[192] C. Zimmermann, V. Vuletić, A. Hemmerich, und T. W. Hänsch, Appl. Phys. Lett. 66, 2318 (1995).

[193] Th. Udem, R. Holzwarth, und T.W. Hänsch, Nature 416, 233 (2002).

Danksagung

Mein besonderer Dank geht an:

Professor Hänsch, der mit immer neuen Ideen und nahezu unbegrenzten experimentellen Möglichkeiten in seiner Gruppe das ideale Gemisch bereit stellt, um mit atemberaubender Geschwindigkeit neue aufregende Resultate zu erzielen. Sicherlich kann ich von großem Glück sprechen in dieser Gruppe gelandet zu sein.

die ehemaligen Doktoranden Jörg Reichert und Ronald Holzwarth, die ich mit betreut habe und mit denen ich so manche Messnächte durchgestanden habe. Ohne sie wären die meisten hier beschriebenen Experimente nicht möglich gewesen.

die jetzigen Doktoranden der "Frequenzkette" Marcus Zimmermann und Christoph Gohle. Seit dem ich zunehmend durch andere Aufgaben daran gehindert werde, selbst im Labor Hand anzulegen, ist ihr Einsatz essentiell für den Fortgang der Experimente.

den Experten am Wasserstoffspektrometer, Andreas Huber, Markus Niering, Marc Fischer, Claudia Nissel und Nicolai Kolachevsky. Durch sie habe ich den Kontakt mit der Grundlagenforschung nicht verloren.

die Bezwinger des In-Ions Eckehard Peik, Joachim von Zanthier, Mario Eichenseer und Thomas Becker für die hervorragende Zusammenarbeit.

an Sascha Nevsky, Mischa Skortsov und Pavel Pokasov aus Novosibirsk, Russland für die Unterstützung bei der Indium- und Methanspektroskopie.

an Jonathan Knight, William Wadsworth und Phillip Russell, von der University of Bath, England für die Bereitstellung der mikrostrukturierten Faser.

Pierre Lemonde, Giorgio Santarelli und Michele Abgrall (LPTF Paris) die im Sommer 1999 ihre Cäsiumfontänenuhr in unser Labor gebracht haben. Von ihnen habe ich gelernt wie man trotz der sehr anstrengenden Messperiode seinen Humor behält.

Leo Hollberg und dem Rest der NIST-crew, Scott Diddams, Kurt Vogel, Chris Oates, Anne Curtis, David Lee und Jim Bergquist für die unglaublich angenehme Arbeitsatmosphäre.

Jan Hall und Yun Ye vom JILA Boulder, Colorado für den regen Austausch von neuen Ideen und so manche erhellende Diskussion.

Professor Ferenc Krausz, Alexander Apolonski und Andrius Baltuška von der TU Wien. Die sehr angenehme Zusammenarbeit mit dieser Gruppe schuf die Grundlage für eine sehr konstruktive Ergänzung der Expertiesen im “Frequenzraum” und im “Zeitraum”.

unseren Elektroniker Helmut Brückner. Ohne seinen Sachverstand wären in unserem Labor buchstäblich alle Lichter ausgegangen.

unsere Techniker Wolfgang Simon und Charly Linner sowie den Sekretärinnen Frau Lechner und Gabi Gschwendtner für die geleistete Unterstützung und die gelegentliche Hilfe bei der Überwindung der Sprachbarriere.

den Rest der Hänsch Gruppe.