

Doppler-freie Zweiphotonen-Spektroskopie
an atomarem Wasserstoff

Markus Niering

**MPQ-Report
252**

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR QUANTENOPTIK

Doppler-freie Zweiphotonen-Spektroskopie
an atomarem Wasserstoff

Markus Niering

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

Zusammenfassung

Atomarer Wasserstoff wird als das einfachste aller stabilen Atome von einem einzelnen Proton als Kern und einem Elektron in der Hülle gebildet. Der fortwährende Versuch, die innere Struktur von atomarem Wasserstoff zu verstehen, führte zur Entwicklung der Quantenelektrodynamik (QED), die auch heute noch Gegenstand aktueller Forschung ist. In den letzten Jahren gelang Forschungsgruppen am Wasserstoffatom der präziseste Test der QED an einem stabilen Atom. Dieses Atom erlaubt aufgrund seiner einfachen Struktur sehr genaue theoretische Berechnungen. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird die innere Struktur des Wasserstoffatoms mit Hilfe optischer spektroskopischer Methoden untersucht. Das Hauptinteresse gilt dabei dem Übergang des $1S$ -Grundzustands in den metastabilen $2S$ -Zustand. Seine natürliche Linienbreite von nur 1.3 Hz liefert bei einer Übergangsfrequenz von 2466 THz eine potentielle Auflösung von $5 \cdot 10^{-16}$ und legt damit den Grundstein für eine Reihe von Präzisionsexperimenten.

Der $1S$ - $2S$ Übergang in atomarem Wasserstoff kann mit Hilfe zweier Photonen induziert werden. Werden die beiden Photonen mit jeweils der halben für den Übergang notwendigen Energie aus entgegengesetzten Richtungen absorbiert, findet die Anregung in erster Ordnung Doppler-frei statt. In dem hier vorgestellten Experiment wird ein Wasserstoff-Atomstrahl kollinear zu einem Stehwellenfeld bei einer Wellenlänge von 243 nm ausgerichtet. Die Atome werden in diesem Stehwellenfeld durch Zweiphotonen-Absorption Doppler-frei in den $2S$ -Zustand angeregt. Das ultraviolette Licht wird durch Frequenzverdopplung des Lichts eines Farbstofflasers bei 486 nm gewonnen. Der Nachweis des langlebigen $2S$ -Zustands erfolgt durch Anlegen eines statischen elektrischen Feldes. Dabei wird der $2S$ -Zustand mit dem nah gelegenen $2P$ -Zustand gemischt und zerfällt spontan unter Aussenden eines L_α -Photons bei 121 nm in den $1S$ -Grundzustand. Die L_α -Photonen können mit Hilfe eines Photomultipliers nachgewiesen werden. Durch zeitaufgelöste Signalaufnahme und eine optimierte Anregungsgeometrie konnte mit dieser Technik der $1S$ - $2S$ Übergang erstmals mit einer Linienbreite von 900 Hz bei 243 nm angeregt werden. Damit konnte die experimentelle Auflösung auf $7 \cdot 10^{-13}$ gesteigert werden.

Aus einem direkten Vergleich zweier Übergangsfrequenzen in atomarem Wasserstoff ist es möglich, die Lamb-Verschiebung des $1S$ -Grundzustands zu bestimmen. Ein solcher Vergleich wurde in dieser Arbeit an den beiden Zweiphotonen-Übergängen $1S$ - $2S$ und $2S$ - $4S$ durchgeführt. Dazu werden beide Übergänge an demselben kalten Atomstrahl mit einer doppelresonanten Anregungsgeometrie induziert. Während das Bohrsche Atommodell eine Frequenzdifferenz von Null voraussagt, kann die beobachtete Schwebungsfrequenz nahe 5 GHz mittels der QED erklärt werden. Sie setzt sich aus einer Kombination von Lamb-Verschiebungen der beteiligten Niveaus, wobei die $1S$ -Lamb-Verschiebung hier den größten Beitrag liefert, sowie aus heutzutage gut bekannten relativistischen Korrekturen zusammen. Wie erste Messungen zeigen, sollte mit dem doppelresonanten Aufbau an einem anderen Wasserstoff-Übergang zukünftig eine genauere Bestimmung der $1S$ -Lamb-Verschiebung möglich sein.

Den Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit stellt eine neue Messung der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs dar. Dieses Projekt wurde im Rahmen einer Zusammenarbeit unter Verwendung der Garchinger Frequenzkette sowie einer Fontänen-Cäsium-Atomuhr (Paris) durchgeführt. Mit dem Ergebnis für die $1S$ - $2S$ Absolutfrequenz von $f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187\,103(46)$ Hz konnte die Genauigkeit im Vergleich zu früheren Messungen um mehr als eine Größenordnung auf $1.8 \cdot 10^{-14}$ gesteigert werden. Damit konnte die derzeit genaueste Messung einer Absolutfrequenz im sichtbaren und ultravioletten Bereich durchgeführt werden, so daß der $1S$ - $2S$ Übergang den besten Frequenzstandard im optischen Bereich darstellt. Durch den direkten phasenkohärenten Vergleich der $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenz mit einer transportablen Fontänen-Cäsium-Atomuhr als primäres Frequenznormal konnten systematische Einflüsse, wie etwa der dynamische Stark-Effekt, aufgelöst und detailliert untersucht werden. Dabei mußte der Doppler-Effekt zweiter Ordnung durch Anpassen eines theoretischen Linienformmodells an die experimentellen Spektren korrigiert werden. Das Modell berücksichtigt den geometrischen Aufbau zur Anregung des $1S$ - $2S$ Übergangs sowie die experimentellen Rahmenbedingungen und erlaubt die Angabe der bezüglich dem Doppler-Effekt zweiter Ordnung unverschobenen Linienmitte auf $1/100$ der experimentellen Linienbreite. Um den Einfluß des dynamischen Stark-Effekts, der neben dem Doppler-Effekt zweiter Ordnung die größte Systematik bildet, zu korrigieren, wurde der $1S$ - $2S$ Übergang bei verschiedenen Lichtleistungen angeregt. Durch lineare Extrapolation konnte damit die Absolutfrequenz bei verschwindender Lichtleistung des Anregungslichtfelds bestimmt werden. Zusammen mit einer zweiten absolut gemessenen Übergangsfrequenz in atomarem Wasserstoff wäre es möglich, neue Werte für sowohl die Rydberg-Konstante als auch die $1S$ -Lamb-Verschiebung anzugeben. Momentan ist die Bestimmung dieser Größen jedoch durch die Messung anderer Übergangsfrequenzen begrenzt.

Die Messung der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs entspricht prinzipiell einem Vergleich zweier Uhren. Dabei handelt es sich zum einen um den elektronischen $1S$ - $2S$ Übergang in atomarem Wasserstoff und zum anderen um den Hyperfeinübergang des $6S_{1/2}$ -Grundzustands in ^{133}Cs . Damit wäre es durch eine wiederholte Messung der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs über einen längeren Zeitraum möglich, der Frage nach der Konstanz von Naturkonstanten nachzugehen. Mit einer steigenden Genauigkeit der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs etabliert sich atomarer Wasserstoff in zunehmenden Maß als möglicher zukünftiger optischer primärer Frequenzstandard.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Theorie des Wasserstoffatoms	9
2.1	Bohrsche-Energieniveaus	10
2.2	Feinstruktur	11
2.3	Lamb-Verschiebung	13
2.4	Hyperfeinstruktur	17
2.5	Zweiphotonen-Spektroskopie am Wasserstoffatom	18
3	Experimenteller Aufbau	21
3.1	Wasserstoff-Spektrometer	22
3.2	Phasenkohärente Frequenzkette	27
3.3	Cäsium-Atomuhr	30
4	Spektroskopie an atomarem Wasserstoff	37
4.1	Der $1S$ - $2S$ Übergang	38
4.2	Ramsey-Spektroskopie	43
4.3	Doppelresonante Spektroskopie	47
5	Linienformmodell	55
5.1	Theoretisches Linienformmodell	56
5.2	Systematische Korrekturen der Übergangsfrequenz	63

6 Absolutfrequenzmessung des $1S$-$2S$ Übergangs	67
6.1 Absolute Frequenzachse	68
6.2 Bestimmung der Absolutfrequenz	72
7 Ausblick	79
A Ramsey-Spektren	81
B Bei Phys. Rev. Lett. veröffentlichte Artikel	83
Literaturverzeichnis	93

Kapitel 1

Einleitung

Die ältesten überlieferten Vorstellungen über eine atomare Struktur der Materie stammen von dem griechischen Naturphilosophen Leukipp von Milet (etwa 450 v. Chr.) und seinem Schüler Demokrit von Abdera (etwa 460-370 v. Chr.). Sie lehrten, daß alle Stoffe aus einzelnen, gänzlich unteilbaren, voneinander abgegrenzten Teilchen bestünden, die sie Atome nannten. Die charakteristischen Eigenschaften makroskopischer Körper wurden nach ihrer Vorstellung nur durch die verschiedenen Anordnungen gleicher oder unterschiedlicher Atome bewirkt, die sich wiederum nur in Größe und Gestalt unterscheiden. Die Atome können sich vereinen und wieder trennen und bewirken so alles Werden, wobei sie selbst unverändert bleiben. Diese durchaus moderne Auffassung wurde in der Blütezeit der griechischen Philosophie von Platon und Aristoteles in wesentlichen Punkten abgelehnt. Damit begann für die Atomlehre eine unfruchtbare Zeit. Vor allem wurde sie von der christlichen Kirche als materialistische Hypothese, die dem Schöpfungsgedanken widersprach, verworfen.

Diese Phase dauerte bis in die Renaissance an, in der die Atomlehre dann zu neuem Leben erweckt wurde. Nun wurde auch die spekulative Haltung der griechischen Philosophen gegenüber der Natur aufgegeben, und die Erfahrungstatsachen wurden als allein entscheidendes Kriterium zur Grundlage aller Naturforschung gemacht. Die ersten Experimente, die den Aufbau aller Stoffe aus Atomen stützten, wurden von Chemikern durchgeführt, die durch genaue Wägung die Massenverhältnisse von Reaktanden und Reaktionsprodukten bei chemischen Reaktionen bestimmten. Mit diesen Vorstellungen konnte Daniel Bernoulli (1700-1782) bereits 1738 das Gasgesetz von Boyle-Mariotte durch die Bewegung kleinster Teilchen erklären und legte damit den Grundstein für die später entwickelte kinetische Gastheorie. In dieser Zeit wurde auch ein erstes einfaches mechanisches Atommodell entwickelt, das die Atome als kleine, kugelförmige, gleichmäßig mit Materie erfüllte und völlig elastische Gebilde deutete. Mit diesem begann im wesentlichen die heutige Vorstellung der Physik, in der in Zusammenarbeit zwischen Experiment und Theorie sukzessiv ein Modell erarbeitet wird, das ein möglichst genaues Bild der Wirklichkeit darstellt.

So setzte sich im 19. Jahrhundert aufgrund verschiedener Experimente, wie etwa der

Untersuchung von Gasentladungen, die Vorstellung durch, daß die Materie aus geladenen Teilchen aufgebaut ist. Da die Atome selbst elektrisch neutral sind, stellte J. J. Thomson (1856-1940) im Jahre 1897 sein modifiziertes Atommodell vor, nach dem jedes Atom aus gleich vielen positiven wie negativen Ladungen gleichen Betrags besteht, die statistisch gleichmäßig über das gesamte Atomvolumen verteilt sind. Um dieses Atommodell zu testen, führte E. Rutherford (1871-1937) schließlich 1911 Streuversuche mit den zu diesem Zeitpunkt bereits bekannten und identifizierten α -Teilchen an dünnen Goldfolien durch. Die Ergebnisse widersprachen den Vorstellungen Thomsons, da die α -Teilchen in den gesamten Winkelbereich gestreut wurden. Dies veranlaßte Rutherford zu der Annahme, daß die positive Ladung des Atoms in einem sehr kleinen Volumen im Zentrum des Atoms komprimiert sein muß. Das Volumen, in dem auch fast die gesamte Masse des Atoms vereint ist, nannte er Atomkern. Nach dem Vorbild von Planeten, die aufgrund der Gravitation um einen Stern kreisen, bewegen sich die Elektronen in dem nach ihm benannten Atommodell unter dem Einfluß der Coulombkräfte um den Kern.

In einer parallelen Entwicklung stellten G. Kirchhoff (1824-1887) und R. Bunsen (1811-1899) in einer Gemeinschaftsarbeit 1859 fest, daß Atome nur Licht mit ganz bestimmten Wellenlängen absorbieren und emittieren können und somit jedes Element ein für sich charakteristisches Spektrum besitzt. Schon vor dieser Feststellung entdeckte J. von Fraunhofer bereits 1815 im Lichtspektrum der Sonne zwei Linien, die A. Masson 1821 mit Wasserstoff, dem einfachsten aller Atome, in Verbindung brachte. Wasserstoff besteht aus einem einzigen Proton als Kern und einem Elektron, das sich in der Hülle bewegt. Das sichtbare Emissionsspektrum des atomaren Wasserstoffs wird von den drei charakteristischen Linien bei 656.3 nm, 486.1 nm und 434.0 nm gebildet, die heute als die ersten drei Linien der Balmer-Serie ($H_{\alpha,\beta,\gamma}$) bekannt sind. Erst 1885 konnte J. J. Balmer (1825-1898) die Wellenlängen der dem Wasserstoffatom zugeordneten Linien mit einer empirischen Formel in Verbindung bringen, die vier Jahre später von S. Rydberg verallgemeinert wurde. Seine Formel legte es nahe, die Frequenzen des Emissionsspektrums als Differenz zweier Terme, nämlich der diskreten Energieniveaus des Wasserstoffatoms, zu interpretieren.

Eine solche Vorstellung von diskreten Energieniveaus war nach dem Rutherfordschen Atommodell undenkbar. Dieses Modell hatte außerdem ein in sich instabiles Atom zur Folge, da die Bewegung des Elektrons klassisch zu einer kontinuierlichen Abstrahlung von Energie führt. Aus diesen beiden Gründen formulierte N. Bohr schließlich 1913 zwei Postulate für das, von der klassischen Physik abweichende, Verhalten des Elektrons im Atom. Zum einen dürfen sich die Elektronen demnach zwar klassisch aber nur auf diskreten Bahnen, den Energieniveaus des Atoms, bewegen, zum anderen muß diese Bewegung strahlungslos erfolgen. Damit war man zwar in der Lage das Spektrum des Wasserstoffatoms zu erklären, aber es blieb trotzdem die Frage offen, warum sich die Elektronen auf einmal strahlungslos bewegen sollten. Dieses Problem konnte erst mit der unabhängigen Formulierung der Quantenmechanik durch E. Schrödinger und W. Heisenberg im Jahre 1926 durch den Welle-Teilchen-Dualismus erklärt werden. Mit dieser Theorie konnte das bis dahin bekannte Spektrum des Wasserstoffatoms

weitgehend vollständig erklärt werden. Danach sind die diskreten Energieniveaus in der Hauptquantenzahl n quadratisch entartet, und der $1S$ -Grundzustand hat als tiefster Zustand eine Bindungsenergie von 13.6 eV.

Die stärkste Linie des Wasserstoffspektrums im sichtbaren Bereich ist die Balmer- α -Linie, die sich aus einem Übergang zwischen Niveaus mit den Quantenzahlen $n = 2$ und $n = 3$ ergibt. Schon 1887 konnten Michelson und Morley zeigen, daß diese Linie in zwei Komponenten aufspaltet. Diese sogenannte Feinstruktur hebt die Entartung in der Hauptquantenzahl n bezüglich des Gesamtdrehimpulses j auf, was erst durch die theoretische Einführung des Spins s als zusätzliche Eigenschaft eines jeden Teilchens durch P. A. M. Dirac vollständig verstanden wurde. In seiner relativistischen Formulierung der Quantenmechanik im Jahre 1928 konnte er den Spin theoretisch begründen und die Feinstruktur als Resultat der Wechselwirkung des Spins s mit dem Bahndrehimpuls l des Elektrons erklären. Der Gesamtdrehimpuls j ergibt sich dann aus der Summe dieser beiden Drehimpulse. Darüber hinaus zeigte Dirac die theoretische, zu diesem Zeitpunkt aber noch absurd erscheinende Existenz von Antiteilchen, die völlig identisch zu den entsprechenden Teilchen sind, aber eine entgegengesetzte Ladung besitzen.

Zu der bis heute währenden Vorstellung des Wasserstoffatoms gelangte man nach Entdeckung der Aufspaltung der bis dahin als entartet angenommenen Zustände mit gleicher Drehimpulsquantenzahl j . Im Jahr 1947 konnten W. E. Lamb und R. C. Retherford eine kleine Energiedifferenz zwischen dem $2S_{1/2}$ - und $2P_{1/2}$ -Zustand mit Hilfe radiofrequenz-spektroskopischer Methoden nachweisen. Die in der Folge entstandene Theorie von Schwinger, Feynman und Tomonaga, die Quantenelektrodynamik (QED), ist in der Lage diese Aufspaltung als eine zusätzliche Verschiebung aller Niveaus zu erklären. Die QED beschreibt die Quantisierung elektromagnetischer Felder und somit auch des Vakuumstrahlungsfelds, das den größten Beitrag zu der, nach ihrem Entdecker benannten, Lamb-Verschiebung bildet. Abbildung 1.1 gibt einen Überblick über die Energieniveaus des Wasserstoffatoms nach heutigem Stand der Kenntnis. Die dort eingezeichnete, noch nicht erwähnte, Hyperfeinstruktur ergibt sich als Folge der Wechselwirkung des Elektrons mit den magnetischen und elektrischen Momenten des Kerns.

Damals wie heute erlaubt atomarer Wasserstoff als das einfachste aller stabilen Atome wichtigste Tests der verschiedensten Modelle der Physik. Waren es früher vor allem die Entwicklungen zu unserem heutigen Verständnis über den Aufbau der Atome, so bildet Wasserstoff heute die Grundlage für die genaue Bestimmung von Naturkonstanten und anderer fundamentaler Größen. Mit immer ausgereifteren, vor allem optischen Methoden zur Untersuchung der Energieniveaus des Wasserstoffatoms können die Rydberg-Konstante sowie die Lamb-Verschiebungen immer präziser bestimmt werden. Dabei gibt die Rydberg-Konstante einen universellen Skalierungsfaktor für die Bindungsenergie der Atome an und stellt dank der Experimente an atomarem Wasserstoff die heute am genauesten bekannte Naturkonstante dar. Diese setzt sich aus anderen wichtigen Konstanten wie zum Beispiel der Feinstrukturkonstanten α , die die Kopplungskonstante der Elektrodynamik bildet, zusammen und stellt damit einen wichtigen Ausgangspunkt für die exaktere Bestimmung dieser Konstanten dar. War anfangs die Entdeckung der Lamb-Verschiebung der Anstoß zur Entwicklung der QED, so stellt die

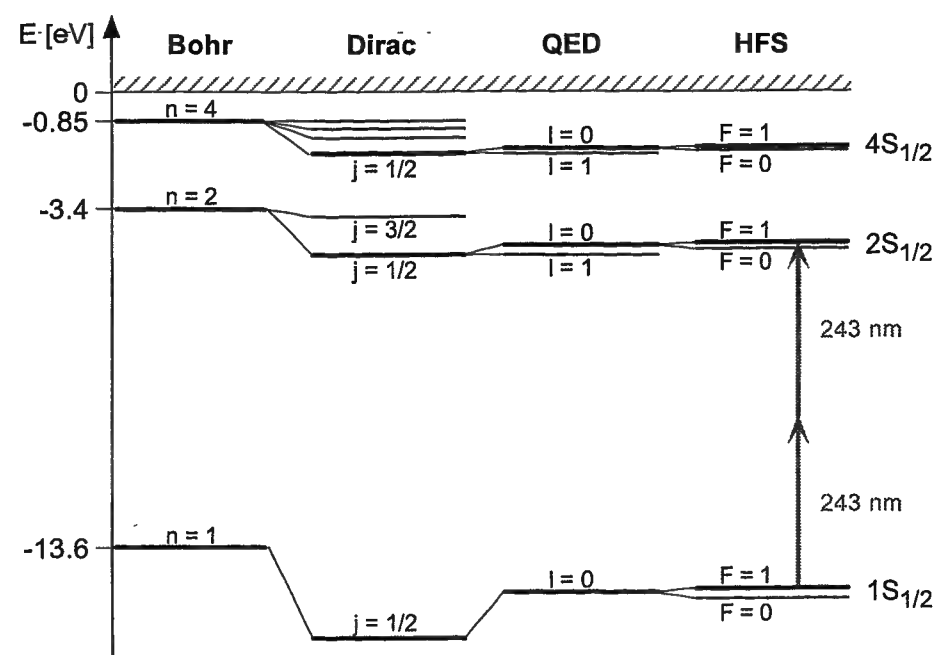


Abbildung 1.1: Schematische Darstellung der Energieniveaus mit den Hauptquantenzahlen $n=1,2,4$ in atomarem Wasserstoff. Aufgetragen sind die Strukturen der jeweiligen Niveaus beginnend mit dem Bohrschen-Atommodell (Bohr) über die Feinstruktur (Dirac) und die Lamb-Verschiebung (QED) bis zur Hyperfeinstruktur (HFS). Es ist zu beachten, daß die Auftragung nicht maßstabsgetreu ist. Der extrem langlebige $2S$ -Zustand besitzt eine Lebensdauer von einer $1/7$ s. Aus Symmetriegründen kann der $1S$ - $2S$ Übergang, mit einer natürlichen Linienbreite von 1.3 Hz, nur mit einer Zweiphotonen-Anregung induziert werden.

$1S$ -Lamb-Verschiebung heute den genauesten Test dieser äußerst erfolgreichen Theorie an einem gebundenen System dar. Zusammen mit dem schwereren Isotop Deuterium erlaubt der Unterschied in den optischen Spektren der beiden Atome sogar Einblicke in die Struktur der Kerne. Mit dieser sogenannten Isotopieverschiebung sind heute präzisere Angaben über den Strukturradius des Deuterons, bestehend aus einem Proton und einem Neutron, möglich als mit Experimenten an Teilchenbeschleunigern.

Den wichtigsten Beitrag zu der Bestimmung der fundamentalen Größen Rydberg-Konstante und $1S$ -Lamb-Verschiebung bildet der Übergang zwischen dem $1S$ -Grundzustand und dem metastabilen $2S$ -Zustand in atomarem Wasserstoff, der auch Gegenstand der hier vorliegenden Arbeit ist. Da die beiden Zustände gleiche Parität besitzen, handelt es sich bei dem $2S$ -Zustand um einen extrem langlebigen Zustand mit einer natürlichen Lebensdauer von $1/7$ s. Die damit verbundene natürliche Linienbreite des $1S$ - $2S$ Übergangs von nur 1.3 Hz beinhaltet ein enormes Potential für die Bestimmung eben solcher Größen. Optisch kann der $1S$ - $2S$ Übergang aus Symmetriegründen nur mit Hilfe zweier Photonen angeregt werden. Diese Tatsache wird

mit Hilfe der Doppler-freien Zweiphotonen-Spektroskopie ausgenutzt, bei der ein Atom gleichzeitig zwei Photonen der halben für diesen Übergang notwendigen Energie aus entgegengesetzten Richtungen absorbiert und sich somit der Doppler-Effekt erster Ordnung gerade aufhebt. Diese Art der Anregung bildet die notwendige Grundlage für das Ziel den $1S$ - $2S$ Übergang bis auf sein natürliches Potential von $5 \cdot 10^{-16}$ experimentell aufzulösen, von dem man heute nur noch drei Größenordnungen entfernt ist. Entscheidend ist dabei aber auch die Unterdrückung und Reduzierung weiterer den $1S$ - $2S$ Übergang verbreiternder und verschiebender Systematiken, wie es in dem hier vorgestellten Experiment zur Anregung eines kalten Wasserstoff-Atomstrahls mit einer bislang unerreichten Genauigkeit möglich ist.

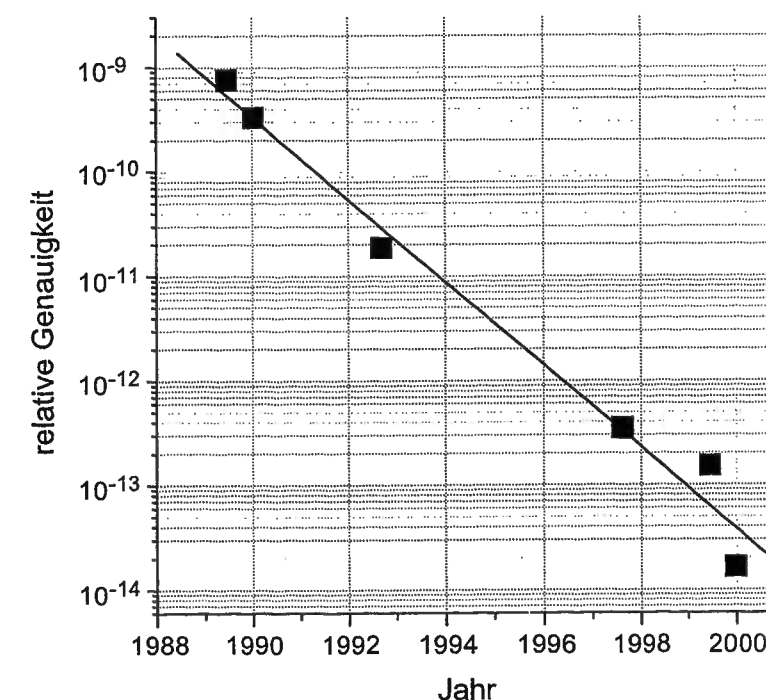


Abbildung 1.2: Relative Genauigkeiten verschiedener Absolutfrequenzmessungen des $1S$ - $2S$ Übergangs in atomarem Wasserstoff der letzten zehn Jahre. Deutlich zu erkennen ist die rasante Entwicklung, mit der die Auflösung des Zweiphotonen-Übergangs gesteigert werden konnte.

Eine entscheidende Größe zur Bestimmung der Rydberg-Konstante und der $1S$ -Lamb-Verschiebung bildet die Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs. Abbildung 1.2 zeigt eindrucksvoll die Entwicklung der Genauigkeit, mit der diese bestimmt werden kann. Möglich wurde dies zum einen durch ständig verbesserte spektroskopische Techniken zur Anregung des $1S$ - $2S$ Übergangs, zum anderen aber auch durch die Fortschritte bei der Bestimmung der $1S$ - $2S$ Absolutfrequenz durch einen phasenkohärenten Vergleich mit einem primären Frequenznormal, das seit 1967 durch einen Übergang in dem Cäsium-Isotop ^{133}Cs gebildet wird. Berücksichtigt man noch die Absolutfrequenz eines zweiten Übergangs, wie zum Beispiel des $2S$ - $8S$ bzw. $2S$ - $8D$ Übergangs, der bislang

von anderen Gruppen untersucht wurde, so können die Rydberg-Konstante und die 1S-Lamb-Verschiebung bestimmt werden. Eine genauere Angabe dieser beiden Größen kann nur durch die bessere Auflösung eines solchen zweiten Übergangs erreicht werden, da dieser momentan und auf absehbare Zeit den limitierenden Faktor darstellt.

Mit zunehmender Genauigkeit, mit der die Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs bestimmt werden kann, etabliert sich atomarer Wasserstoff in steigendem Maß als einer der aussichtsreichsten Kandidaten für einen optischen primären Frequenzstandard. Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit ist die Messung der Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs mit einer Genauigkeit von $1.8 \cdot 10^{-14}$. Auf längere Sicht könnte die Spektroskopie am Wasserstoffatom eine genauere Definition der Zeit erlauben, was nicht nur im Bereich der Grundlagenforschung von großem Nutzen wäre. Bei der Klärung von weiterreichenden Fragestellungen könnte atomarer Wasserstoff auch in Zukunft wichtige Beiträge liefern. Dabei geht es zum einen um die Frage nach der Konstanz der Naturkonstanten. Durch über die Jahre hinweg wiederholte Messungen der Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs könnte die mögliche Veränderung der daraus bestimmten Naturkonstanten Aufschluß über diese Frage geben. Aber auch der Vergleich der Frequenzen des 1S-2S Übergangs von Wasserstoff und Antiwasserstoff bildet einen fundamentalen Test eines wichtigen Erhaltungssatzes des heutigen Standardmodells. Derzeit wird am europäischen Forschungslabor CERN die Erzeugung von Antiwasserstoff untersucht. Mit einem Vergleich der Übergangsfrequenzen von Wasserstoff und Antiwasserstoff könnte die Invarianz eines gebundenen Systems unter einer CPT-Transformation genauer überprüft werden.

Im folgenden wird ein kurzer Überblick über den Aufbau der vorliegenden Arbeit gegeben. Im zweiten Kapitel wird ausgehend vom Bohrschen-Atommodell und weiter über die Dirac-Theorie kurz die Theorie zur Beschreibung der Energieniveaus in atomarem Wasserstoff vorgestellt. Zur Berechnung der Lamb-Verschiebung werden Korrekturterme angegeben, die sich nach heutigem Stand der Kenntnis aus der QED ergeben. Anschließend wird die Technik der Doppler-freien Zweiphotonen-Spektroskopie beschrieben, welche die Grundlage der in dieser Arbeit durchgeführten Messungen der Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs in atomarem Wasserstoff darstellt. Das dritte Kapitel gibt dann einen Überblick über den aktuellen experimentellen Stand des Wasserstoff-Spektrometers, wobei auch kurz die für die Messung der Absolutfrequenz eingesetzte Frequenzkette zusammen mit dem primären Frequenznormal, einer Cäsium-Atomuhr, beschrieben werden. Die spektroskopischen Techniken zur Anregung des Doppler-freien 1S-2S Zweiphotonen-Übergangs sind Gegenstand des vierten Kapitels. In diesem werden auch Experimente zur Ramsey-Spektroskopie sowie dem direkten Vergleich der 1S-2S und 2S-4S Übergangsfrequenzen vorgestellt. Das fünfte Kapitel gibt sowohl einen Überblick über ein theoretisches Modell zur Beschreibung der experimentellen 1S-2S Spektren als auch über die wichtigsten systematischen Effekte, die die Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs betreffen. Eine neue Messung der 1S-2S Absolutfrequenz ist Inhalt des sechsten Kapitels. Hier findet sich eine detaillierte Übersicht über die Auswertung und die Ergebnisse dieser Messung. Das siebte Kapitel gibt schließlich einen Ausblick auf mögliche zukünftige Projekte und Experimente.

Kapitel 2

Theorie des Wasserstoffatoms

Atomarer Wasserstoff ist das am einfachsten aufgebaute stabile Atom. Es besteht aus dem gebundenen System von nur einem Proton und einem Elektron. In der Vergangenheit, wie auch heute, spielt Wasserstoff eine fundamentale Rolle bei der Entwicklung von Gesetzmäßigkeiten, die den Aufbau der Atome beschreiben und zum Verständnis über die Struktur der Materie beitragen. Das folgende Kapitel gibt einen Überblick über die heutigen Vorstellungen zur inneren Struktur des Wasserstoffatoms und kann nur einen Abriß über ein, sich mittlerweile seit mehr als einem Jahrhundert rasant entwickelndes, Feld darstellen.

Ausgangspunkt ist die Entdeckung der Balmer-Formel im Jahr 1885, die es ermöglichte die zahlreichen, am atomaren Wasserstoff entdeckten, optischen Spektren in eine gemeinsame Beziehung zu bringen. Deren Erklärung blieb aber lange Zeit offen und konnte erst mit der Entwicklung der Quantenmechanik durch Schrödinger und Heisenberg gegeben werden. Der erste Teil dieses Kapitels geht darauf ein, wie mit Hilfe der von ihnen angegebenen Bewegungsgleichungen das einfache Modell eines Wasserstoffatoms, ein Elektron im Coulombfeld eines punktförmigen, unendlich schweren Protons, vollständig analytisch gelöst werden kann. Das Ergebnis sind diskrete Energieniveaus, die bezüglich Bahn- und Gesamtdrehimpuls des Elektrons entartet sind. Selbst Rückstoßkorrekturen aufgrund einer endlichen Kernmasse können mit Hilfe dieser Gleichungen vollständig analytisch berechnet werden. Im zweiten Teil wird geschildert, wie durch Diracs Beschreibung des Elektrons als ein relativistisches Teilchen die Entartung bezüglich des Gesamtdrehimpulses aufgehoben und die Erklärung für die sogenannte Feinstruktur gegeben wird. Die analytische Lösung der Dirac-Gleichung ist aber nur für den Fall eines unendlich schweren Kerns möglich, so daß Rückstoßkorrekturen nur noch mit Hilfe einer Störungsrechnung angegeben werden können. Dabei treten in höheren Ordnungen erstmals Terme auf, die die verbleibende Entartung im Bahndrehimpuls aufheben und nicht mehr quadratisch, sondern mit der dritten Potenz der Hauptquantenzahl skalieren. Aus diesem Grund werden diese Terme zur Lamb-Verschiebung gerechnet, die den Inhalt des dritten Teils bildet. Dort werden weitere Effekte aufgeführt, die nach heutigem Stand der Kenntnis einen Beitrag zur Lamb-Verschiebung liefern.

Der vierte Teil behandelt die Hyperfeinstruktur, die eine Folge der Wechselwirkung des Elektrons mit dem magnetischen Dipol- und elektrischen Quadrupolmoment des Kerns ist. Damit können die Energieniveaus des Wasserstoffatoms als die Summe der folgenden drei Beiträge beschrieben werden:

$$E_{n,l,j,F} = E_{Dirac}(n,j) + E_{Lamb}(n,l,j) + E_{HFS}(n,l,j,F). \quad (2.1)$$

Dabei bezeichnen n die Hauptquantenzahl, l und j die Bahn- und Gesamtdrehimpulsquantenzahl und F die Hyperfeinquantenzahl. Der fünfte Teil stellt schließlich die Grundlage der in dieser Arbeit durchgeführten experimentellen Techniken zur Bestimmung der Energieniveaus vor.

2.1 Bohrsche-Energieniveaus

Bereits im Jahr 1853 konnte Ångström die stärkste Linie des Wasserstoffspektrums im sichtbaren Bereich ($\lambda = 656.3$ nm) entdecken. Balmer fand später heraus, daß die Wellenlängen des Wasserstoffspektrums durch folgende, etwas verallgemeinerte, Formel wiedergegeben werden:

$$\frac{1}{\lambda} = R_H \cdot \left(\frac{1}{n'^2} - \frac{1}{n^2} \right) \text{ mit } n' < n, \text{ ganzzahlig.} \quad (2.2)$$

Dabei geht die äußerst wichtige Naturkonstante R_H , die Rydberg-Konstante, als fundamentale Größe ein.

Erst mit der Entwicklung der Quantenmechanik durch Schrödinger und Heisenberg konnte diese Beziehung vollständig erklärt werden. Ausgangspunkt der Überlegungen ist die Lösung der stationären Schrödingergleichung

$$\mathcal{H}_S \psi(\underline{r}) = E \psi(\underline{r}) \quad (2.3)$$

für das Wasserstoffatom als ein gebundenes System, bei dem sich das Elektron im Zentralpotential des Coulombfelds des punktförmigen, unendlich schweren Protons bewegt. Die Wellenfunktion am Ort $\underline{r}$ wird mit $\psi(\underline{r})$ bezeichnet, und der Hamiltonoperator $\mathcal{H}_S$ setzt sich aus einem kinetischen Teil und dem Zentralpotential

$$V(\underline{r}) = -\frac{Z e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \quad (2.4)$$

zusammen, wobei e die Elementarladung und ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante bezeichnen. Die Kernladungszahl Z kann zwar für atomaren Wasserstoff gleich eins gesetzt werden, soll hier aber allgemein bezeichnet werden. Die Lösung von Gleichung 2.3 liefert für den gebundenen Teil die n^2 -fach entarteten, diskreten Energieniveaus E_n , die quadratisch mit der Hauptquantenzahl n skalieren:

$$E_n = -R_\infty h c \cdot \frac{Z^2}{n^2} = -\frac{(Z\alpha)^2}{2n^2} m_e c^2 = -E_0 \cdot \frac{Z^2}{n^2}, \quad n \text{ ganzzahlig.} \quad (2.5)$$

Dabei bezeichnet m_e die Ruhemasse des Elektrons, $\alpha = e^2/2\epsilon_0 h c \cong 1/137$ die Feinstrukturkonstante, c die Lichtgeschwindigkeit und h das Plancksche Wirkungsquantum. Die Rydberg-Konstante R_∞ für einen unendlich schweren Kern ist durch

$$R_\infty = \frac{m_e e^4}{8\epsilon_0^2 h^3 c} \quad (2.6)$$

gegeben. Der tiefste gebundene Zustand liegt bei $E_1 = -E_0 = -13.6$ eV. Damit kann das durch die Balmer-Formel 2.2 beschriebene Wasserstoffspektrum durch Übergänge des Elektrons zwischen den nach Gleichung 2.5 gegebenen Zuständen erklärt werden. Bei genauerer Betrachtung zeigt es sich, daß für einen endlich schweren Kern noch die Kernmitbewegung berücksichtigt werden muß. Die Form von Gleichung 2.5 bleibt dabei erhalten, wobei die Masse m_e des Elektrons durch die reduzierte Masse μ , mit

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_p} \quad (2.7)$$

und m_p der Protonenmasse, ersetzt werden muß. Damit ergibt sich der Zusammenhang zwischen R_H aus Gleichung 2.2 und R_∞ zu $R_H = R_\infty \cdot \mu/m_e$, so daß die grobe Struktur des Wasserstoffatoms geklärt ist.

2.2 Feinstruktur

Schon 1887 entdeckten Michelson und Morley, daß die Linien des Wasserstoffspektrums aufspalten. Zur Erklärung dieser sogenannten Feinstruktur, muß das Elektron relativistisch behandelt werden. Dies gelingt mit Hilfe der Dirac-Gleichung, die sich durch Linearisierung der relativistisch verallgemeinerten Schrödingergleichung ergibt. Zunächst wird wieder vereinfacht von einem unendlich schweren, punktförmigen Kern ausgegangen, so daß Rückstoßeffekte noch nicht berücksichtigt werden. Formal hat die Dirac-Gleichung mit dem Dirac-Operator $\mathcal{H}_D$

$$\mathcal{H}_D \psi(\underline{r}, t) = E \psi(\underline{r}, t) \quad (2.8)$$

die gleiche Form wie die Schrödingergleichung, wobei der Operator $\mathcal{H}_D$ hier nicht explizit angegeben werden soll. Um Orts- und Zeitkoordinaten gleichberechtigt zu behandeln, setzt sich dieser aus den in der Relativitätstheorie eingeführten elektromagnetischen Viererpotentialen zusammen. Daher bildet die Wellenfunktion $\psi(\underline{r}, t)$ einen Vierer-Vektor, auch Dirac-Spinor genannt. Es läßt sich zeigen, daß sich dieser aus zwei jeweils zweikomponentigen Teilen zusammensetzt. Diese lassen sich als das Elektron und sein Antiteilchen, das Positron, interpretieren, die entgegengesetzte Ladungen besitzen, ansonsten aber völlig identisch sind. Wichtiger ist an dieser Stelle, daß sich die Wellenfunktionen sowohl für das Elektron als auch das Positron aus zwei Komponenten zusammensetzen, dem sogenannten Spinor $\underline{s}$. Der Spin ist eine bislang nicht erkannte Eigenschaft des Elektrons mit der Folge, daß das Elektron ein permanentes magnetisches Moment $\underline{\mu} = \gamma \underline{s}$ besitzt, wobei γ das gyromagnetische Verhältnis bezeichnet. Mit

der Einführung des Spins kann nun auch die Feinstruktur des Wasserstoffspektrums als Wechselwirkung des Spins $\underline{s}$ mit dem Bahndrehimpuls $\underline{l}$ des Elektrons erklärt werden. Zusammen mit relativistischen Korrekturen ergibt sich somit folgender Ausdruck für die Energieniveaus des Wasserstoffatoms, wobei hier, wie in den folgenden Unterkapiteln, $c = \hbar = 1$ gesetzt wird:

$$E(n, j) = m_e \cdot f(n, j) \quad \text{mit} \quad f(n, j) = \left(1 + \frac{(Z\alpha)^2}{\left[n - j - \frac{1}{2} + \sqrt{\left(j + \frac{1}{2} \right)^2 - (Z\alpha)^2} \right]^2} \right)^{-1/2}. \quad (2.9)$$

Der Gesamtdrehimpuls j mit seiner Quantenzahl j setzt sich aus der Summe von Spin $\underline{s}$ und Bahndrehimpuls $\underline{l}$ zusammen. Die Energieniveaus in Gleichung 2.9 hängen jetzt nicht nur von der Hauptquantenzahl n sondern auch von der Gesamtdrehimpulsquantenzahl j ab, und sind daher nicht mehr in j , wohl aber noch in der Bahndrehimpulsquantenzahl l entartet.

Bisher wurde bei der Behandlung mit Hilfe der Dirac-Gleichung ein unendlich schwerer Kern angenommen, so daß wie im Fall der Schrödingergleichung eine vollständig analytische Lösung möglich ist. Im Gegensatz zur Schrödingergleichung kann die Kernmitbewegung aufgrund der endlichen Masse des Protons nicht mehr durch das alleinige Ersetzen der Elektronenmasse mit einer reduzierten Masse berücksichtigt werden. Es läßt sich für das relativistische Problem keine geschlossene Lösung mehr angeben, so daß man die nötigen Rückstoßkorrekturen nur noch in Form einer Reihe entwickeln kann. Wie im Fall von atomarem Wasserstoff kann diese Reihe nach Ordnungen der kleinen Größe $(Z\alpha)$ entwickelt werden. Die Feinstrukturkonstante α stellt gleichzeitig die Kopplungskonstante für elektromagnetische Wechselwirkungen dar. Bis zu einer Ordnung $(Z\alpha)^4$ läßt sich die Gesamtenergie wie folgt angeben [Sap90]:

$$E = m_p + m_e + \mu[f(n, j) - 1] - \frac{\mu^2}{2(m_p + m_e)}[f(n, j) - 1]^2 + \quad (2.10) \\ + \frac{(Z\alpha)^4 \mu^3}{2n^3 m_p^2} \left[\frac{1}{j + \frac{1}{2}} - \frac{1}{l + \frac{1}{2}} \right] (1 - \delta_{l0}).$$

Die beiden ersten Terme geben die Ruheenergie von Proton und Elektron an. Die beiden letzten Terme der ersten Zeile enthalten die ursprüngliche Abhängigkeit aus Gleichung 2.9 von der, in der Drehimpulsquantenzahl l entarteten, Funktion $f(n, j)$. Die Entartung wird durch den Term in der zweiten Zeile, in dem die Drehimpulsquantenzahl l vorkommt, aufgehoben. Aus diesem Grund und da dieser Term mit der dritten Potenz der Hauptquantenzahl n skaliert, wird er üblicherweise nicht, genauso wie die höheren Ordnungen, zu den Beiträgen der Dirac-Energie gezählt. Er bildet vielmehr einen Teil der Rückstoßkorrekturen der Lamb-Verschiebung, auf die im nächsten Teil eingegangen wird.

2.3 Lamb-Verschiebung

In den Jahren 1947-1952 wurde durch Experimente von Lamb und Retherford gezeigt [Lam47], daß auch die relativistische Dirac-Theorie (Kapitel 2.2) das Wasserstoffatom noch nicht vollständig beschreibt. Mit Hilfe von Radio- und Mikrowellenspektroskopie entdeckten sie eine bis dahin nicht klar beobachtete Aufspaltung der $2S_{1/2}$ - und $2P_{1/2}$ -Niveaus. Zwar tritt in der Dirac-Energie des Wasserstoffatoms nach Gleichung 2.10 ein Term auf, der die Entartung aufhebt, mit einem Betrag von nur 2 kHz aber von der beobachteten Aufspaltung mit 1 GHz weit entfernt ist. Diese Entdeckung war Anstoß zur Entwicklung der Quantenelektrodynamik (QED), die die Quantisierung elektromagnetischer Felder beschreibt. Im folgenden wird eine Übersicht über die heute zur Lamb-Verschiebung gerechneten Beiträge gegeben. Dabei kann es sich nur um eine aktuelle Zusammenfassung handeln, da die Berechnung immer höherer Korrekturterme Gegenstand aktueller Forschung ist, und daher ein bei weiten noch nicht abgeschlossenes Gebiet darstellt.

Die Beiträge zur Lamb-Verschiebung lassen sich im wesentlichen in drei Gruppen einteilen. Die erste Gruppe wird von reinen QED-Effekten gebildet, die sich aus der Annahme eines unendlich schweren, punktförmigen Kerns ergeben. Zu dieser Gruppe gehören die sogenannten Ein- und Zweischleifenkorrekturen, die als virtuelle Prozesse Folge der Quantisierung des Strahlungsfelds sind. Effekte, die die endliche Masse des Kerns berücksichtigen, bilden die zweite Gruppe. Diese setzt sich zum einen aus den reinen Rückstoßkorrekturen, die sich wie in Kapitel 2.2 erläutert aus den Beiträgen der Dirac-Energie ergeben, und den sogenannten strahlenden Rückstoßkorrekturen als Folge der QED zusammen. In der dritten Gruppe wird schließlich die Annahme eines punktförmigen Kerns aufgegeben und die Folge der endlichen Kerngröße berücksichtigt. Hier fließt auch die Selbstenergie des Kerns ein.

Die beiden größten Beiträge zur Lamb-Verschiebung sind als Folge der Quantisierung des Strahlungsfelds des Vakuums die Selbstenergie des Elektrons und die Vakuumpolarisation. Diese werden unter dem Begriff **Einschleifen-Korrekturen** zusammengefaßt. Die Selbstenergie bezeichnet dabei die Emission und Reabsorption eines virtuellen Photons durch das Elektron und die Vakuumpolarisation die spontane Bildung von Elektron-Positron-Paaren. Der Einschleifen-Beitrag zu den Energieniveaus ergibt sich dabei zu

$$\Delta E = \frac{m_e \alpha (Z\alpha)^4}{\pi n^3} \cdot F(Z\alpha). \quad (2.11)$$

Die Berechnungen lassen sich nur noch in Form von Korrekturen angeben, die sich für kleine Z , also insbesondere für Wasserstoff, nach $(Z\alpha)$ und $\ln[(Z\alpha)^{-2}]$ entwickeln lassen [Joh85]. Für $F(Z\alpha)$ ergibt sich dabei

$$F(Z\alpha) = A_{40} + A_{41} \ln \left[\frac{m_e}{\mu} (Z\alpha)^{-2} \right] + (Z\alpha) A_{50} + \quad (2.12) \\ + (Z\alpha)^2 \left\{ A_{60} + A_{61} \ln \left[\frac{m_e}{\mu} (Z\alpha)^{-2} \right] + A_{62} \ln^2 \left[\frac{m_e}{\mu} (Z\alpha)^{-2} \right] \right\} + (Z\alpha)^3 G,$$

wobei G sämtliche Terme höherer Ordnung enthält. Die Koeffizienten A_{ij} , mit den Indizes i und j für die Entwicklungen nach $(Z\alpha)$ und $\ln[(Z\alpha)^{-2}]$, ergeben sich nach aufwendigen Rechnungen zu [Pac96]:

$$\begin{aligned} A_{40} &= \left[\frac{10}{9} - \frac{4}{15} - \frac{4}{3} \ln k_0(n) \right] \left(\frac{\mu}{m_e} \right)^3 & A_{41} &= \frac{4}{3} \left(\frac{\mu}{m_e} \right)^3 \\ \ln k_0(1) &= 2.984\,128\,555\,7655 & \ln k_0(2) &= 2.811\,769\,893\,1205 \\ A_{50} &= 4\pi \left[\frac{139}{128} + \frac{5}{192} - \frac{1}{2} \ln 2 \right] \left(\frac{\mu}{m_e} \right)^3 \\ A_{60}(1) &= \left[-30.92890 + \frac{4}{15} \ln 2 - \frac{1289}{1575} + \left(\frac{19}{45} - \frac{\pi^2}{27} \right) \right] \left(\frac{\mu}{m_e} \right)^3 \\ A_{60}(2) &= \left[-31.84047 - \frac{743}{900} + \left(\frac{19}{45} - \frac{\pi^2}{27} \right) \right] \left(\frac{\mu}{m_e} \right)^3 \\ A_{61}(1) &= \left[\frac{28}{3} \ln 2 - \frac{21}{20} - \frac{2}{15} \right] \left(\frac{\mu}{m_e} \right)^3 & A_{61}(2) &= \left[\frac{16}{3} \ln 2 + \frac{67}{30} - \frac{2}{15} \right] \left(\frac{\mu}{m_e} \right)^3 \\ A_{62} &= -1 \left(\frac{\mu}{m_e} \right)^3 \\ G(n) &= \left\{ G'(n) + 2\pi \ln \left[\frac{m_e}{\mu} (Z\alpha)^{-2} \right] \right\} \left(\frac{\mu}{m_e} \right)^3 & G'(1) &= 26.9(5) \quad G'(2) = 29.8(10) \end{aligned}$$

In höheren Ordnungen ergeben sich die sogenannten **Zweischleifen-Korrekturen** der QED. Im Unterschied zu oben, werden dabei zwei virtuelle Prozesse betrachtet, wobei damit nicht mehr streng zwischen Selbstenergie und Vakuumpolarisation unterschieden werden kann. Der Energiebeitrag ist durch eine analoge Entwicklung zu

$$\Delta E = \frac{m_e \alpha^2 (Z\alpha)^4}{\pi^2 n^3} \left\{ B_{40} + (Z\alpha) B_{50} + (Z\alpha)^2 \left[B_{62} \ln^2 \left[\frac{m_e}{\mu} (Z\alpha)^{-2} \right] + B_{63} \ln^3 \left[\frac{m_e}{\mu} (Z\alpha)^{-2} \right] + \dots \right] \right\} \quad (2.13)$$

gegeben. Der Koeffizient B_{40} ergibt sich für S -Zustände zu [Bar70]

$$B_{40} = 0.538941 \left(\frac{\mu}{m_e} \right)^3. \quad (2.14)$$

In [Pac94, Eid95] wird der überraschend große Koeffizient der höheren Ordnung angegeben:

$$B_{50} = -21.556(3) \left(\frac{\mu}{m_e} \right)^3. \quad (2.15)$$

Die Koeffizienten B_{62} und B_{63} sind zwar bereits bekannt [Kar93, Kar95], werden aber trotzdem nicht bei der Berechnung der theoretischen Lamb-Verschiebung berücksichtigt. Grund dafür ist, daß die Werte noch nicht unabhängig bestätigt wurden und im Fall von B_{62} zum heutigen Zeitpunkt erst unvollständig bekannt sind. In [Mal98]

wird darauf hingewiesen, daß eine Reihenentwicklung nach Potenzen von $(Z\alpha)$ möglicherweise nicht der geeignete Weg ist, da Terme verschiedener Ordnung ähnlich große Beiträge liefern. Diese fehlenden höheren Ordnungen limitieren die Genauigkeit, mit der die theoretische Lamb-Verschiebung angegeben werden kann.

Wie eingangs schon erwähnt, beruht die zweite Gruppe, die einen Beitrag zur Lamb-Verschiebung bildet, auf der endlichen Masse des bislang als unendlich schwer angenommenen Kerns. Dieser Beitrag wird als **Rückstoßkorrektur** bezeichnet, wobei zwei Teile unterschieden werden. Der erste Teil beinhaltet die sogenannten reinen Rückstoßkorrekturen und ergibt sich aus Termen höherer Ordnung der Dirac-Energie (Kapitel 2.2). Der erste Beitrag dieser reinen Rückstoßkorrektur wird, wie schon in Gleichung 2.10 angegeben, durch Terme der Ordnung $(Z\alpha)^4$ gebildet:

$$\Delta E = \frac{(Z\alpha)^4 \mu^3}{2n^3 m_p^2} \left[\frac{1}{j + \frac{1}{2}} - \frac{1}{l + \frac{1}{2}} \right] (1 - \delta_{l0}). \quad (2.16)$$

Der Term skaliert als Beitrag der Dirac-Energie mit $1/n^3$ und hebt die Entartung in der Bahndrehimpulsquantenzahl l auf. Aus diesem Grund werden dieser und alle Terme höherer Ordnung zur Lamb-Verschiebung gerechnet. Die nächsthöhere Ordnung ergibt sich nach E. Salpeter [Sal52] zu

$$\begin{aligned} \Delta E &= \frac{\mu^3 (Z\alpha)^5}{m_e m_p \pi n^3} \left\{ \frac{2}{3} \delta_{l0} \ln \left(\frac{1}{\alpha} \right) - \frac{8}{3} \ln k_0(n, l) - \frac{1}{9} \delta_{l0} - \frac{7}{3} a_n - \right. \\ &\quad \left. - \frac{2}{m_p^2 - m_e^2} \delta_{l0} \left[m_p^2 \ln \left(\frac{m_e}{\mu} \right) - m_e^2 \ln \left(\frac{m_p}{\mu} \right) \right] \right\}, \end{aligned} \quad (2.17)$$

mit

$$a_n = -2 \left(\ln \left(\frac{2}{n} \right) + \left(1 + \frac{1}{2} + \dots + \frac{1}{n} \right) + 1 - \frac{1}{2n} \right) \delta_{l0} + \frac{1 - \delta_{l0}}{l(l+1)(2l+1)}. \quad (2.18)$$

Dabei bezeichnet $\ln k_0(n, l)$ den Bethe-Logarithmus [Bet77] und wurde für $l = 0$ mit $n = 1$ und $n = 2$ bereits angegeben. Für die Ordnung $(Z\alpha)^6$ läßt sich die Korrektur zu

$$\Delta E = \frac{m_e^2 (Z\alpha)^6}{m_p n^3} \left(4 \ln 2 - \frac{7}{2} \right) \quad (2.19)$$

berechnen [Pac95].

Der zweite Teil der Rückstoßkorrekturen wird von Termen gebildet, die sich aus der QED für eine endliche Kernmasse ergeben und als **strahlende Rückstoßkorrekturen** bezeichnet werden. Diese wurden bereits zum Teil in den Gleichungen 2.11 und 2.13 durch die Faktoren $(\frac{\mu}{m_e})^3$ und $\frac{m_e}{\mu}$ berücksichtigt. Eine weitere Korrektur höherer Ordnung ergibt sich nach [Pac95a] zu

$$\Delta E = -\frac{\alpha (Z\alpha)^5 m_e^2}{m_p n^3} \cdot 1.364\,49. \quad (2.20)$$

Mit der letzten Gruppe wird schließlich die Annahme fallen gelassen, daß es sich bei dem Kern um ein punktförmiges Teilchen handelt. Als Korrekturen für die Energieniveaus ergeben sich die sogenannten **Kerngrößeneffekte**, die eine Folge des von einem punktförmigen Coulombpotential abweichenden Potentials im Kern sind. Vor allem S -Niveaus erfahren eine Verschiebung, da für diese die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons am Kernort von Null verschieden ist. Aber auch die Selbstenergie des Kerns wird in diese Korrektur einbezogen, da bei deren Berechnung die endliche Kerngröße berücksichtigt wird. Mit dem Ausdruck [Pac96]

$$\Delta E = \frac{2}{3n^3}(Z\alpha)^4 \mu^3 \langle r^2 \rangle + \frac{4(Z^2\alpha)(Z\alpha)^4 \mu^3}{3\pi n^3 m_p^2} \left\{ \ln \left[\frac{m_p}{\mu} (Z\alpha)^{-2} \right] - \ln k_0(n) \right\} \quad (2.21)$$

werden mit dem ersten Term die reinen Kerngrößeneffekte, und mit dem zweiten die Selbstenergie des Kerns berücksichtigt. Im ersten Term geht explizit der mittlere quadratische Radius der Ladungsverteilung $\langle r^2 \rangle$ im Kern ein. Dieser spielt eine wichtige Rolle, da seine Unsicherheit direkt in den Gesamtfehler der berechneten Lamb-Verschiebung eingeht. Die Größe des Ladungsradius r wurde bislang aus Streuexperimenten an Teilchenbeschleunigern bestimmt. Mit $r = 0.805(11)$ fm [Han63] und $r = 0.862(12)$ fm [Sim80] gibt es zwei sich widersprechende Werte, wobei für die spätere Messung eine neuere Analyse ($r = 0.877(24)$ fm [Won94]) durchgeführt wurde. In [Mer96] werden die Werte verschiedenster Experimente analysiert und ein Ladungsradius von $r = 0.847(8)$ fm berechnet. Durch eine neue Auswertung von Daten aus unterschiedlichen Messungen kann in [Ros99] ein Ladungsradius von $r = 0.880(15)$ fm angegeben werden. In [Kar98] wird diese Problematik ausführlich diskutiert. Auch im Fall der Kerngrößeneffekte können wieder Korrekturen höherer Ordnung angegeben werden [Fri97], die aber wie strahlende Kerngrößeneffekte [Pac93, Hub98] eine untergeordnete Rolle bei der Berechnung der Lamb-Verschiebung spielen, da ihre Größe kleiner als der Gesamtfehler ist. Aus diesem Grund werden diese hier nicht explizit angegeben.

Beitrag		1S-Zustand [kHz]	2S-Zustand [kHz]
Strahlungskorrekturen	Einschleifen	8181 285.5(2)	1046 061.43(4)
	[Selbstenergie]	[8396 453.9]	[1072 958.52(4)]
	Zweischleifen	721(24)	90.2(3)
Rückstoßkorrekturen	reine	2402.118(2)	340.3646(3)
	strahlende	-12 777.97(4)	-1 635.437(5)
Kerngröße		1 167(32)	145.8(4.0)
Summe		8172 798(32)(24)	1045 002.4(4.0)(3.0)

Tabelle 2.1: Theoretische Lamb-Verschiebung des 1S- und 2S-Zustands in atomarem Wasserstoff. Alle Werte sind in kHz angegeben. Die erste Fehlerangabe beruht auf der Ungenauigkeit im Proton-Ladungsradius [Sim80], die zweite ist auf noch unvollständig berechnete QED-Korrekturen höherer Ordnung zurückzuführen.

Tabelle 2.1 gibt einen Überblick über die unterschiedlichen Beiträge zur Lamb-Verschiebung [Hub97]. Angegeben sind die einzelnen Verschiebungen, wie sie sich aus den oben angegebenen Formeln ergeben. Zur Berechnung der Kerngrößeneffekte wird der Wert für den Ladungsradius aus [Sim80] verwendet. Die beiden Fehlergrenzen geben zum einen die Unsicherheit aus dem Ladungsradius und zum anderen den angenommenen Fehler aufgrund noch nicht berechneter Strahlungskorrekturen höherer Ordnung an.

2.4 Hyperfeinstruktur

Als Folge der Wechselwirkung des Elektrons mit dem magnetischen Dipol- und dem elektrischen Quadrupolmoment des Kerns ergibt sich eine weitere Aufspaltung der Energieniveaus, die Hyperfeinstruktur. Für die hier betrachteten S -Zustände verschwinden allerdings die Beiträge der elektrischen Wechselwirkung, so daß eine reine Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten vorliegt. Die Aufspaltung liegt um etwa drei Größenordnungen unter der der Feinstruktur, da das magnetische Moment des Protons um etwa diesen Betrag kleiner ist als das des Elektrons. Der resultierende Drehimpuls wird mit F bezeichnet und ergibt sich als Summe von Gesamtdrehimpuls J und Kernmoment I . Für S -Zustände des Wasserstoffatoms können sich das Kernmoment ($I = 1/2$) und das elektrische Moment ($J = 1/2$) nur parallel oder antiparallel ausrichten, was zu den beiden möglichen Werten $F = 0$ und $F = 1$ führt. Die Aufspaltung wird durch den Fermi-Kontaktterm zu

$$E_{HFS} = \frac{(Z\alpha)^2 Z g m_e}{n^3 m_p} (1 + \delta) R_\infty \frac{F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)}{J(J+1)(2L+1)} \quad (2.22)$$

angegeben [Bet77, Bea86]. Mit $g = 5.56$ wird das anomale magnetische Moment des Protons und mit δ (Größenordnung 10^{-3}) eine kleine Korrektur bezeichnet, die unter anderem das anomale magnetische Moment des Elektrons berücksichtigt.

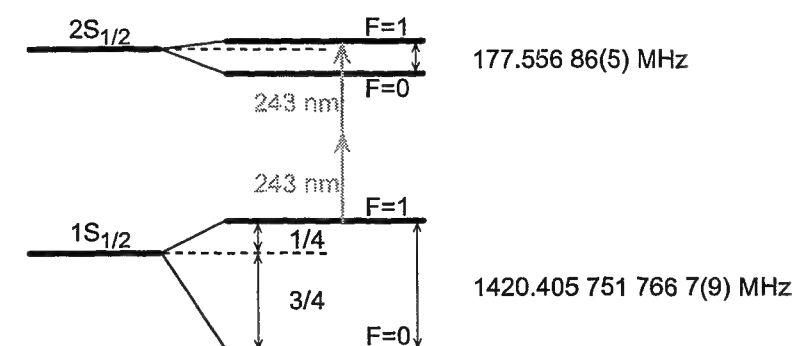


Abbildung 2.1: Hyperfeinstruktur des 1S-Grund- und metastabilen 2S-Zustands. Angezeigt wird der Übergang zwischen den Hyperfeinniveaus mit der Quantenzahl $F=1$.

Die Aufspaltungen sind sehr genau vermessen. So bildet zum Beispiel die Hyperfeinstruktur des $1S$ -Grundzustands den Übergang des Wasserstoffmasers. Daher können die aus der Radiofrequenzspektroskopie bekannten Werte zur Korrektur der optisch gemessenen Übergangsfrequenzen verwendet werden. Die Zentroidfrequenz des Übergangs, also die Übergangsfrequenz zwischen den Schwerpunkten der Hyperfeinniveaus, läßt sich mit Hilfe der Landéschen Intervallregel angeben [Sob92].

Wie in Abbildung 2.1 dargestellt, wird im Experiment der Übergang $1S_{1/2}(F=1)$ nach $2S_{1/2}(F=2)$ angeregt. Aus den dort angegebenen Werten [Ess71, Heb56] für die Hyperfeinstruktur läßt sich die Korrektur, die zu der gemessenen Frequenz des Übergangs $1S_{1/2}(F=1) \rightarrow 2S_{1/2}(F=1)$ addiert werden muß, um die Zentroidfrequenz zu erhalten, zu

$$\Delta f_{HFS} = 310\,712\,223(13)\text{Hz} \quad (2.23)$$

angeben.

2.5 Zweiphotonen-Spektroskopie am Wasserstoffatom

Die Energieniveaus in atomarem Wasserstoff werden in der hier vorliegenden Arbeit mit Hilfe optischer spektroskopischer Methoden untersucht. Der Übergang des $1S$ -Grundzustands in den metastabilen $2S$ -Zustand bietet mit seiner natürlichen Linienbreite von nur 1.3 Hz ein hohes natürliches Potential für eine Reihe von Präzisionsexperimenten. Um eine möglichst hohe Auflösung des $1S$ - $2S$ Übergangs zu erreichen, ist es notwendig eine Doppler-freie Technik anzuwenden, da sonst die experimentelle Linienbreite im GHz-Bereich liegen würde. Wegen der gleichen Parität von $1S$ - und $2S$ -Zustand ist der Übergang dipolverboten, so daß nur eine Zweiphotonen-Anregung mit folgenden Auswahlregeln stattfinden kann:

$$\begin{aligned} \Delta L &= 2, \text{ oder} \\ \Delta L &= 0, \text{ dann } \Delta F = 0 \text{ und } \Delta m_F = 0. \end{aligned}$$

Der Bahndrehimpuls L darf sich also nur geradzahlig um Null oder Zwei ändern, wobei sich für Null zusätzlich die Hyperfeinquantenzahl F und die Magnetquantenzahl m_F nicht ändern dürfen. Werden die beiden Photonen, mit jeweils der halben für den Übergang notwendigen Energie aus entgegengesetzten Richtungen absorbiert, hebt sich der Doppler-Effekt erster Ordnung gerade auf, so daß die Anregung Doppler-frei stattfindet [Vas70, Cag73]. Als ein Nachteil erweist sich jedoch die bei gleicher Lichtleistung geringe Anregungsrate pro Atom, da zwei Photonen gleichzeitig absorbiert werden müssen. So sind zur Beobachtung des $1S$ - $2S$ Übergangs vergleichsweise hohe Lichtleistungen notwendig.

Bezeichne $|i\rangle$ den Grund- und $|f\rangle$ den angeregten Zustand gleicher Parität, so ist die Anregungsrate R_{if} für einen Doppler-freien Zweiphotonen-Übergang durch eine

Störungsrechnung zweiter Ordnung zu

$$R_{if} \propto |IM_{if}|^2 \cdot \frac{\Gamma}{(2\omega - \omega_{if}) + (\Gamma/2)^2} \quad \text{mit} \quad (2.24)$$

$$M_{if} = \sum_n \frac{\langle f | \underline{e} \cdot \underline{p} | n \rangle \langle n | \underline{e} \cdot \underline{p} | i \rangle}{\omega - \omega_{in}} \quad (2.25)$$

gegeben [Gar90]. Dabei bezeichne I die Intensität des Lichtfelds mit der Frequenz ω und der Polarisation $\underline{p}$, Γ die natürliche Linienbreite und $\omega_{if} = (E_i - E_f)/\hbar$ die Frequenz des Übergangs. Das Skalarprodukt $\underline{e} \cdot \underline{p}$ reduziert sich für eine linear polarisierte Welle in diesem Fall zu $e \cdot z$. Das Matricelement M_{if} ergibt sich aus der Summe der Dipolmatricelemente über alle möglichen Zwischenzustände $|n\rangle$, den gebundenen P - und Kontinuumszuständen. Es läßt sich als

$$M_{if} = \frac{e^2 a_0^2 \hbar}{\alpha^2 m_e c^2} \cdot \gamma \quad (2.26)$$

angeben, wobei die atomaren Größen mit ihrem üblichen Namen bezeichnet sind. Für den Doppler-freien $1S$ - $2S$ Zweiphotonen-Übergang in atomarem Wasserstoff ergibt sich für γ der Zahlenwert $\gamma = 7.85$ [Bas77]. Man beachte, daß sich im Gegensatz zur Einphotonen-Anregung bei Zweiphotonen-Übergängen eine quadratische Abhängigkeit der Übergangsrate von der Intensität ergibt.

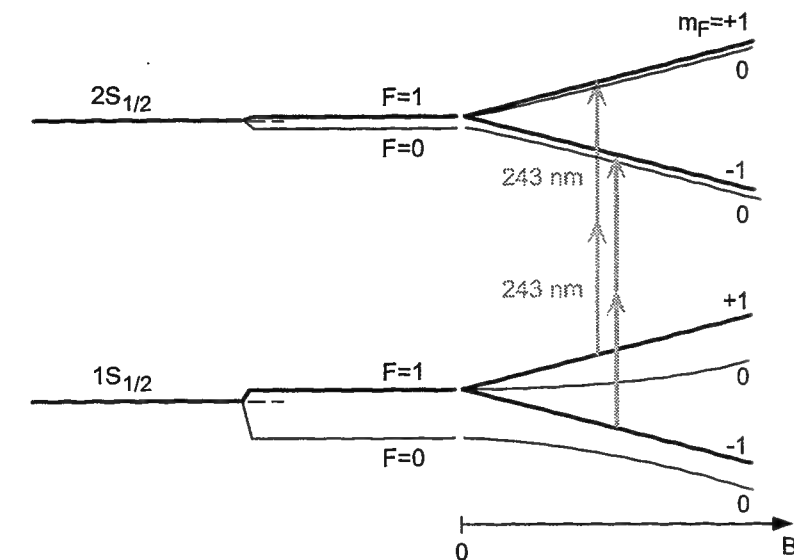


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Hyperfeinniveaus und der Aufspaltung ihrer Zeeman-Unterniveaus in einem äußeren Magnetfeld. Im Rahmen der hier beschriebenen Experimente wurden die eingezeichneten, nicht magnetfeldabhängigen Übergänge, angeregt.

Nach den, für Zweiphotonen-Spektroskopie geltenden Auswahlregeln, sind für die Anregung der $1S$ - $2S$ Resonanz in atomarem Wasserstoff nur Übergänge zwischen Hy-

perfeinniveaus gleicher Quantenzahl F und gleicher Magnetquantenzahl m_F erlaubt. In einem äußeren Magnetfeld spalten die Zeeman-Unterniveaus des Übergangs auf, so daß Restmagnetfelder zu einer Verschiebung und inhomogenen Verbreiterung führen können. Daher wird im Experiment ein kleines Magnetfeld von wenigen Gauß parallel zur Polarisationsachse des anregenden Laserlichtfelds angelegt, um den magnetfeldsensitiven deutlich von dem unsensitiven Teil zu trennen. Wie Abbildung 2.2 zeigt, wird nur der Übergang $1S_{1/2}(F=1, m_F=\pm 1) \rightarrow 2S_{1/2}(F=1, m_F=\pm 1)$ induziert. Dieser ist nicht von einem äußeren Magnetfeld abhängig, da die entsprechenden Zeeman-Unterniveaus in den beiden Hyperfeinzuständen $1S_{1/2}(F=1)$ und $2S_{1/2}(F=1)$ mit gleicher Steigung verschoben werden. Relativistische und quantenelektrodynamische Effekte haben jedoch zur Folge, daß die Steigungen der Komponenten mit $m_F = +1$ und $m_F = -1$ im $1S$ - und $2S$ -Zustand nicht exakt gleich sind. Unter der Annahme einer Gleichbesetzung der Zeeman-Niveaus führt dies lediglich zu einer Aufspaltung des Übergangs, nicht aber zu einer Verschiebung des Schwerpunkts der beiden $m_F = \pm 1$ -Komponenten. Im Rahmen der Diskussion systematischer Effekte in Kapitel 5.2 wird darauf noch einmal gesondert eingegangen.

Kapitel 3

Experimenteller Aufbau

Zur Bestimmung der beiden wichtigen Größen Rydberg-Konstante und $1S$ -Lamb-Verschiebung werden hohe Anforderungen an die experimentellen Techniken gestellt. Der Weg, um den zu ihrer Bestimmung nötigen $1S$ - $2S$ Übergang in atomarem Wasserstoff mit der heute möglichen Präzision aufzulösen, ist von ständiger Weiterentwicklung geprägt. Den Grundstein für das Wasserstoff-Spektrometer am Max-Planck-Institut für Quantenoptik legten C. Zimmermann [Zim90] und R. Kallenbach [Kal90] im Rahmen ihrer Dissertationen. In den darauffolgenden Arbeiten von F. Schmidt-Kaler [Sch92], D. Leibfried [Lei95], A. Huber [Hub97], B. Gross [Gro98] und der vorliegenden Arbeit wurde das Spektrometer fortlaufend verbessert und weiterentwickelt. Das Spektrometer wird aus einem kalten Wasserstoff-Atomstrahl gebildet, der mit Hilfe Doppler-freier Zweiphotonen-Spektroskopie angeregt wird. Das dazu nötige UV-Licht bei 243 nm wird durch Frequenzverdopplung des Lichts eines hochstabilen Farbstofflasers erzeugt. Zur Anregung des Atomstrahls in einer Vakuumkammer wird das UV-Licht in einen linearen Überhöhungsresonator eingekoppelt, der kollinear zum Atomstrahl ausgerichtet wird. Am Ende der Wechselwirkungsregion werden die im angeregten $2S$ -Zustand befindlichen Atome nachgewiesen, indem ein kleines elektrisches Feld den $2S$ - und $2P$ -Zustand mischt, so daß die Atome spontan in den $1S$ -Grundzustand übergehen. Die dabei ausgesandten L_α -Photonen dienen als Nachweis und können mittels eines Photomultipliers aufgenommen werden. Dieser Aufbau bildet die experimentelle Grundlage für die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs in atomarem Wasserstoff.

Im ersten Teil dieses Kapitels wird das Wasserstoff $1S$ - $2S$ Spektrometer im einzelnen vorgestellt und beschrieben. Die Messungen der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs in atomarem Wasserstoff sind nur in Zusammenarbeit mit einem zweiten Labor, in dem eine phasenkohärente Frequenzkette zur Verfügung steht, möglich geworden. Der zweite Teil gibt einen Überblick über die Frequenzkette, die zu dem Zeitpunkt der hier entstandenen Messungen von J. Reichert, R. Holzwarth und T. Udem betrieben wurde. Diese Kette ermöglicht als optisches Getriebe den phasenkohärenten Vergleich der Wasserstoff $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenz mit einer Cäsium-Atomuhr als Frequenznormal.

Die für die Messungen verwendeten Cäsium-Atomuhren werden im dritten Teil des Kapitels vorgestellt.

3.1 Wasserstoff-Spektrometer

Der experimentelle Aufbau des Wasserstoff 1S-2S Spektrometers ist in Abbildung 3.1 schematisch dargestellt. Da der 1S-2S Übergang in atomarem Wasserstoff dipolverboten ist, werden die Atome mittels Zweiphotonen-Spektroskopie angeregt. Den Ausgangspunkt dafür bildet ein hochstabiler Farbstofflaser. Dabei handelt es sich um einen kommerziellen Ringlaser (Coherent CR 699), der mit dem Laserfarbstoff Coumarin 102 bei der Wellenlänge 486 nm betrieben wird und von einem Kryptonionen-Laser (Coherent Innova 100) gepumpt wird. Mit einer Pumpleistung zwischen fünf und sechs Watt erreicht der Farbstofflaser mit frischem Laserfarbstoff eine maximale Ausgangsleistung zwischen 600 und 700 mW. Wie in Abbildung 3.1 dargestellt wird der Ringresonator von vier Spiegeln gebildet. Damit der Laser auf einer Mode läuft und durchstimmbar ist, befinden sich ein Lyotfilter und mehrere Etalons verschiedener Dicke als frequenzselektive Elemente im Strahlengang.

Die Spektroskopie am 1S-2S Übergang in atomarem Wasserstoff stellt hohe Anforderungen an die Frequenzbreite und Drift des Laser. Um beides möglichst gering zu halten, wird der Laser extern über eine Regelschleife auf einen hochstabilen Referenzresonator, einem passivem Fabry-Perot-Resonator, stabilisiert. Die Stabilisierung beruht auf einer Radiofrequenz-Methode nach Pound, Drever und Hall [Dre84], bei der dem Licht Seitenbänder aufgeprägt werden. Wie in Abbildung 3.1 skizziert, wird dazu ein Teil des Ausgangslichts des Farbstofflasers mit Hilfe eines elektro-optischen Modulators (EOM) mit einer Radiofrequenz von ungefähr 20 MHz moduliert. Das so modulierte Licht wird dann in den Referenzresonator eingekoppelt, wobei die Seitenbänder aufgrund der geringen spektralen Breite des Resonators einfach reflektiert werden. Das Licht, das aus dem Resonator wieder austritt, wird zusammen mit den beiden reflektierten Seitenbändern auf einer schnellen Photodiode überlagert und elektronisch bei der Modulationsfrequenz des EOM phasensensitiv demoduliert. Das auf diese Weise erhaltene dispersive Signal wird dann auf verschiedene Stellelemente innerhalb des Laserresonators gegeben, so daß insgesamt eine Regelbandbreite von 1.5 MHz erreicht wird. Das Regelsignal wird dabei in drei verschiedene Regelbereiche aufgeteilt, die alle auf die Länge des Resonators Einfluß nehmen. Für den unteren Frequenzbereich wird ein Galvoplättchen, das auf einem kleinen Motor montiert ist, im Strahlengang gedreht. Der mittlere Frequenzbereich wird mit Hilfe einer kleinen Piezokeramik, auf der ein Hochreflektor des Laserresonators aufgebracht ist, geregelt. Ein EOM ist für den hohen Frequenzbereich zuständig, der vor allem schnelle durch kleine Bläschen im Farbstoffstrahl bedingte Fluktuationen ausregelt.

Die Stabilität des Lasers ist mit diesem Aufbau durch die Stabilität des Referenzresonators gegeben. Um diesen möglichst stabil und driftarm aufzubauen, ist sowohl eine

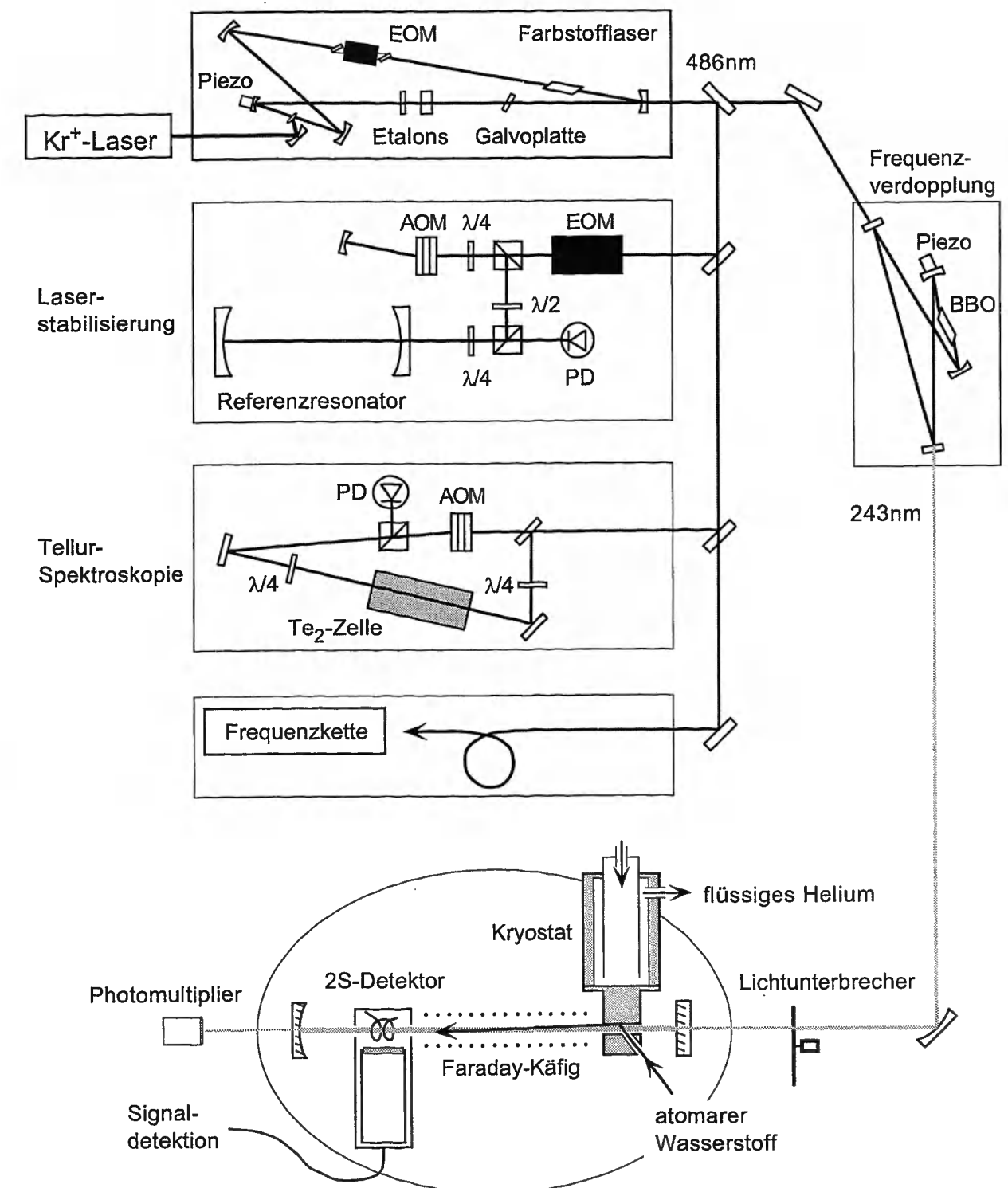


Abbildung 3.1: Experimenteller Aufbau des Wasserstoff 1S-2S Spektrometers.

sehr gute passive als auch aktive Stabilisierung notwendig. Der Resonator selbst wird aus einem 45 cm langen Zerodurstab, einem Spezialglas (Schott) mit besonders geringem thermischen Ausdehnungskoeffizienten, gebildet. Der Zerodurstab besitzt eine Längsbohrung, an deren Ende jeweils ein gekrümmter Spiegel ($r = -1000$ mm) optisch aufkontaktiert ist. Der so gebildete Fabry-Perot-Resonator erreicht eine gemessene Finesse von 56000, entsprechend einer Linienbreite von 5.6 kHz und einem Modenabstand von 333 MHz. Um die Temperaturschwankungen und akustischen Störungen, die auf den Zerodurstab einwirken, auf ein Minimum zu reduzieren, ist dieser in einer Hochvakuum-Kammer an langen Spiralfedern aufgehängt, die von einer Ionengetter-Pumpe auf einem Vakuum von etwa 10^{-9} mbar gehalten wird. Die Federn wirken mit ihrer Resonanzfrequenz von 1.5 Hz als Tiefpaß, so daß Erschütterungen oberhalb dieser Frequenz stark unterdrückt werden. Der Vakuumtank ist mit einer Heizfolie umwickelt, die mit Hilfe eines Temperaturreglers angesteuert wird und verbleibende Restschwankungen aufgrund der Änderung der Raumtemperatur ausregelt. Das ganze System befindet sich schließlich noch innerhalb einer Kiste, die mit Dämmmaterial aufgefüllt ist, um akustische Störungen und Temperaturschwankungen schon möglichst stark passiv zu dämpfen. Mit diesem Aufbau läßt sich die Linienbreite des Lasers aus gemessenen Wasserstoff 1S-2S Spektren (Kapitel 4) zu 400 Hz als obere Grenze abschätzen. Die Laserfrequenz driftet mit wenigen Hz/s aufgrund von Längenänderungen des Resonators, die mit Raumtemperaturschwankungen korreliert sind. Damit der Laser mit diesem Aufbau durchgestimmt werden kann, wird der Strahl zweimal durch einen akusto-optischen Modulator (AOM) umgelenkt, bevor er in den Resonator eingekoppelt wird. Bezeichnet f_{AOM} die Trägerfrequenz des AOMs, so wird mit der beschriebenen Regelschleife die Summe $2f_{AOM} + f_{Laser} = f_{Resonator}$ auf eine Mode des Resonators stabilisiert. Damit wird durch Veränderung der AOM-Frequenz f_{AOM} die Frequenz des Farbstofflasers f_{Laser} verändert.

Um den Laser auf die für die Zweiphotonen-Spektroskopie an atomarem Wasserstoff nötige Wellenlänge zu stellen, werden zwei Frequenzstandards verwendet. Zum einen wird ein kommerzielles Wellenlängenmeßgerät (Burleigh Wavemeter) verwendet, mit dem der Laser grob auf die richtige Wellenlänge gestellt wird. Da die Auflösung dieses Wellenlängenmeßgeräts nur 300 MHz beträgt und dies auf keinen Fall ausreicht, um die Laserfrequenz in die Nähe der schmalen 1S-2S Resonanz zu stellen, wird zusätzlich das Spektrum des Tellur Moleküls $^{130}\text{Te}_2$, das ähnlich wie Jod eine große Zahl von Resonanzen aufweist, als Frequenzmarke verwendet. Abbildung 3.1 zeigt den verwendeten Aufbau einer Sättigungsspektroskopie. Dabei wird ein kleiner Teil des Laserlichts in einen Probe- und einen Pumpstrahl aufgeteilt und in entgegengesetzten Richtungen durch eine geheizte Tellur-Zelle gestrahlt. Der Probestrahl wird mit Hilfe einer Photodiode phasensensitiv aufgenommen, während der Pumpstrahl mittels eines AOMs um 50 MHz verschoben ein- und ausgeschaltet wird. Das so erhaltene Sättigungsspektrum wurde von D. H. McIntyre kalibriert [McI90], und liefert den Abstand von 16 MHz einer Resonanz i_2 in $^{130}\text{Te}_2$ zum 1S-2S Übergang. Damit läßt sich die Laserfrequenz bis auf etwa 1 MHz in die Nähe der 1S-2S Resonanz einstellen.

Der Hauptanteil der Ausgangsleistung des Farbstofflasers von etwa 500 mW wird

in einen Resonator eingekoppelt und überhöht. In einem „Arm“ befindet sich für die Frequenzverdopplung des Farbstofflaserstrahls bei 486 nm ein winkelangepaßter BBO-Kristall (β -Barium-Borat) als nichtlineares Element. Die Länge des Resonators wird mit Hilfe des Hänsch-Couillaud-Verfahrens [Hae80] auf ein ganzzahliges Vielfaches der Laserwellenlänge stabilisiert, wobei ein auf einer Piezokeramik montierter Spiegel als Stellelement dient. Dieses Verfahren beruht auf der Tatsache, daß der Resonator wegen der nichtlinearen Eigenschaften des Kristalls für die eine Polarisation des Fundamentallichts hohe und für die andere geringe Verluste aufweist. Das bedeutet aber, daß die Polarisation, die geringe Verluste erfährt, aufgrund der damit verbundenen großen Dispersion stark phasenabhängig ist. Diese starke Abhängigkeit der Phase von der Resonanz kann durch eine $\lambda/4$ Verzögerungsplatte in eine Polarisationsabhängigkeit umgewandelt werden. Mit Hilfe eines polarisierenden Strahlteilers erhält man die Anteile der beiden Polarisationen, deren Vergleich ein dispersives Signal liefert, so daß der Resonator mit einer elektronischen Regelschleife auf Resonanz stabilisiert werden kann. Da die Ausbreitungsrichtungen der Fundamental- und der zweiten Harmonischen in dem Kristall verschieden sind, ist der ausgekoppelte UV-Strahl bei 243 nm mit einer Leistung von etwa 20 mW stark astigmatisch. Dieser Astigmatismus wird korrigiert, indem der UV-Strahl mit Hilfe einer Linse fokussiert und ein gekrümmter Spiegel unter einem relativ flachen Winkel in die Mitte der beiden Foki gestellt wird. Mit dem reflektierten Licht steht dann ein Strahl mit Gaußprofil für die Zweiphotonen-Anregung bei 243 nm zur Verfügung.

Das so erzeugte UV-Licht bei 243 nm wird schließlich in einen linearen Resonator, der sich innerhalb einer Vakuumkammer befindet, mit einer Finesse von bis zu 200 eingekoppelt und überhöht (Abbildung 3.1). Bei einer Einkoppeleffizienz von etwa 60 % laufen in dem Resonator bis zu 500 mW UV-Licht pro Richtung um. Der Resonator wird aus einem planen Einkoppelspiegel mit einer Reflektivität von 98 % und einem konkaven hochreflektierenden Spiegel mit mehr als 99.5 % (Krümmungsradius -1000 mm bzw. -2000 mm) gebildet, und kann mittels zweier Piezomotoren von außen nachjustiert werden. Um den Resonator auf ein ganzzahliges Vielfaches des UV-Lichts zu stabilisieren, wird wieder das Verfahren nach Pound, Drever und Hall verwendet. Das Licht bei 243 nm wird mit Hilfe eines EOMs moduliert und der Reflex des Einkoppelspiegels phasensensitiv demoduliert. Das dadurch erhaltene disperse Signal steuert eine Piezokeramik, auf der der Einkoppelspiegel befestigt ist, und regelt damit die Länge des Resonators nach. Außerhalb des Vakuums befindet sich in der Verlängerung der Resonatorachse hinter dem Auskoppelspiegel ein Photomultiplier (Hamamatsu R166), der die transmittierte Lichtleistung aufnimmt. Das mit einem Leistungsmeßgerät kalibrierte Signal ist ein direktes Maß für die im Resonator umlaufende Lichtleistung.

Atomarer Wasserstoff wird in einer Mikrowellengasentladung, die mit molekularem Wasserstoff brennt, erzeugt. Der molekulare Wasserstoff wird einer Gasflasche entnommen und durch einen geheizten Palladiumfilter geleitet. Der so erzeugte atomare Wasserstoff wird mit Hilfe von Teflonschläuchen in das Vakuum geleitet und in eine Kupferdüse gespeist. Sowohl Teflon als auch Kupfer haben eine geringe Rekombinationsrate für atomaren Wasserstoff bei Stößen mit den Wänden. Die Kupferdüse ist

an einem Durchflußkryostaten, der mit flüssigem Helium betrieben wird, befestigt und kann auf Temperaturen bis zu fünf Kelvin abgekühlt werden. Der Wasserstoff thermalisiert an der kalten Düse und kann durch eine kleine Bohrung (1.2 mm bis 2 mm Durchmesser), die kollinear zum UV-Lichtfeld ausgerichtet wird, entweichen und bildet so einen Atomstrahl. Dieser bewegt sich dann auf einer Länge von ungefähr 13 cm durch das anregende Lichtfeld. Auf dieser Wechselwirkungslänge werden die Wasserstoffatome durch Zweiphotonen-Absorption in den metastabilen $2S$ -Zustand angeregt. Ein kleines Magnetfeld von etwa zehn Gauß, das senkrecht zur Flugrichtung der Atome und parallel zur linearen Polarisation der Anregungswelle ausgerichtet ist, hebt die Entartung der Zeeman-Komponenten auf. Beobachtet werden nur die von äußeren Magnetfeldern unabhängigen Komponenten $1S(F=1, m_F=\pm 1) \rightarrow 2S(F=1, m_F=\pm 1)$. Um die angeregten $2S$ -Atome detektieren zu können, wird am Ende der Wechselwirkungszone ein kleines elektrisches Feld von etwa 50 V/cm angelegt, das den $2S$ -Zustand mit dem benachbarten $2P$ -Zustand mischt. Der $2P$ -Zustand ist, im Gegensatz zum $2S$ -Zustand, ein sehr kurzlebiger Zustand, der unter Aussenden eines L_α -Photons spontan in den $1S$ -Grundzustand zerfällt. Die von einem VUV-Licht empfindlichen Photomultiplier (Hamamatsu R1459) registrierten L_α -Photonen werden mit einem Photonen-zähler aufgenommen. Vor dem Detektor befindet sich eine Blende (Durchmesser 1.6 mm), die ebenfalls mit Piezomotoren von außen nachjustiert werden kann, um mit einem möglichst kollimierten Atomstrahl arbeiten zu können. Damit ein unerwünschtes Mischen des $2S$ -Zustands mit dem $2P$ -Zustand innerhalb der Wechselwirkungszone vermieden wird, müssen elektrische Streufelder verhindert und abgeschirmt werden. Dazu werden alle Oberflächen mit Graphitspray behandelt, um Kontaktspannungen zu vermeiden. Darüber hinaus wird die Wechselwirkungsregion von einem Faradaydrahtkäfig umschlossen.

Die Vakuumkammer wird mit einer Kryopumpe auf einen Enddruck von etwa $4 \cdot 10^{-7}$ mbar evakuiert. Die Kryopumpe mit einer Pumpleistung von 10000 l/s wird im wesentlichen aus zwei Gesichtspunkten zur Erzeugung des Vakuums verwendet. Zum einen erlaubt sie das erschütterungsfreie Pumpen der Vakuumkammer, was für eine Regelung des äußerst empfindlichen UV-Überhöhungsresonators auf Resonanz unumgänglich ist. Zum anderen ist es aufgrund des hohen Saugvermögens und der Kapazität für Wasserstoff trotz der Wasserstofflast während des Experimentierens möglich, einen Druck von 10^{-6} mbar aufrecht zu erhalten. Die pumpende Wirkung beruht auf einem mit flüssigem Helium gekühlten, speziell beschichteten Blech großer Oberfläche, wobei durchschnittlich alle fünf Minuten kurzzeitig ein Kompressor angeschaltet werden muß, um das Helium wieder abzukühlen. Während dieser Abkühlphase kann nicht experimentiert werden, da sich der Resonator dann aufgrund der entstehenden Vibrationen nicht für das UV-Licht resonant halten läßt.

Für die Detektion der L_α -Signalphotonen wird ein Photomultiplier verwendet, der zwar nicht für sichtbares Licht aber noch für das Anregungslicht bei 243 nm empfindlich ist. Aufgrund der hohen umlaufenden Lichtleistung würde der Detektor sättigen und es wäre keine untergrundfreie Signalaufnahme möglich. Daher wird zur Signalaufnahme das anregende Lichtfeld mit einer Frequenz zwischen 160 und 465 Hz mittels eines

mechanischen Lichtunterbrechers periodisch ein- und ausgeschaltet. Die Signalphotonen werden nur in der Periode aufgenommen, in der das Anregungslicht bei 243 nm geblockt ist. Die Anregung in den metastabilen $2S$ -Zustand erfolgt während der Helligkeitsphase. Diese Art der nahezu untergrundfreien Signalaufnahme ist aufgrund der hohen Lebensdauer des metastabilen $2S$ -Zustands möglich.

3.2 Phasenkohärente Frequenzkette

An dieser Stelle soll die Garching-Frequenzkette vorgestellt werden, mit der die Messungen der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs durchgeführt wurden. Diese befindet sich in einem benachbarten Labor und ist über eine optische Glasfaser mit einem Teilstrahl des Farbstofflasers, wie in Abbildung 3.1 angedeutet, verbunden. Das Prinzip der Frequenzmessung besteht darin, die zu messende Frequenz phasenkohärent mit dem primären Frequenznormal, einer Cäsium-Atomuhr, zu vergleichen. Während man für Radio- und Mikrowellenfrequenzen bis zu einigen zehn Gigahertz auf elektronische Verfahren zur Zählung von Schwingungen zurückgreifen kann, ist dies für optische Frequenzen, die von der Größenordnung 1000 THz sind, nicht mehr möglich. Um aber die Genauigkeit elektronischer Zählverfahren für den optischen Bereich ausnutzen zu können, werden optische Frequenzintervalle so lange geteilt, bis das verbleibende Intervall mit eben diesen Methoden vermessen werden kann. Die Überbrückung muß dabei phasenkohärent erfolgen, damit die Genauigkeit auf optische Frequenzen übertragen werden kann. Das bedeutet im wesentlichen, daß bei der Übertragung kein Schwingungszyklus verloren gehen darf. Die Vermessung von optischen Frequenzintervallen kann für die Bestimmung von Absolutfrequenzen angewendet werden, indem das Intervall zwischen zwei Harmonischen einer Frequenz bestimmt wird. Während eine erste Version einer vollständig phasenkohärenten Frequenzkette mit fünf Teilerstufen verwirklicht wurde und noch mit einem optischen Frequenzstandard auskommen mußte [Ude97, Ude97a], werden die hier vorgestellten Messungen der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs in atomarem Wasserstoff erstmals mit einer Frequenzkette durchgeführt, mit der ein direkter phasenkohärenter Vergleich optischer Frequenzen mit einer Cäsium-Atomuhr möglich ist.

Abbildung 3.2 zeigt die schematische Darstellung der Frequenzkette, die Gegenstand der Dissertation von J. Reichert ist und dort genauer beschrieben wird [Rei00]. Mit dieser Frequenzkette wird ein direkter phasenkohärenter Vergleich der Wasserstoff $1S$ - $2S$ Resonanz mit einer Cäsium-Atomuhr als Frequenzstandard durchgeführt. Dies wurde erst durch den Einsatz eines modengekoppelten Femtosekunden-Lasers möglich. Es handelt sich dabei um einen kommerziellen 70 fs Titan-Saphir-Laser (Coherent Mira 900), bei dem die Modenkopplung passiv mit Hilfe einer Kerr-Linse erfolgt. Betrachtet man die emittierten Pulse im Frequenzraum, so bilden diese einen etwa 20 THz breiten Kamm zueinander phasenkohärenter Moden, wobei der Modenabstand der Repetitionsrate des Lasers entspricht. Koppelt man die Pulse in eine optische Glasfaser ein, so wird der Kamm durch Selbstphasenmodulation auf etwa 45 THz verbreitert, wobei die

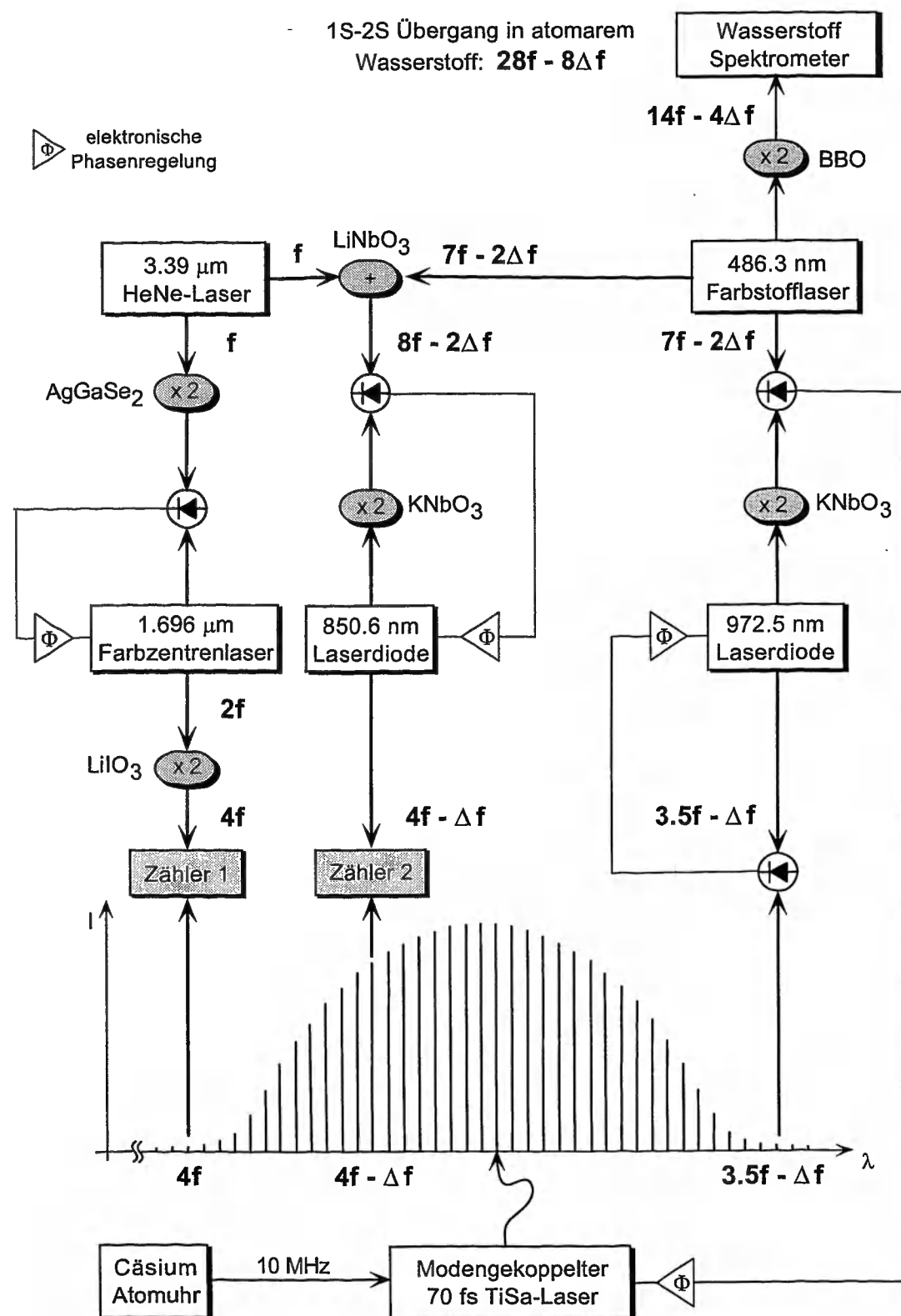


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der phasenkohärenten Frequenzkette für den direkten Vergleich der Wasserstoff 1S-2S Frequenz mit einem Cäsium Frequenzstandard.

einzelnen Moden in einer streng phasenkohärenten Beziehung bleiben [Rei99]. Durch Stabilisierung der Repetitionsrate und damit des Modenabstands kann durch Zählen der Kammoden ein optisches Frequenzintervall bis zu einer Breite von 45 THz direkt vermessen werden. Die Repetitionsrate wird dabei elektronisch auf die Radiofrequenz der verwendeten Cäsium-Atomuhr, auf die in Kapitel 3.3 eingegangen wird, phasenstabilisiert.

Zur Bestimmung der Wasserstoff 1S-2S Übergangsfrequenz f_{1S-2S} wird die folgende „zufällige“ Koinzidenz ausgenutzt: Die Wasserstofffrequenz f_{1S-2S} liegt sehr nahe bei dem 28-fachen der Frequenz f eines Helium-Neon-Lasers bei 3.39 μm , wobei die auftretende vergleichsweise kleine Abweichung mit $8\Delta f$ bezeichnet wird. Somit ist die 1S-2S Frequenz durch $f_{1S-2S} = 28f - 8\Delta f$ gegeben, wobei $f \approx 88$ THz und $\Delta f \approx 1$ THz sind. Diese beiden Frequenzen werden mit Hilfe des Femtosekundenkamms, und damit durch einen direkten phasenkohärenten Vergleich mit dem Cäsium-Frequenzstandard, bestimmt. In Abbildung 3.2 ist schematisch dargestellt, wie Frequenzintervalle zur Bestimmung der Lücke Δf und der Frequenz f erzeugt werden. Da das Intervall der Breite $f \approx 88$ THz nicht mit dem verwendeten Frequenzkamm überbrückt werden kann, wird es halbiert und die Frequenz $0.5f \approx 44$ THz vermessen. Um entsprechende Frequenzintervalle der Breite Δf und $0.5f$ zur Bestimmung von Δf und f zu generieren, werden die Frequenzen $4f$, $4f - \Delta f$ und $3.5f - \Delta f$ erzeugt und mit Hilfe des Frequenzkamms miteinander verglichen. Der Vergleich von $4f$ mit $4f - \Delta f$ liefert die Lücke Δf , und $4f - \Delta f$ mit $3.5f - \Delta f$ liefert $0.5f$ und damit die Frequenz f .

Ausgangspunkt zur Bestimmung der Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs ist der Farbstofflaser, der den Zweiphotonen-Übergang in atomarem Wasserstoff induziert (Kapitel 3.1). Die Frequenz dieses Lasers beträgt ein Viertel der 1S-2S Übergangsfrequenz und ist somit zu $7f - 2\Delta f$ gegeben. Um Frequenzintervalle durch Zählen der umfaßten Kammoden auszumessen, wird der Frequenzkamm an der Frequenz des Farbstofflasers festgehalten. Dazu wird ein Diodenlaser (972.5 nm) mit der halben Frequenz des Farbstofflasers auf eine Kammode phasenstabilisiert und in einem KNbO_3 -Kristall frequenzverdoppelt. Für die Phasenstabilisierung zweier Laser [Pre95] werden die Schwingungszahlen der beiden Laser einander angeglichen, während im Gegensatz dazu bei der Frequenzstabilisierung die Frequenzen im zeitlichen Mittel gleich sind. Das elektronische Schwebungssignal zwischen frequenzverdoppeltem Diodenlaser und Farbstofflaser wird dann dazu verwendet, um den Femtosekunden-Laser phasenkohärent an den Farbstofflaser zu koppeln. Damit wird der Kamm im Frequenzraum an der unteren Intervallgrenze $3.5f - \Delta f$ festgehalten, und es können in den beiden nächsten Schritten die oberen Intervallgrenzen $4f - \Delta f$ sowie $4f$ bestimmt und damit die Frequenzintervalle $0.5f$ und Δf ausgemessen werden.

Die Frequenz f kann aus dem Vergleich der Frequenzen $3.5f - \Delta f$ und $4f - \Delta f$ bestimmt werden. Die Frequenz $4f - \Delta f$ wird mit Hilfe einer Frequenzteilerstufe [Tel90] erzeugt. Dabei wird ein Frequenzintervall zwischen zwei Frequenzen exakt halbiert, indem die zweite Harmonische einer dritten Frequenz auf die Summe der beiden ersten Frequenzen phasenstabilisiert wird. In diesem Fall wird eine Teilerstufe dazu benutzt, einen Diodenlaser bei 850.6 nm auf den Mittelpunkt der Frequenzen f und $7f - 2\Delta f$

phasenzustabilisieren. Dabei entspricht die Frequenz f der des Helium-Neon-Lasers und $7f - 2\Delta f$ der des Farbstofflasers. Die Frequenz des Diodenlasers beträgt somit $4f - \Delta f$. Die Frequenz f_{Z_2} des elektronischen Schwebungssignals zwischen dem Diodenlaser und der nächstliegenden Kammode wird mit einem elektronischen Zähler (Zähler 2) vermessen. Somit ist die Frequenz $0.5f$ und damit f durch Auszählen der Kammoden und Zähler 2 gegeben.

Die Frequenzlücke Δf ergibt sich mit Hilfe des Frequenzkamms aus dem Vergleich der Frequenzen $4f$ und $4f - \Delta f$. Dabei ist zu beachten, daß die Frequenz $4f - \Delta f$ durch den Vergleich mit dem festgehaltenen Ende des Frequenzkamms bei $3.5f - \Delta f$ gegeben ist. Zur Erzeugung der vierten Harmonischen des Helium-Neon-Lasers wird seine Frequenz in zwei nichtlinearen Prozessen frequenzverdoppelt. Um dafür genügend Leistung zur Verfügung zu haben, wird nach der ersten Verdopplung ein Laser als Transfersoszillator eingefügt. Dabei handelt es sich um einen Farbzentrenlaser bei $1.696 \mu\text{m}$, der auf den in einem AgGaSe_2 -Kristall frequenzverdoppelten Helium-Neon-Laser phasenkohärent stabilisiert wird. Im zweiten Schritt wird der Ausgang des Farbzentrenlasers in einem LiIO_3 -Kristall frequenzverdoppelt und somit die Frequenz $4f$ erzeugt. Es wird wieder das Schwebungssignal mit einer Mode des Frequenzkamms gebildet und dessen Frequenz f_{Z_1} mit einem elektronischen Zähler (Zähler 1) bestimmt.

Die Frequenzen f und Δf sind somit durch die Zahl der benötigten Moden und durch die von den Zählern gemessenen Schwebungsfrequenzen f_{Z_1} und f_{Z_2} gegeben. Damit sind auch alle anderen Frequenzen, die in der Frequenzkette vorkommen, bestimmt. Die Frequenz der $1S$ - $2S$ Resonanz ergibt sich aus diesen Größen zu [Rei00a]

$$\begin{aligned} f_{1S-2S} &= -8f_{Z_1} - 64f_{Z_2} + (-8N_1 + 64N_2)f_r + f_{LO} \\ &= -8f_{Z_1} - 64f_{Z_2} + 2466.06384 \text{ THz} . \end{aligned} \quad (3.1)$$

Dabei sind f_r die Repetitionsrate des Femtosekundenlasers und N_1 und N_2 die Anzahl der Moden zwischen den Zählern und dem, auf den Farbstofflaser phasenstabilisierten, Ende des Frequenzkamms. In der Frequenz f_{LO} sind die Frequenzen aller Lokaloszillatoren zusammengefaßt. Diese werden für jede Phasenstabilisierung aus technischen Gründen eingefügt. Das Schwebungssignal wird so nicht auf Null, sondern auf eine endliche Lokaloszillatorfrequenz gehalten, was ein deutlich besseres Signal- zu Rausch-Verhältnis erlaubt.

3.3 Cäsium-Atomuhr

Wie bereits in Kapitel 3.2 erwähnt, läßt sich eine Frequenz durch den direkten phasenkohärenten Vergleich mit dem primären Frequenznormal bestimmen. Dieses Frequenznormal wird seit 1967 durch den Übergang zwischen den beiden Hyperfeinniveaus des $6S_{1/2}$ -Grundzustands des Cäsium-Atoms ^{133}Cs gestellt. Um die Kontinuität zu der bis dahin gültigen Festlegung der Sekunde, der Ephemeridensekunde, zu wahren, wurde die Frequenz des Übergangs per Definition auf $9\,192\,631\,770 \text{ Hz}$ festgelegt.

Die Umsetzung dieser Definition für den normalen Gebrauch geschieht mit Hilfe von Cäsium-Atomuhren. Im folgenden wird deren Prinzip anhand zweier, zur Messung der absoluten Frequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs in atomarem Wasserstoff (Kapitel 6) verwendeten, Cäsium-Atomuhren erläutert.

Der Uhrenübergang wird durch die beiden Hyperfeinniveaus mit den Quantenzahlen $F = 3$ und $F = 4$ des Grundzustands des einzigen stabilen Cäsiumisotops ^{133}Cs gebildet. Im linken Teil der Abbildung 3.3 ist die Hyperfeinstruktur schematisch mit der zu $f_0 = 9\,192\,631\,770 \text{ Hz}$ definierten Aufspaltung dargestellt. Der Übergang zwischen den beiden Niveaus wird durch elektromagnetische Strahlung, die in einem mit Radio- und Mikrowellentechnologie leicht zu synthetisierenden Bereich liegt, induziert.

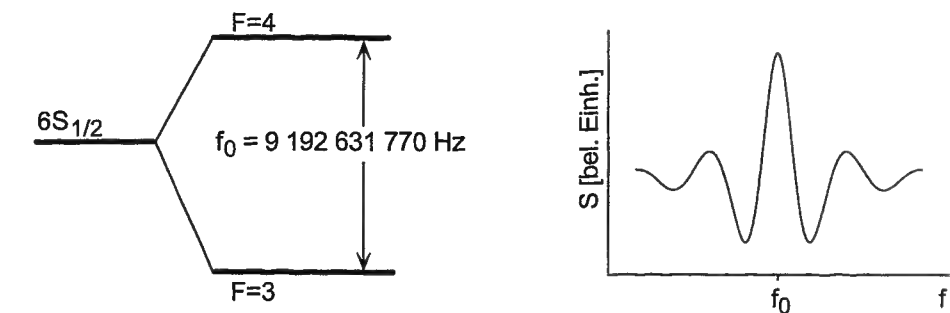


Abbildung 3.3: Hyperfeinstruktur des Cäsiumisotops ^{133}Cs , deren Aufspaltung auf die angegebene Frequenz f_0 festgelegt ist. Die rechte Seite zeigt ein typisches Ramsey-Spektrum zur Auflösung des Uhrenübergangs in ^{133}Cs .

Während frühere Atomuhren eine nach Rabi [Rab38] entwickelte Technik zur Spektroskopie an einem Atomstrahl anwenden, machen sich heute die meisten Uhren das Prinzip der Ramsey-Spektroskopie [Ram89] zunutze. Beide sind für Präzisionsmessungen der Hyperfeinaufspaltungen in Atomen geeignet, wobei die letztere Methode eine Weiterentwicklung der Idee von Rabi darstellt. Bei der Methode von Rabi wechselwirken die Atome in einer einzigen Zone mit dem Mikrowellenfeld. Um dabei eine hohe Auflösung zu erreichen, ist es wichtig die Wechselwirkungszone möglichst homogen und groß zu halten. Beide Forderungen lassen sich aber aus technischen Gründen nur in gewissen Grenzen miteinander vereinbaren. Wechselwirken die Atome eine Zeit t mit dem Mikrowellenfeld, so ist die Breite der Resonanz durch $1/t$ gegeben. In der Ramsey-Spektroskopie wird eine einzige Zone durch zwei räumlich getrennte ersetzt. Diese können dann nämlich kleiner gehalten werden, so daß die Homogenität der Felder leichter realisiert werden kann. Die Auflösung ist mit dieser Methode allein durch den Abstand der beiden Zonen gegeben und kann damit im Prinzip beliebig gesteigert werden. Benötigen die Atome eine Zeit T von der ersten zur zweiten Zone, so ist die Breite der Resonanz durch $1/2T$ gegeben. In der ersten Wechselwirkungsregion werden die Atome in eine kohärente Superposition zwischen angeregtem- und Grundzustand versetzt. Zwischen den beiden Zonen bewegen sich die Atome dann relaxationsfrei mit ihrer atomaren Eigenfrequenz, bis sie schließlich in der zweiten Region, je nach Pha-

senlage des atomaren Dipolmoments zu Mikrowellenfeld, an- oder abgeregt werden. Als Funktion der Frequenz des treibenden Feldes ergeben sich dann Interferenzmuster, die sogenannten Ramsey-Streifen. Der rechte Teil in Abbildung 3.3 zeigt ein solches typisches Ramsey-Spektrum.

Die erste Reihe von Messungen der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs in atomarem Wasserstoff wurde mit Hilfe einer kommerziellen Atomuhr (Hewlett Packard HP5071A) durchgeführt, deren schematischer Aufbau in Abbildung 3.4 dargestellt ist. Die Uhr verwendet zur Spektroskopie zwischen den $6S_{1/2}(F=3, m_F=0)$ und $6S_{1/2}(F=4, m_F=0)$ Niveaus einen thermischen Cäsium-Atomstrahl, der durch eine Blende aus einem Ofen austritt. Die thermisch besetzten Hyperfeinniveaus werden mit Hilfe eines statischen, stark inhomogenen Magnetfelds (Polarisator) aufgespalten. Atome im oberen Hyperfeinzustand ($F=4$) werden dabei in die gewünschte Richtung abgelenkt.

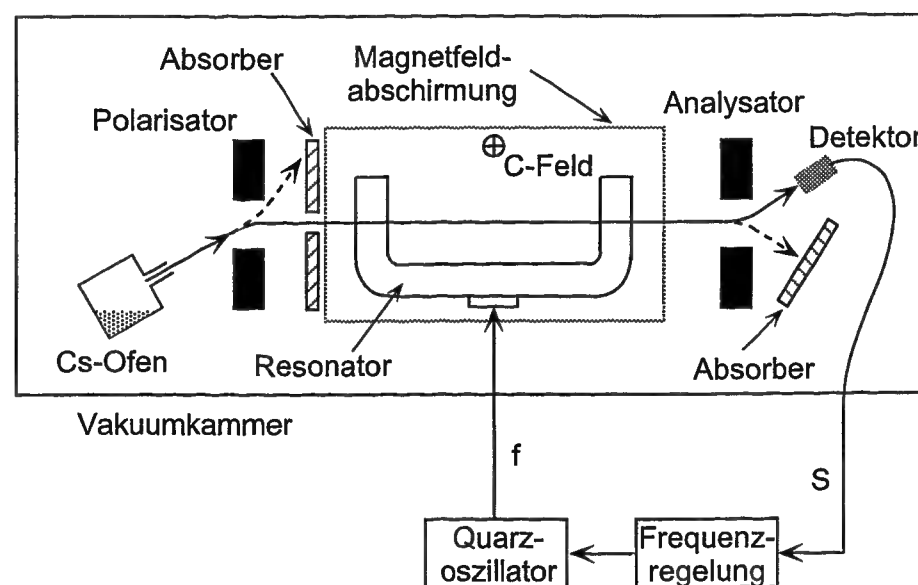


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung einer Cäsium-Atomuhr. Ein zustandsselektierter Atomstrahl wird in zwei räumlich getrennten Mikrowellenfeldern angeregt. Das nach dem Prinzip der Ramsey-Spektroskopie gewonnene Signal S dient zur Regelung eines spannungsabhängigen Quarzoszillators bei 10 MHz, dessen Ausgang gleichzeitig durch Synthetisierung das Mikrowellenfeld treibt und als Uhrenaussgang dient.

Der zustandsselektierte Atomstrahl tritt dann in einen Mikrowellenresonator zur Anregung des Hyperfeinübergangs ein. Die Zeeman-Niveaus sind stark magnetfeldabhängig, so daß die Wechselwirkungszone mit einer Magnetfeldabschirmung zur Unterdrückung äußerer Störungen umgeben ist. Zusätzlich wird ein kleines, homogenes statisches Magnetfeld (C-Feld) angelegt, um die Zeeman-Komponenten aufzulösen und nur den Übergang zwischen Niveaus mit $m_F=0$ zu induzieren. Die Übergangsfrequenz zwischen diesen Niveaus ist vergleichsweise unabhängig gegen Streumagnetfelder. Die Atome

werden bei ihrer ersten Wechselwirkung mit dem Mikrowellenfeld in eine Superposition der beiden Zustände $6S_{1/2}(F=4, m_F=0)$ und $6S_{1/2}(F=3, m_F=0)$ versetzt. Nach der zweiten Wechselwirkung wird der Atomstrahl wieder in einem statischen, stark inhomogenen Magnetfeld (Analysator) räumlich in die beiden Hyperfeinniveaus getrennt. Atome im Grundzustand ($F=3$) werden phasensensitiv detektiert und das erhaltene Signal S wird zur Regelung der Frequenz verwendet. Das Mikrowellenfeld wird von einem Quarzoszillator erzeugt, dessen Frequenz durch eine von außen angelegte Spannung verändert werden kann. Die elektronische Regelung hält dadurch den Oszillator mit Hilfe des Signals S auf der Mitte des Ramsey-Spektrums bei der Frequenz f_0 des Uhrenübergangs fest. Die Ausgangsfrequenz des Oszillators beträgt 10 MHz und wird mit Hilfe von Radio- und Mikrowellentechnik auf die zur Spektroskopie nötige Frequenz f_0 konvertiert. Die Genauigkeit dieser kommerziellen Atomuhr, also die Abweichung ihrer Frequenz von der Definition des Uhrenübergangs, liegt bei etwa 10^{-12} . Diese kann mit Hilfe des Zeitsignals des satellitengestützten „Global Positioning System“ (GPS) auf besser als 10^{-13} gesteigert werden. Bei GPS handelt es sich um ein Navigationssystem des amerikanischen Militärs, das von 28 Satelliten gebildet wird, von denen an jedem Punkt der Erde mindestens vier sichtbar sind. Die von GPS ausgesandte Zeit stimmt dabei mit einer Genauigkeit von etwa 100 ns mit der koordinierten Weltzeit UTC (Universal Coordinated Time) überein.

Eine zweite Reihe von Messungen wurde mit einer transportablen Fontänen-Cäsiumuhr [Cla95, Cla95a, San99] durchgeführt, die an der BNM-LPTF in Paris entwickelt wurde [Lem00]. Im Rahmen einer Zusammenarbeit von Wasserstoff- und Frequenzkettenlabor mit dem Pariser Labor wurde diese Uhr von Paris nach Garching transportiert. Innerhalb von zwei Wochen konnte so die $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenz in atomarem Wasserstoff an insgesamt zehn Meßtagen phasenkohärent mit diesem primären Frequenznormal verglichen werden (Kapitel 6). Durch einen Vergleich der transportablen Fontänen-Cäsiumuhr vor und nach ihrem Transport mit einer zweiten in Paris befindlichen Fontänen-Uhr kann deren Genauigkeit auf weniger als $2 \cdot 10^{-15}$ angegeben werden. Diese bisher einmalige Genauigkeit wird durch die Verwendung lasergekühlter Atome mit einer, im Vergleich zum thermischen Atomstrahl, kleinen Geschwindigkeit erreicht [Kas89]. Dadurch werden zahlreiche systematische Effekte unterdrückt. Abbildung 3.5 zeigt den Aufbau der verwendeten Fontänenuhr. Im wesentlichen besteht die Uhr aus drei Teilen, einer Wechselwirkungszone, der Quelle und dem Detektionsbereich. Sechs Laserstrahlen, die bezüglich des Übergangs $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 6P_{3/2}(F=5)$ rotverstimmt sind, kühlen die Atome, so daß etwa $10^7 - 10^8$ Atome in einer optischen Melasse gesammelt werden. Die Atome werden auf wenige μK gekühlt, so daß die Relativgeschwindigkeit der Atome mit wenigen cm/s nur noch einen Bruchteil der wahrscheinlichsten Geschwindigkeit von 100 m/s in einem Atomstrahl beträgt. Durch geeignete Verstimmung der Kühlaserstrahlen werden die Atome auf etwa 4 m/s beschleunigt und auf eine vertikal nach oben gerichtete ballistische Flugbahn gebracht. Die Atome werden durch geeignete Laser- und Mikrowellenpulse in dem $6S_{1/2}(F=3, m_F=0)$ Zustand präpariert. Auch bei dieser Uhr wird das Prinzip der Ramsey-Spektroskopie angewendet, wobei hier die kleine Geschwindigkeit der Atome den Vorteil eines sehr viel größeren zeitlichen Abstands zwischen den beiden Wechselwirkungszone bietet. Aufgrund der

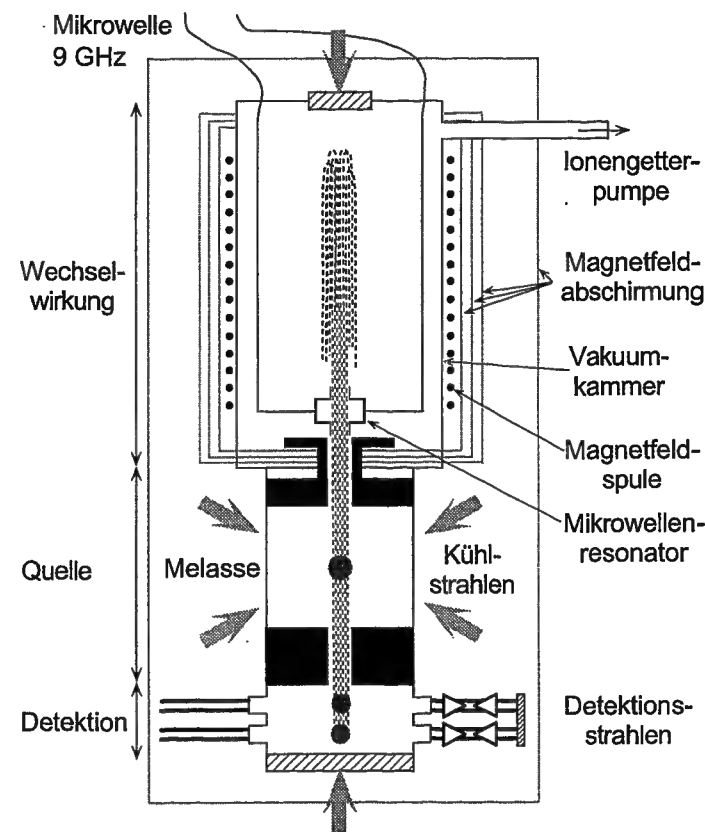


Abbildung 3.5: Aufbau einer transportablen Fontänen-Cäsiumuhr. Kalte Atome wechselwirken auf ihrem ballistischen Flug nach der Ramsey-Anordnung zweimal mit einem Mikrowellenfeld. Die beiden Hyperfeinzustände $6S_{1/2}(F = 4, m_F = 0)$ und $6S_{1/2}(F = 3, m_F = 0)$ werden durch laserinduzierte Fluoreszenz nachgewiesen.

ballistischen Flugbahn der Atome im Schwerfeld, formen sie eine Art „Springbrunnen“, so daß die Atome in ihrer Bewegung nach oben durch die Schwerkraft abgebremst und wieder nach unten beschleunigt werden. Daher werden die beiden Wechselwirkungen mit einer einzigen räumlichen Wechselwirkungsregion erreicht, die die Atome aufgrund ihrer Flugbahn zweimal passieren. Der freie Flug dauert etwa eine halbe Sekunde, so daß mit dieser Anordnung Ramsey-Streifen mit einer Breite von nur einem Hertz aufgelöst werden. Der gesamte Wechselwirkungsbereich ist, analog zur kommerziellen Atomuhr, gegen äußere Magnetfelder abgeschirmt und von einem kleinen, statischen homogenen Magnetfeld zur Auflösung der Zeeman-Niveaus durchsetzt. Nach dem freien Flug fallen die Atome in den, unterhalb der Quelle liegenden, Detektionsbereich. Mit dieser Anordnung werden sowohl die Population im $6S_{1/2}(F = 3, m_F = 0)$ als auch im $6S_{1/2}(F = 4, m_F = 0)$ Zustand detektiert, um Schwankungen zum einen des Detektionslasers bezüglich Leistung und Frequenz und zum anderen der Zahl der Atome bei jedem Anregungszyklus zu minimieren. Zuerst wird die Besetzung des oberen Hyperfeinzustands ($F = 4$) mit Hilfe der laserinduzierten Fluoreszenz in einer bezüglich des

Übergangs $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{3/2}(F = 5)$ leicht rotverschobenen Stehwelle gemessen. Der unterste Teil dieses Probestrahls wird aus einer laufenden Lichtwelle gebildet, die Atome im oberen Hyperfeinniveau aufgrund des Strahlungsdrucks des Lichts aus der „Atomwolke“ entfernt. Anschließend werden die Atome im unteren Hyperfeinzustand ($F = 3$) optisch in den oberen gepumpt und analog in einem zweiten Stehwellenfeld detektiert. In Analogie zu der kommerziellen Atomuhr wird ein Quarzoszillator auf den zentralen Ramsey-Streifen stabilisiert. Allerdings wird das Fehlersignal nicht phasensensitiv erzeugt, sondern durch abwechselndes Aufnehmen des Signals einmal links und einmal rechts bezogen auf den zentralen Ramsey-Streifen. Die Differenz der beiden Signale liefert ein Fehlersignal, mit dem der Radiofrequenzoszillator auf der Resonanzfrequenz des Cäsiumatoms gehalten wird.

Kapitel 4

Zweiphotonen-Spektroskopie an atomarem Wasserstoff

Der in Kapitel 3.1 vorgestellte Aufbau eröffnet die Möglichkeit, den $1S$ - $2S$ Zweiphotonen-Übergang in atomarem Wasserstoff Doppler-frei mit hoher Genauigkeit aufzulösen. Die dabei erreichte Genauigkeit bildet die Grundlage zur Bestimmung von Naturkonstanten und für Tests wichtiger theoretischer Grundlagen. Dazu gehören beispielsweise die Rydberg-Konstante, die am genauesten bekannte Naturkonstante, und die $1S$ -Lamb-Verschiebung, die den genauesten Test der Quantenelektrodynamik (QED) an einem stabilen System darstellt. Der $1S$ - $2S$ Übergang in atomarem Wasserstoff stellt außerdem aufgrund seiner natürlichen Linienbreite von nur 1.3 Hz gleichzeitig einen der aussichtsreichsten Kandidaten für einen optischen primären Frequenzstandard dar. Im Rahmen dieser Arbeit konnte dabei die Meßgenauigkeit der $1S$ - $2S$ Absolutfrequenz um mehr als eine Größenordnung verbessert werden. Dabei stellt diese Frequenz die im sichtbaren und ultravioletten Bereich am präzisesten bekannte optische Frequenz dar, worauf in Kapitel 6 ausführlich eingegangen wird.

Das folgende Kapitel stellt im ersten Teil die wichtigsten verbreiternden und verschiebenden Effekte des $1S$ - $2S$ Übergangs in atomarem Wasserstoff vor. Dabei handelt es sich um den Doppler-Effekt zweiter Ordnung und die Durchflugsverbreiterung. Da beide Effekte geschwindigkeitsabhängig sind, können sie durch Selektion kalter Atome verkleinert werden. Es werden die dazu nötigen Techniken vorgestellt, mit deren Hilfe die Auflösung hier auf $7 \cdot 10^{-13}$ gesteigert werden konnte. Im zweiten Teil wird die aus der Mikrowellentechnologie bekannte Ramsey-Spektroskopie vorgestellt und ihre Anwendung auf den $1S$ - $2S$ Zweiphotonen-Übergang beschrieben. Es wird gezeigt, wie damit die Auflösung auf $6 \cdot 10^{-13}$ noch etwas weiter gesteigert werden kann. Der dritte Teil zeigt, wie durch weitere Anregung der metastabilen $2S$ -Atome in den $4S$ -Zustand mit Hilfe eines Titan-Saphir-Lasers bei 972 nm ein direkter Vergleich der beiden Zweiphotonen-Übergänge $1S$ - $2S$ mit $2S$ - $4S$ möglich ist. Gemessen wird die Schwebungsfrequenz nahe 5 GHz der halben ultravioletten und der verdoppelten infraroten Frequenz, die nach dem Bohrschen-Atommodell Null sein sollte. Die QED

liefert für diese Schwebungsfrequenz aber eine Kombination der Lamb-Verschiebungen der beteiligten Niveaus, von denen die $1S$ -Lamb-Verschiebung den größten Beitrag bildet. Sowohl die Experimente zur Ramsey-Spektroskopie als auch der direkte Vergleich der $1S$ - $2S$ und $2S$ - $4S$ Übergangsfrequenzen wurde dabei in der ersten Hälfte der dieser Arbeit zugrundeliegenden experimentellen Untersuchungen in Zusammenarbeit mit B. Gross [Gro98] durchgeführt.

4.1 Der $1S$ - $2S$ Übergang

Der verwendete experimentelle Aufbau zur Beobachtung der $1S$ - $2S$ Resonanz in atomarem Wasserstoff wurde bereits in Kapitel 3.1 vorgestellt. Aus Symmetriegründen ist es nicht möglich den $1S$ -Grundzustand in den metastabilen $2S$ -Zustand mit nur einem Photon anzuregen. Erst mit Hilfe zweier Photonen kann dieser Übergang induziert werden. Im Gegensatz zu einer Einphotonen-Absorption muß bei Zweiphotonen-Übergängen mit vergleichsweise hohen Lichtintensitäten experimentiert werden (Kapitel 2.5). Der Vorteil der Zweiphotonen-Spektroskopie besteht darin, daß eine Dopplerfreie Anregung durch Absorption zweier Photonen gleicher Frequenz aus entgegengesetzten Richtungen erreicht werden kann. Somit kann jedes Atom, unabhängig von seiner Geschwindigkeit, zu einem Doppler-freien Signal beitragen. Diese Art der Doppler-freien Zweiphotonen-Spektroskopie wird mit der in Kapitel 3.1 beschriebenen Anregungsgeometrie umgesetzt. Das für die Anregung nötige UV-Licht bei 243 nm wird in einem linearen Resonator überhöht, der kollinear zu dem Wasserstoff-Atomstrahl ausgerichtet ist. Damit stehen sowohl genügend Leistung als auch zwei Photonen aus entgegengesetzten Richtungen für die Spektroskopie zur Verfügung. Die Atome können selbstverständlich auch zwei Photonen aus der gleichen Richtung absorbieren. Aufgrund der großen Doppler-Verbreiterung ist dieses Signal jedoch so schwach, daß es hier nicht beobachtet werden kann.

Die erreichte experimentelle Auflösung der Spektroskopie am $1S$ - $2S$ Übergang bedingt, daß bereits der Unterschied der Eigenzeiten der sich mit verschiedener Geschwindigkeit bewegend Atome eine Rolle spielt. Dieser Effekt führt zum Doppler-Effekt zweiter Ordnung, der im Gegensatz zum Doppler-Effekt erster Ordnung nicht von der Richtung und linear von der Geschwindigkeit abhängt, sondern quadratisch steigt, je schneller sich ein Atom bewegt. Der Doppler-Effekt zweiter Ordnung bewirkt eine Rotverschiebung der Wasserstoff $1S$ - $2S$ Resonanz, die quadratisch mit der Geschwindigkeit wächst, was zu einer asymmetrischen Verbreiterung führt. Es gibt noch einen weiteren Effekt, der sich in einer Verbreiterung der $1S$ - $2S$ Resonanz äußert, die sogenannte Durchflugsverbreiterung. Diese hängt linear von der Geschwindigkeit ab [Lei95] und läßt sich auf die endliche Wechselwirkungszeit eines Atoms mit dem anregenden Lichtfeld zurückführen.

Diese beiden geschwindigkeitsabhängigen Effekte bilden gleichzeitig die größten systematischen Effekte, auf die in Kapitel 5.2 gesondert eingegangen wird. Ein wirkungsvol-

ler Weg diese zu reduzieren ist die Verkleinerung der Geschwindigkeit der Atome mit Hilfe eines Durchflußkryostaten (Kapitel 3.1). Durch Thermalisieren der Atome an der daran angebrachten Düse kann der Wasserstoff-Atomstrahl bis auf 5 K gekühlt werden.

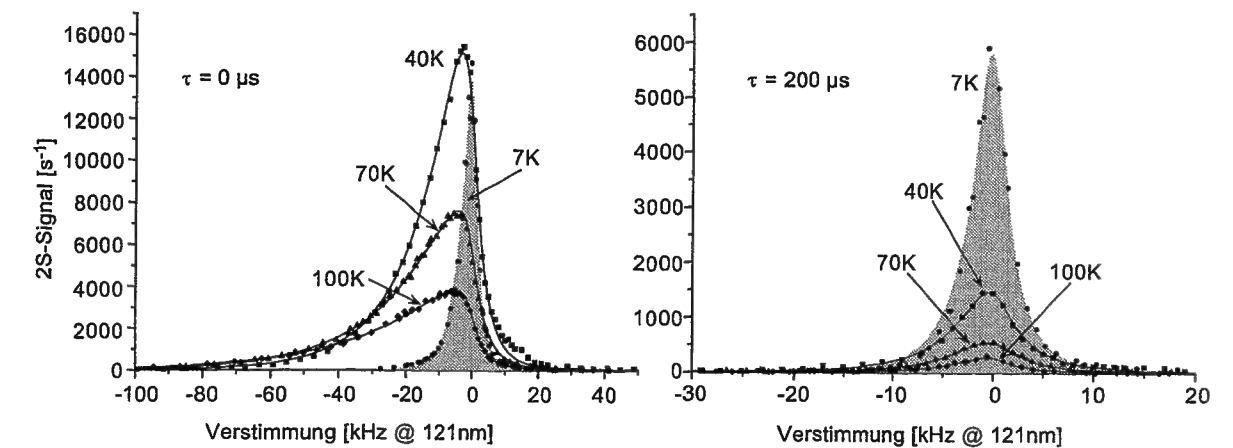


Abbildung 4.1: Wasserstoff $1S$ - $2S$ Spektren, aufgenommen bei vier verschiedenen Düsentemperaturen. Im linken Teil sind Spektren ohne zeitliche Verzögerung, im rechten die entsprechenden mit einer Verzögerung von $\tau = 200 \mu s$ dargestellt. Die durchgezogenen Linien bzw. die graue Fläche ergeben sich durch Anpassung eines theoretischen Linienformmodells an die experimentellen Daten.

Der linke Teil in Abbildung 4.1 zeigt die Reduzierung beider Effekte mit sinkender Temperatur des Atomstrahls. Aufgetragen ist die Zahl der $2S$ -Atome für verschiedene Verstimmungen des anregenden Laserlichtfelds. Dabei handelt es sich, wie bei allen anderen gezeigten Spektren, um den magnetfeldunabhängigen Anteil $1S_{1/2}(F=1, m_F=\pm 1) \rightarrow 2S_{1/2}(F=1, m_F=\pm 1)$. Es sind vier verschiedene Spektren für unterschiedliche Düsentemperaturen dargestellt. Die durchgezogenen Linien, beziehungsweise die unterlegte Fläche für 7 K, wurden durch Anpassen eines theoretischen Modells für die Linienform des $1S$ - $2S$ Übergangs, wie es sich aus der verwendeten Anregungsgeometrie und experimentellen Parametern ergibt, an die experimentellen Daten gewonnen. Auf dieses theoretische Modell wird gesondert in Kapitel 5.1 eingegangen. An dieser Stelle soll nur verdeutlicht werden, wie gut die experimentell gewonnene Linienform verstanden ist. Deutlich zu erkennen ist vor allem für höhere Temperaturen die stark asymmetrische Linienform der $1S$ - $2S$ Resonanz. Die linke „Flanke“ wird von schnellen Atomen gebildet, die die Resonanz im Vergleich zu langsamen Atomen überproportional verschieben. Je kälter der Atomstrahl wird, desto mehr wird diese Asymmetrie reduziert, bis die Linienform bei 7 K zwar noch nicht vollkommen, aber doch wesentlich symmetrischer ist. Auch ist deutlich zu erkennen, daß durch Verkleinerung der Temperatur die Rotverschiebung abnimmt, also die Linienmitte zu höheren Frequenzen hin verschoben wird. Die bis herunter zu etwa 40 K mit abnehmender Temperatur verbundene Signalvergrößerung läßt sich auf die hier geringere atomare Geschwindigkeit zurückführen, was zu einer Steigerung der Wechselwirkungszeit der Atome mit dem anregenden Lichtfeld führt. Unterhalb von etwa 10 K nimmt das

beobachtete Signal der 2S-Atome ab. Bei dieser Temperatur beginnt der molekulare Wasserstoff, der sich unvermeidlich in dem Atomstrahl befindet, an den Düsenwänden anzufrieren, und führt zu einer steigenden Rekombinationsrate atomaren Wasserstoffs in der Düse.

Das Arbeiten mit einem kalten Atomstrahl führt bei einer Düsenteperatur von 7 K zu einer mittleren Geschwindigkeit der Atome von etwa 300 m/s. Für eine weitere Selektion kalter Atome zur Reduzierung von Linienbreite und Asymmetrie werden die Atome mit Hilfe eines Vielkanalzählers zeitaufgelöst aufgenommen. Wie in Kapitel 3.1 erläutert, ist es notwendig das Anregungslichtfeld bei 243 nm periodisch an- und auszuschalten, um eine nahezu untergrundfreie Detektion der Signalphotonen zu ermöglichen. Diese Notwendigkeit kann man sich zu Nutzen machen, indem man nach Unterbrechen des Anregungslichtfelds eine gewisse Verzögerungszeit τ wartet, bis das 2S-Signal aufgenommen wird. Dadurch läßt man schnelle Atome, die die Wechselwirkungslänge d mit einer Geschwindigkeit $v > d/\tau$ zurückgelegt haben, am 2S-Detektor passieren und erhält lediglich das Signal von langsamen Atomen deren maximale Geschwindigkeit $v_{max} = d/\tau$ beträgt. Auf der rechten Seite der Abbildung 4.1 sind die Spektren mit einer Verzögerungszeit von 200 μs dargestellt. Dabei fällt besonders die deutliche Signalabnahme gegenüber den Spektren, zu denen alle Atome beitragen, auf. Dies läßt sich auf die Form der Geschwindigkeitsverteilung zurückführen, in der der Anteil langsamer Atome stark unterdrückt ist. Die Signalabnahme ist für Temperaturen oberhalb 10 K so groß, daß ein Experimentieren für Verzögerungszeiten $\tau > 300 \mu\text{s}$ nicht mehr möglich ist. Vergleichsweise gering fällt hingegen die Signalabnahme bei Temperaturen unterhalb von 10 K aus, wie deutlich an dem Spektrum bei 7 K zu erkennen ist. Grund dafür ist das bereits oben erwähnte Anfrieren molekularen Wasserstoffs an der Düse. Dadurch werden die sehr langsamen Atome der Geschwindigkeitsverteilung nicht so sehr wie bei hohen Temperaturen von schnellen Atomen und Molekülen gestoßen. Gleichzeitig nimmt bei Anfrieren des molekularen Wasserstoffs der Hintergrundgasdruck ab, so daß insgesamt mehr langsame Atome den 2S-Detektor erreichen können. Bei diesen geringen Temperaturen ist eine Signalaufnahme mit gutem Signal-zu-Rausch-Verhältnis bis zu 2 ms Verzögerungszeit möglich.

Das Experimentieren mit nur einer Geschwindigkeitsklasse hätte zur Folge, daß man sehr viel Information verschenken würde, da das Signal schnellerer Atome verloren wäre. Daher wird das Signal mit Hilfe eines Vielkanalzählers aufgenommen, mit dem es möglich ist viele Zeitfenster zu setzen. Damit wird der Beitrag aller Atome zeitaufgelöst für verschiedene Verzögerungszeiten und Laserverstimmungen in einer zweidimensionalen Matrix abgespeichert. Es ist zu beachten, daß ein Signal mit höherer Verzögerungszeit in dem Signal kleinerer Verzögerungszeit enthalten ist. In Abbildung 4.2 ist ein typisches 1S-2S Signal bei verschiedenen Verzögerungszeiten dargestellt. Es handelt sich dabei um das gleiche Spektrum, das in Abbildung 4.1 im grau unterlegten Teil für den Fall einer Düsenteperatur von 7 K gezeigt ist. Aufgetragen ist jeweils das 2S-Signal gegen die Laserverstimmung für Verzögerungszeiten τ bis zu 1.8 ms. Deutlich zu erkennen ist die immer noch vorhandene Asymmetrie für kleine Verzögerungszeiten. Diese wird für größere Verzögerungszeiten immer kleiner, und ist schließlich bei

hohen Verzögerten nahezu verschwunden. Die Linien mit $\tau > 1 \text{ ms}$ sind in dem oberen linken Teil der Abbildung 4.2 mit vergrößerter Signalskala dargestellt, wobei die Linie bei $\tau = 1 \text{ ms}$ in beiden Teilen dargestellt ist, um den Größenunterschied zwischen verzögerten und unverzögerten Signalen zu verdeutlichen.

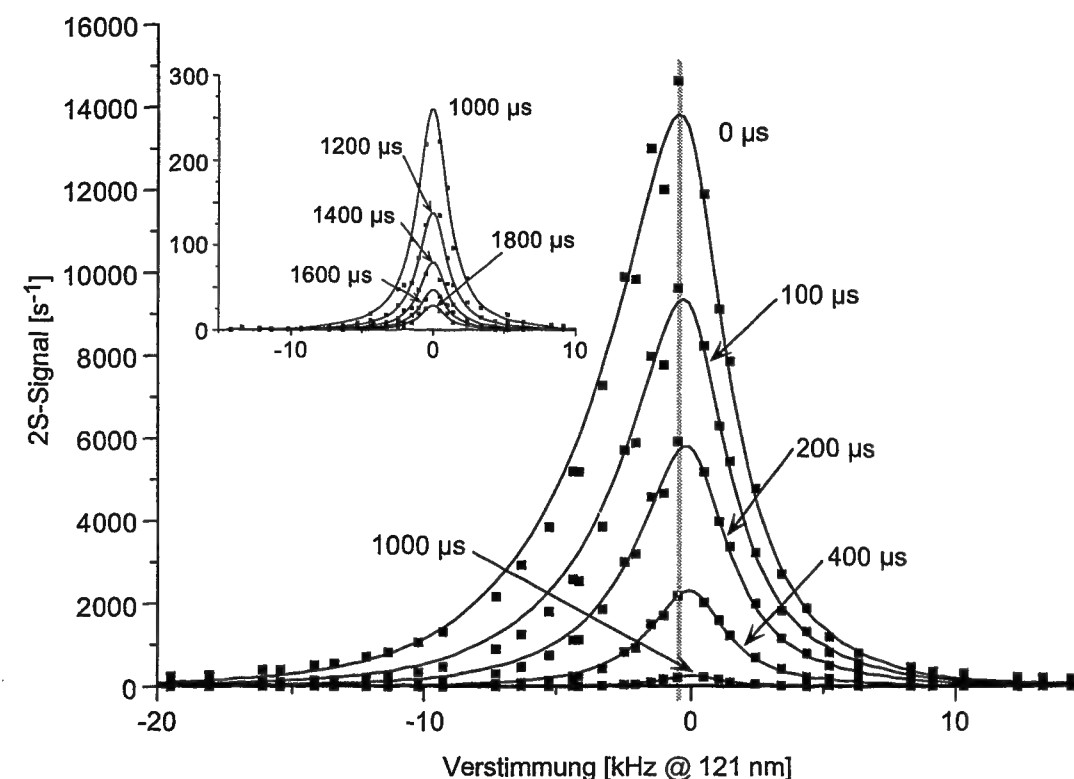


Abbildung 4.2: Simultan aufgenommene Spektren für verschiedene Verzögerungszeiten bei einer Düsenteperatur von 7 K. Die durchgezogenen Linien ergeben sich aus einer simultanen Anpassung eines theoretischen Linienformmodells an alle zeitverzögerten Spektren.

Auch die Verkleinerung der Rotverschiebung aufgrund des Doppler-Effekts zweiter Ordnung ist deutlich anhand der in Abbildung 4.2 eingezeichneten Hilfslinie zu erkennen. Dies ist ein entscheidender Punkt für die Bestimmung der absoluten Frequenz der 1S-2S Resonanz in atomarem Wasserstoff. Der störende Effekt der quadratischen Doppler-Verschiebung kann mit dieser Technik deutlich reduziert werden. Die durchgezogenen Linien sind wieder das Ergebnis der Anpassung des theoretischen Linienformmodells an die experimentellen Spektren, auf das in Kapitel 5.1 ausführlicher eingegangen werden soll. Hier soll nur erwähnt werden, daß das theoretische Modell mit nur sieben freien Parametern auskommt, die durch eine simultane Anpassung des Modells an alle Verzögerten eines 1S-2S Spektrums bestimmt werden. Dabei beschreiben diese Parameter eine gemeinsame Amplitude, die mittlere Geschwindigkeit des Atomstrahls und eine gemeinsame Verschiebung, die die unverschobene 1S-2S Resonanz angibt. Mit dieser gemeinsamen Verschiebung ist man in der Lage die unverschobene Linienmitte

bis auf wenige Hertz anzugeben. Drei der restlichen vier Parameter gehen in die spezielle Form der Geschwindigkeitsverteilung ein, und der letzte berücksichtigt schließlich eine zusätzliche Verbreiterung der Spektren, wie etwa aufgrund der endlichen Laserlinienbreite.

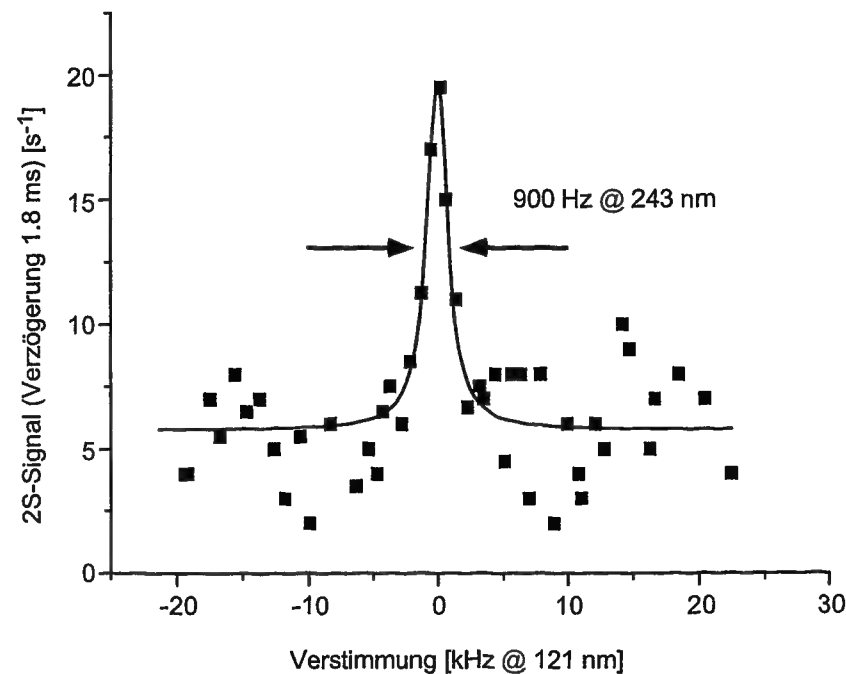


Abbildung 4.3: Hochaufgelöstes Wasserstoff 1S-2S Zweiphotonen-Spektrum mit einer Linienbreite von nur 900 Hz bei 243 nm. Das Spektrum wurde mit einer optimierten Düsenlänge bei einer Temperatur von 6.5 K aufgenommen und entspricht einer Auflösung von $7 \cdot 10^{-13}$.

Um eine hohe Auflösung der 1S-2S Resonanz zu erreichen, ist es wegen des Doppler-Effekts zweiter Ordnung und der Durchflugsverbreiterung wichtig, mit möglichst langsamen Atomen zu arbeiten. Die Durchflugsverbreiterung hängt aber nicht nur von der Geschwindigkeit ab, sondern auch von dem Winkel, unter dem die Atome das anregende Lichtfeld kreuzen [Lei95]. Je steiler der Winkel ist, desto kürzer ist die Wechselwirkungszeit des Atoms mit dem Lichtfeld. Um diesen Effekt klein zu halten, wird mit einem möglichst kollimierten Atomstrahl gearbeitet. Dabei ist man durch experimentelle Rahmenbedingungen beschränkt, die es nicht erlauben den Durchmesser der Düse, durch die der Atomstrahl austritt, kleiner als 1.2 mm zu wählen, um nicht die Mode des anregenden Lichtfeldes bei 243 nm merklich abzuschneiden. Vor dem 2S-Detektor befindet sich eine von außen justierbare Blende, die es ermöglicht mit unterschiedlichen Kollimationen zu arbeiten. Dabei hat sich ein Blendendurchmesser von 1.6 mm als ausreichend erwiesen, da mit kleineren Durchmessern kein Einfluß auf die Breite der aufgenommenen Resonanz mehr beobachtet werden konnte. Mit dem Spektrum in Abbildung 4.3 konnte in dieser Arbeit erstmals die bisherige Grenze einer Linienbreite von 1 kHz in

dieser Anordnung unterschritten werden und auf eine Breite von 900 Hz bei 243 nm reduziert werden, was einer Auflösung von $7 \cdot 10^{-13}$ entspricht. Dies wurde möglich durch Optimierung der Düsenlänge, die für das gezeigte Spektrum etwa 1 cm länger als in früheren Arbeiten gewählt wurde. Dadurch wird eine stärkere Kollimierung der Atome in Richtung des 2S-Detektors erreicht und demzufolge sind mehr langsame Atome für die Anregung vorhanden. Aufgetragen ist hier das Spektrum mit einer Verzögerungszeit $\tau = 1.8$ ms gegen die Laserverstimmung. Dabei wurde über vier Linien gemittelt, was einer effektiven Meßzeit von 4 s pro Meßpunkt entspricht. Bei diesem Spektrum ergibt sich aus der Verzögerungszeit τ und der Wechselwirkungslänge von 13 cm eine maximale Geschwindigkeit von 70 m/s der zu diesem Signal beitragenden Atome. Die mittlere Geschwindigkeit ergibt sich aus dem Linienformmodell zu etwa der Hälfte der maximalen Geschwindigkeit, so daß die relativistische Doppler-Verschiebung für dieses Spektrum nur etwa 10 Hz beträgt.

4.2 Ramsey-Spektroskopie

Eine alternative Möglichkeit, die Auflösung der Zweiphotonen 1S-2S Resonanz weiter zu steigern, wird mit der optischen Ramsey-Spektroskopie verfolgt. Dabei handelt es sich um eine bereits aus dem Radio- und Mikrowellenbereich bekannte Technik, die schon in Kapitel 3.3 im Rahmen der Cäsium-Atomuhren vorgestellt wurde. Die grundlegende Idee dabei ist, eine einzige, durch ihre begrenzte Größe die Auflösung limitierende, Wechselwirkungsregion durch zwei getrennte Zonen zu ersetzen [Ram89]. Betrachtet man ein Atom als ein relaxationsfreies Zwei-Niveau System, so versetzt die Wechselwirkung mit dem anregenden Feld der ersten Zone das Atom in eine kohärente Superposition aus Grund- und angeregtem Zustand. Das Atom propagiert dann frei, bis es in der zweiten Zone, je nach Phasenlage zwischen atomarem Dipol und Feld, entweder ab- oder angeregt wird. Nimmt man dabei die Zahl der angeregten Atome gegen die Verstimmung des treibenden Feldes von der Resonanz auf, so erhält man eine oszillierende Funktion, die sogenannten Ramsey-Streifen. Bezeichne t die Wechselwirkungszeit in jeweils einer Zone und T die Zeit zwischen den beiden Zonen, so ist die Breite der Einhüllenden durch $1/t$ und die der Ramsey-Streifen durch $1/2T$ gegeben. Durch Vergrößerung des Abstands der beiden Wechselwirkungszone kann somit die Auflösung im Prinzip beliebig gesteigert werden. Der Übertrag auf die Spektroskopie mit optischen Pulsen erweist sich aber als nicht unproblematisch. Während die Atome bei Wechselwirkung mit Radio- und Mikrowellenpulsen die gleiche räumliche Phase erfahren, ist dies wegen der Wellenlänge von nur einigen 100 nm bei optischen Wellen nicht mehr der Fall. So kann nicht verhindert werden, daß Atome, die zwar das erste Lichtfeld am gleichen Ort kreuzen und damit die gleiche Phase haben, im zweiten Lichtfeld auf Orte verschiedener Phase treffen. Damit werden die Atome unterschiedlich an- und abgeregt, was zu einem Auslöschung der Interferenzstreifen führt. Verwendet man statt zwei Wechselwirkungszone drei oder mehrere in geeigneter Anordnung, kann dieses Problem umgangen werden [Bak76], wie es beispielsweise in einem Ca-Frequenzstandard Anwendung findet [Rie91]. Im Fall der Doppler-freien Zweiphotonen-Anregung sind je-

doch zwei Zonen ausreichend. Diese werden von stehenden Wellen gebildet, für die die Phase nicht mehr vom Ort abhängt.

In einem ersten Versuch die Ramsey-Spektroskopie auf den $1S-2S$ Übergang in atomarem Wasserstoff anzuwenden, gelang dies in einer früheren Arbeit mit Hilfe von zwei räumlich getrennten Wechselwirkungszone [Hub97, Hub98a]. Dabei wurde der lineare Resonator zur Überhöhung des UV-Lichts bei 243 nm durch einen gefalteten Resonator, bestehend aus drei Spiegeln, ersetzt. Die Trajektorien der Atome kreuzen die beiden „Arme“ des Resonators, die somit zwei räumlich getrennte Wechselwirkungszone darstellen. Das Problem bei dieser Anordnung besteht darin, daß der Zweiphotonen-Übergang vergleichsweise schwach ist (Kapitel 2.5). Tatsächlich gelang die Beobachtung von Ramsey-Streifen erst unter einem möglichst flachen Winkel der beiden „Arme“ des Resonators gegen die Achse des Atomstrahls. Dies führt zu einer Verlängerung der Wechselwirkungszeit in den einzelnen Zonen und damit zu einer höheren Anregung. Bisher war es nicht möglich ein gutes Signal- zu Rausch-Verhältnis zu erreichen, was auf die geringe Anzahl angeregter Atome zurückzuführen ist. Aufgrund der Geschwindigkeitsverteilung des Atomstrahls „sehen“ die verschiedenen Geschwindigkeitsklassen die beiden Wechselwirkungszone zu unterschiedlichen Zeitpunkten, so daß die Ramsey-Streifen ausschmieren. Daher konnte mit dieser Anordnung nur der Streifen nullter Ordnung beobachtet werden.

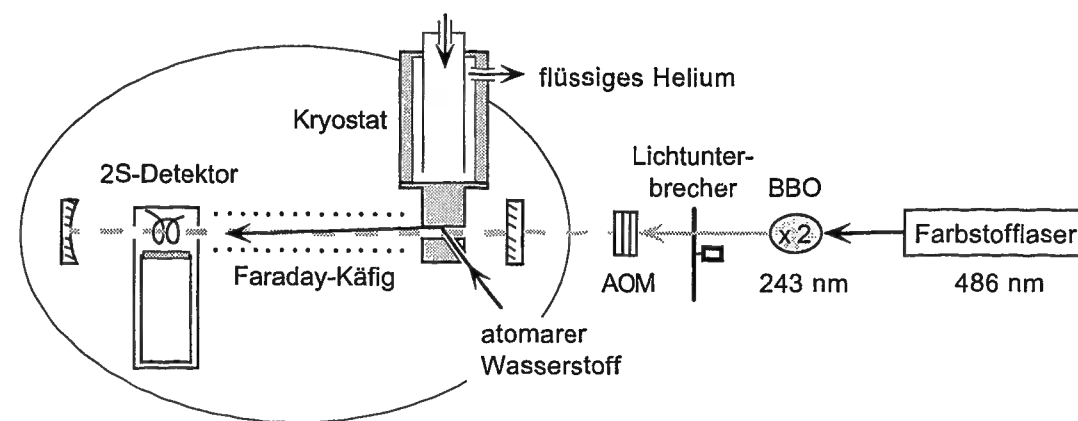


Abbildung 4.4: Modifizierter Aufbau des Wasserstoff $1S-2S$ Spektrometers zur Ramsey-Spektroskopie mit periodischen Lichtpulsen.

Viele der experimentellen Probleme, die aufgrund des schwachen Zweiphotonen-Übergangs mit räumlich getrennten Zonen auftreten, können umgangen werden, indem die Wechselwirkungszone nicht räumlich, sondern zeitlich getrennt werden, ohne daß sich an dem Prinzip der Ramsey-Spektroskopie etwas ändert [Gro98, Gro98a]. Den experimentellen Aufbau zur Beobachtung von Ramsey-Streifen mit zeitlich getrennten Wechselwirkungszone zeigt Abbildung 4.4. Der Aufbau ist völlig analog zu dem in Kapitel 3.1 gezeigten Aufbau und deshalb hier nur kurz skizziert. Ausgangspunkt für die Zweiphotonen-Spektroskopie ist wieder das UV-Licht bei 243 nm eines frequenzver-

doppelten Farbstofflasers, das mit Hilfe eines Lichtunterbrechers periodisch ein- und ausgeschaltet wird. Auch die Anregungsgeometrie ist identisch mit der in Kapitel 3.1 gezeigten. Der einzige Unterschied besteht darin, daß das Anregungslicht mit einem antireflexbeschichteten akusto-optischen Modulator (AOM) bei einer Trägerfrequenz von 110 MHz amplitudenmoduliert wird. Experimentiert wird mit der unverschobenen Ordnung des AOMs mit einem Verlust von 2 %, dem im angesteuerten Zustand ein Verlust in die erste Ordnung von 98 % gegenübersteht. Aufgrund der quadratischen Abhängigkeit der Anregung von der Lichtleistung wird somit ein Auslöschungsverhältnis von etwa 1:2000 erreicht, das sicherstellt, daß nahezu keine Anregung mehr stattfindet, wenn das AOM angesteuert wird und das Licht in die erste Ordnung gelenkt wird.

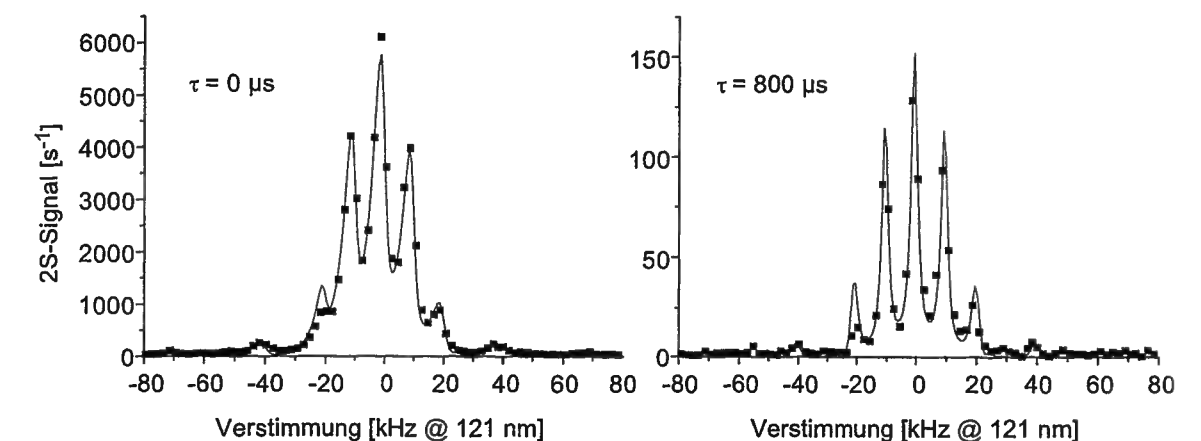


Abbildung 4.5: Zweiphotonen-Ramsey-Spektrum des Wasserstoff $1S-2S$ Übergangs, aufgenommen bei einer Modulationsfrequenz von 10 kHz. Das Verhältnis Hell- zu Dunkelphase beträgt 1:2, entsprechend Interferenzen der ein-, zwei-, vier-, fünf- und siebenfachen Modulationsfrequenz. Im linken Teil ist das Signal ohne zeitliche Verzögerung, im rechten mit $\tau=800 \mu\text{s}$, aufgetragen. Eine Modifikation des theoretischen Linienformmodells liefert durch Anpassung an die experimentellen Daten die durchgezogenen Linien.

Abbildung 4.5 zeigt ein typisches Ramsey-Spektrum, das mit einer Modulationsfrequenz von 10 kHz aufgenommen wurde. Bei dieser Modulationsfrequenz wechselwirken die Atome im Mittel zweimal mit dem Lichtfeld. Aufgetragen ist die $2S$ -Zählrate gegen die Laserverstimmung, wobei links ein Spektrum ohne zeitliche Verzögerung und rechts mit einer Verzögerung von $\tau=800 \mu\text{s}$ gezeigt ist. Die durchgezogenen Linien ergeben sich durch Anpassen des, für diesen Zweck modifizierten, theoretischen Linienformmodells an die experimentellen Daten. Neben dem Ramsey-Streifen nullter Ordnung sind auch Interferenzen höherer Ordnung mit gutem Kontrast deutlich zu erkennen. Bei der Pulsform handelt es sich um eine Rechteckfunktion mit einem Verhältnis von Hell- zu Dunkelphase von 1:2. Ein einfaches Modell zur Erklärung der Ordnungen der auftretenden Interferenzen ergibt sich aus dem Fourier-Spektrum der Pulsform. Dieses liefert an den Stellen der Maxima Frequenzkomponenten, die sich im Frequenzraum als Sei-

tenbänder bei Harmonischen der Modulationsfrequenz ergeben. Daher fehlen in dem Spektrum beispielsweise die Ramsey-Streifen dritter Ordnung. In Anhang A werden verschiedene Pulsformen vorgestellt für die, den Fourierkomponenten entsprechend, andere Ordnungen auftreten. Dort werden auch Experimente zur Anregung der Atome unter Verwendung höherer Modulationsfrequenzen vorgestellt, bei denen die Atome im Mittel mehr als zwei Lichtpulse sehen. Die beobachteten Spektren zeigen so das von optischen Vielstrahlinterferenz-Experimenten bekannte Airy-Muster.

Die Ramsey-Streifen sitzen auf einem breiten Untergrund, der von schnellen Atomen gebildet wird, die nur einmal mit dem Lichtfeld wechselwirken können. Im rechten Teil der Abbildung 4.5 ist das Ramsey-Spektrum bei einer Verzögerungszeit $\tau = 800 \mu\text{s}$ dargestellt. Aufgrund der hohen Verzögerungszeit ist der Anteil schneller Atome deutlich reduziert und somit ist der beobachtete Untergrund im rechten Teil wesentlich kleiner als im linken. Die Breite der Interferenzstreifen ist, wie oben erwähnt, durch den zeitlichen Abstand T der Pulse zu $1/2T$ gegeben, beziehungsweise $1/T$, wenn man die Laserverstimmung bei der atomaren Eigenfrequenz angibt. Bemerkenswert ist, daß das theoretische Linienformmodell auch hier eine hervorragende Beschreibung der experimentellen Daten erlaubt.

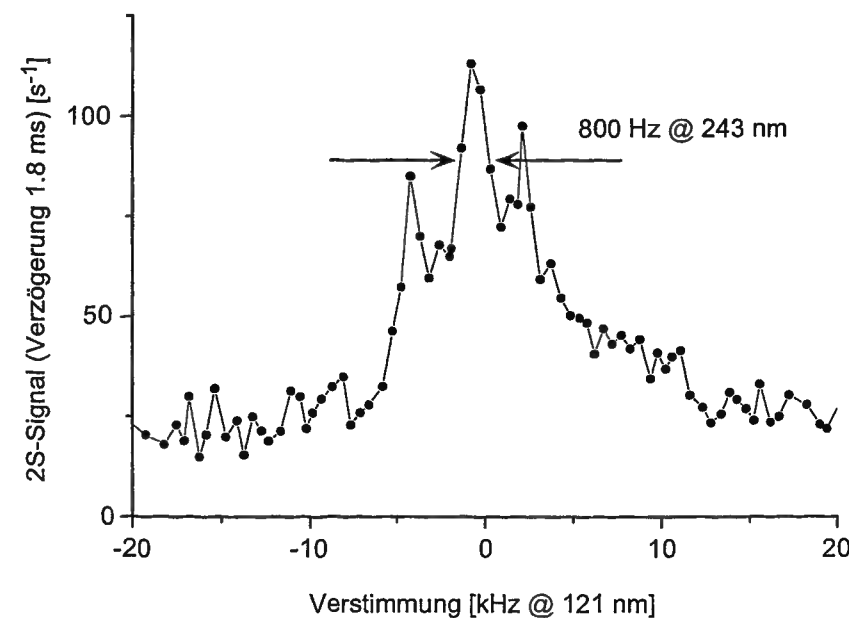


Abbildung 4.6: Hochaufgelöstes Wasserstoff 1S-2S Zweiphotonen Ramsey-Spektrum mit einer Periode von 3.2 kHz. Die Linienbreite des Interferenzstreifens nullter Ordnung beträgt 800 Hz.

Um die Auflösung zu steigern, kann der zeitliche Abstand zwischen den Lichtpulsen erhöht werden, was zu einem geringeren Frequenzabstand der Ramsey-Streifen führt. Wählt man jedoch Modulationsfrequenzen, die deutlich unterhalb von etwa 10 kHz liegen, so nimmt der Kontrast sehr rasch ab. Der Grund dafür liegt in der steigen-

den Anzahl von Atomen, die nur einmal mit dem Lichtfeld wechselwirken. Somit kann bei unverzögerten Spektren kein Interferenzmuster mehr aufgelöst werden. Bei einem verzögerten Spektrum ist der Anteil schneller Atome jedoch deutlich reduziert, so daß auch bei kleinen Modulationsfrequenzen, wie in Abbildung 4.6 dargestellt, eine Interferenzstruktur aufgelöst werden kann. Das Spektrum ist bei einer Verzögerung von 1.8 ms gegen die Laserverstimmung aufgetragen. Dabei wurde die Modulationsfrequenz zu 3.2 kHz gewählt, was einer Breite des Ramsey-Streifens nullter Ordnung von 800 Hz bei 243 nm entspricht.

Mit dieser Methode kann die Auflösung auf $6 \cdot 10^{-13}$ gesteigert werden, was die Auflösung mit kontinuierlicher Anregung noch etwas übertrifft. Grund dafür ist die weitere Selektion langsamer Atome, da zu der Interferenzstruktur nur Atome beitragen, die mindestens zwei Anregungspulse erfahren haben. Für die in dieser Arbeit durchgeführten Messungen der Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs ist es wichtig die Linienmitte der experimentellen 1S-2S Spektren mit hoher Genauigkeit angeben zu können. Im Vergleich zu Ramsey-Spektren ist die Bestimmung der Linienmitte bei Spektren, die wie in Kapitel 4.1 mit kontinuierlicher Anregung gewonnen wurden, bei weitem einfacher, mit weniger Rechenaufwand und mit höherer Genauigkeit möglich. Daher ist es in Zukunft vor allem wichtig, die experimentelle Auflösung der 1S-2S Resonanz bei kontinuierlicher Anregung weiter zu steigern.

4.3 Doppelresonante Spektroskopie

Die bisher vorgestellten Versuche haben den Doppler-freien 1S-2S Übergang in atomarem Wasserstoff zum Inhalt. Eine absolute Frequenzmessung dieses Übergangs zusammen mit einem weiteren absolut gemessenen Übergang in atomarem Wasserstoff ermöglicht die Bestimmung von Rydberg-Konstante und 1S-Lamb-Verschiebung. Ein alternativer Weg wird mit dem sogenannten doppelresonanten Experiment verfolgt. Dabei werden zwei Übergänge in atomarem Wasserstoff direkt miteinander verglichen. In diesem Fall handelt es sich um die beiden Zweiphotonen-Übergänge 1S-2S und 2S-4S. Aus dem direkten Vergleich eines Viertels der 1S-2S mit der 2S-4S Übergangsfrequenz läßt sich die 1S-Lamb-Verschiebung bestimmen. Der Vorteil liegt darin, daß sich bei Betrachtung dieser Frequenzkombination alle Größen, die quadratisch mit der Hauptquantenzahl skalieren (Dirac-Energien), aufheben. Es bleibt nur eine Kombination der Lamb-Verschiebungen der beteiligten Niveaus übrig, von denen die 1S-Lamb-Verschiebung den größten Anteil bildet. Mit einer so bestimmten 1S-Lamb-Verschiebung kann dann umgekehrt, zusammen mit der absolut bestimmten 1S-2S Frequenz, ein Wert für die Rydberg-Konstante angegeben werden.

Dieser Vergleich wurde vor wenigen Jahren mit Hilfe zweier Atomstrahlapparaturen durchgeführt [Wei92, Wei92a, Wei94, Wei95]. Der Aufbau zur Spektroskopie am 1S-2S Übergang entsprach dabei im wesentlichen der in Kapitel 3.1 vorgestellten Apparatur. An einem zweiten Wasserstoff-Atomstrahl wurden metastabile 2S-Atome durch Elek-

tronenbeschuß aus einer Glühkathode zur Untersuchung des $2S-4S$ Übergangs erzeugt. Um die kurzen Wechselwirkungszeiten mit dem heißen Atomstrahl auszugleichen, waren für die Anregung des $2S-4S$ Zweiphotonen-Übergangs vergleichsweise hohe Lichtleistungen nötig. Wegen des dynamischen Stark-Effekts führte dies zu einer deutlichen Verschiebung der Resonanz. Dieser systematische Effekt bildete gleichzeitig den limitierenden Faktor für die erreichte Genauigkeit und mußte durch Extrapolation der bei verschiedenen Lichtleistungen aufgenommenen $2S-4S$ Resonanz korrigiert werden. Die durch das Leuchten der Glühkathode erzeugte Untergrundzählrate verhinderte aber ein dafür nötiges gutes Signal- zu Rausch-Verhältnis. Das Ziel des doppelresonanten Experiments ist es, diese Nachteile auszuschalten, indem die beiden Zweiphotonen-Übergänge $1S-2S$ und $2S-4S$ an ein- und demselben kalten Atomstrahl untersucht werden. Die Hoffnung besteht darin, auch bei geringeren Lichtleistungen ein ausreichendes Signal- zu Rausch-Verhältnis zu erreichen und dadurch systematische Einflüsse zu reduzieren.

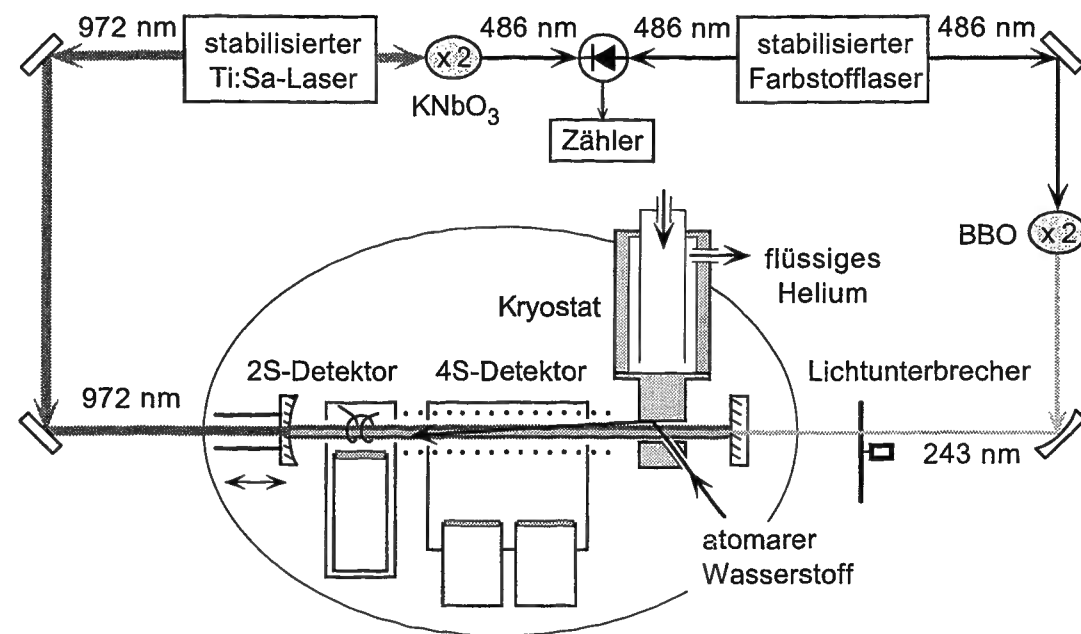


Abbildung 4.7: Experimenteller Aufbau zur Doppler-freien Anregung der beiden Zweiphotonen-Übergänge $1S-2S$ und $2S-4S$ an demselben kalten Atomstrahl.

Abbildung 4.7 zeigt den experimentellen Aufbau für die doppelresonante Spektroskopie an atomarem Wasserstoff. Hierzu wurde das in Kapitel 3.1 beschriebene Wasserstoff-Spektrometer erweitert. Der zusätzliche Aufbau zur Spektroskopie am $2S-4S$ Zweiphotonen-Übergang wird hier nur kurz skizziert, da die wesentlichen Ideen und Techniken denen zur Spektroskopie am $1S-2S$ Übergang entsprechen. Der $2S-4S$ Übergang hat eine natürliche Linienbreite von 690 kHz und kann wie der $1S-2S$ Übergang nur durch eine Zweiphotonen-Absorption angeregt werden. Das für den $2S-4S$ Zweiphotonen-Übergang benötigte Lasersystem wird von einem Titan-Saphir-Laser

(Schwartz Electro-Optics) bei einer Wellenlänge von 972 nm gebildet. Dieser wird von einem Argonionen-Laser (Coherent Innova 100) gepumpt und erreicht bei einer Pumpleistung von 13.5 W eine Ausgangsleistung von 1.3 W. Zur Reduzierung von Frequenzdrift und Linienbreite des Titan-Saphir-Lasers wird dieser analog zum Farbstofflaser (Kapitel 3.1) auf einen externen Referenzresonator stabilisiert (Finesse $F \cong 2000$). Als Stallelemente dienen ein Piezospiegel des Laserrings für kleine und mittlere Frequenzen, sowie ein akusto-optischer Modulator (AOM) außerhalb des Laserresonators für höhere Frequenzen. Um die beiden Übergänge $1S-2S$ und $2S-4S$ miteinander vergleichen zu können, werden etwa 50 mW des von dem Titan-Saphir-Laser emittierten Lichts bei 972 nm in einem KNbO_3 -Kristall frequenzverdoppelt. Dadurch erhält man etwa $3 \mu\text{W}$ blaues Licht bei 486 nm, das zusammen mit etwa 50 mW des Lichts vom Farbstofflaser auf einer schnellen Photodiode überlagert wird. Die so erzeugte Schwebungsfrequenz bei etwa 4.8 GHz wird mit einem Frequenzgenerator auf etwa 10 MHz heruntergemischt, anschließend mit einem 500 kHz breiten Bandpaß gefiltert und schließlich mit einem Frequenzzähler (Hewlett Packard, HP 56131A) gemessen.

Der Hauptanteil des Lichts bei 972 nm wird in die Vakuumkammer eingekoppelt und in dem um die Wechselwirkungs-Region angebrachten linearen Resonator überhöht. Der Resonator wird von zwei Spiegeln gebildet, die gleichzeitig resonant für beide Anregungswellenlängen bei 972 und 243 nm sind. Die Finesse für das UV-Licht beträgt mit diesen Spiegeln etwa 60 und ist damit um einen Faktor vier schlechter als in dem einfach resonanten Fall (Kapitel 3.1). Für das IR-Licht bei 972 nm ergibt sich mit denselben Spiegeln eine Finesse von etwa 500. Mit diesem Aufbau ist sicher gestellt, daß die UV-Mode völlig von der IR-Mode umfaßt wird, und damit jedes in der UV-Mode angeregte metastabile $2S$ -Atom das Licht bei 972 nm „sieht“ und weiter in den $4S$ -Zustand angeregt werden kann. Der $4S$ -Zustand zerfällt mit 58 % Wahrscheinlichkeit unter Aussendung eines Balmer- β -Photons (486 nm) in den $2P$ -Zustand. Die Wechselwirkungszone wird von einem parabolischen Hohlspiegel umgeben, auf dessen erster Brennpachse der Atomstrahl Photonen bei 486 nm emittiert. Die gesammelten Photonen können mit einer Anordnung von zwei Photomultipliern, welche auf der zweiten Brennebene angebracht sind, nachgewiesen werden. Zur Unterdrückung von Streulicht ist der Hohlspiegel mit mehreren Blenden abgeschirmt und vor den Photomultipliern mit Farbfiltern versehen. Die Länge des Resonators läßt sich mit Hilfe einer Verschiebeeinheit so weit verstellen, daß sie sowohl ein ganzzahliges Vielfaches der UV- als auch der IR-Wellenlänge beträgt. Der Einkoppelspiegel für das UV-Licht sitzt auf einer Piezokeramik, durch deren Nachregeln die Länge des Resonators auf ein gemeinsames Vielfaches der beiden Wellenlängen stabilisiert werden kann. Damit beide Wellenlängen bei Verstimmen des Titan-Saphir-Lasers über die $2S-4S$ Resonanz auch gleichzeitig überhöht werden, muß die Verschiebeeinheit bei jeder Frequenzänderung nachgeregelt werden.

Bevor man aber mit der Spektroskopie am $2S-4S$ Übergang beginnen kann, muß die Frequenz des UV-Lichts erst auf die $1S-2S$ Resonanz gestellt werden. Dazu wird der Farbstofflaser über die $1S-2S$ Resonanz verstimmt. Abbildung 4.8 zeigt diese Resonanz, aufgetragen gegen die Laserverstimmung, unter dem Einfluß verschiedener

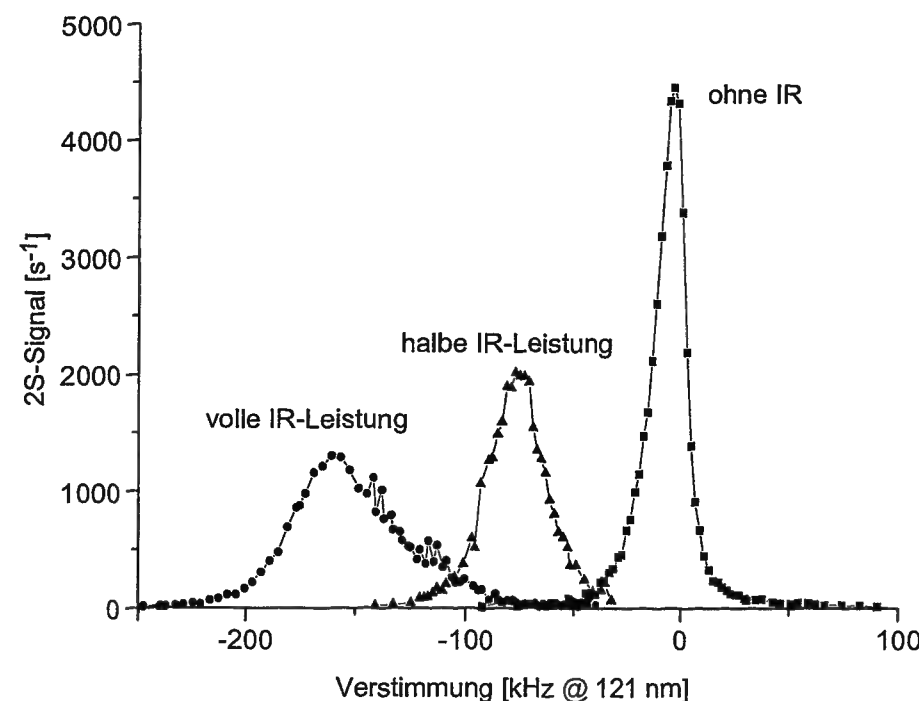


Abbildung 4.8: Wasserstoff 1S-2S Spektren, aufgenommen unter dem Einfluß verschiedener IR-Leistungen. Deutlich zu erkennen ist die Verbreiterung und die, durch den dynamischen Stark-Effekt bedingte, Verschiebung der Resonanz.

IR-Leistungen. Deutlich zu erkennen ist die zu der Lichtleistung proportionale Verschiebung der Resonanz. Diese dynamische Stark-Verschiebung stellt den größten systematischen Effekt bei dem Vergleich der beiden Übergangsfrequenzen dar. Um diese Verschiebung zu korrigieren, wird die 2S-4S Resonanz bei verschiedenen Lichtleistungen aufgenommen und zu verschwindender Lichtleistung hin extrapoliert. Für die Spektroskopie am 2S-4S Übergang wird die Frequenz des Farbstofflaser mit Hilfe des Meßprogramms auf der 1S-2S Resonanz gehalten. Dabei wird die 2S-Zählrate leicht rot und im nächsten Schritt um den gleichen Betrag leicht blau verstimmt aufgenommen. Die Differenz der beiden Zählraten liefert ein Fehlersignal, welches die Regelung der Farbstofflaserfrequenz auf die 1S-2S Resonanz erlaubt. Die so durch den Farbstofflaser ständig nachgelieferten metastabilen 2S-Atome können mit dem IR-Licht mittels Doppler-freier Zweiphotonen-Spektroskopie weiter in den 4S-Zustand angeregt werden. Dazu wird der Titan-Saphir-Laser über die 2S-4S Resonanz verstimmt und die Balmer- β -Fluoreszenz mit dem 4S-Detektor aufgenommen.

Abbildung 4.9 zeigt ein Beispiel für ein solches Spektrum bei fast voller IR-Leistung unter Verwendung zweier unterschiedlicher Nachweistekniken. Die linke Bildhälfte zeigt die gemessene 4S-Zählrate gegen die Schwebungsfrequenz. Auffallend ist dabei der im Vergleich zur Signalthöhe große Untergrund, vor allem wenn man bedenkt, daß für dieses Spektrum eine Meßzeit von 15 min nötig ist. Die rechte Bildhälfte in Abbildung 4.9

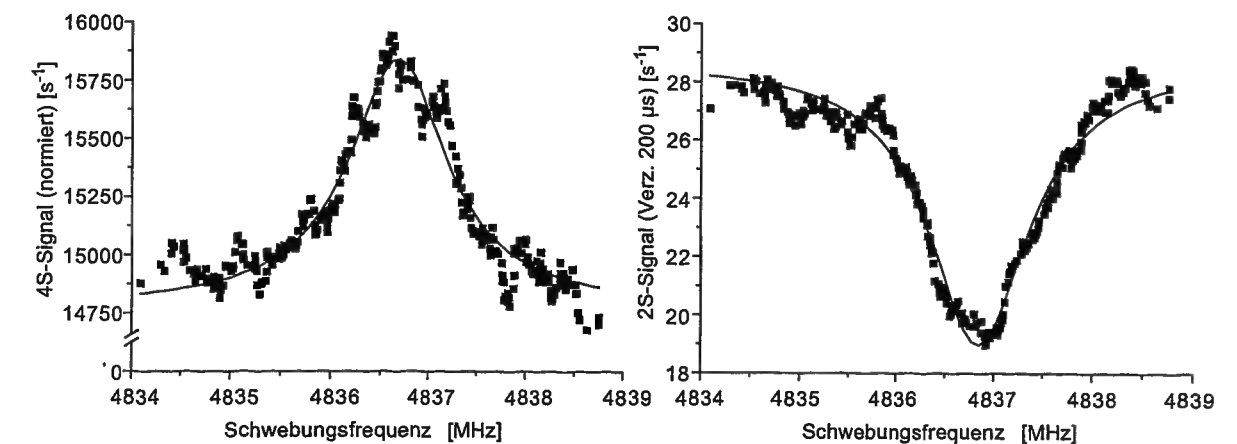


Abbildung 4.9: Links: Wasserstoff 2S-4S Spektrum. Aufgetragen ist die Balmer- β -Fluoreszenz als direkter Nachweis. Rechts: Einbruch der 2S-Zählrate als indirekter Nachweis, hier bei einer Verzögerung von 200 μ s.

zeigt als indirekten Nachweis den Einbruch in der 2S-Zählrate, bedingt durch die weitere Anregung von 2S-Atomen in den 4S-Zustand. Aufgrund eines für höhere Verzögerungszeiten zu geringem Signal- zu Rausch-Verhältnisses konnte dieser Einbruch nur bis herauf zu einer Verzögerung $\tau=300 \mu$ s nachgewiesen werden. Die Balmer- β -Fluoreszenz wird in der Periode aufgenommen, in der auch das UV-Licht zur Anregung von 2S-Atomen eingestrahlt wird. Der indirekte Nachweis kann nur in der Periode erfolgen, in der das UV-Licht für die Aufnahme der 2S-Zählrate von dem Lichtunterbrecher geblockt wird. Die Linienmitte des in Abbildung 4.9 gezeigten Spektrums ergibt sich durch Anpassung mit einem Lorentzprofil zu 4836.68 MHz für die 4S-Fluoreszenz und zu 4836.85 MHz für den Einbruch in der 2S-Zählrate. Die so gewonnenen Werte liegen um etwa 500 kHz über dem Literaturwert [Wei95]. Diese Verschiebung wird durch den dynamischen Stark-Effekt verursacht und wächst linear mit der Lichtleistung an. Abbildung 4.10 zeigt die beobachtete Linienmitte für Spektren mit unterschiedlichen IR-Leistungen im Resonator. Wegen des schlechten Signal- zu Rausch-Verhältnisses bei direktem Nachweis einerseits, und einem verschwindendem Einbruch bei indirektem Nachweis andererseits, kann die 2S-4S Resonanz nur bis knapp unter die Hälfte der maximalen Leistung aufgelöst werden. Die aufgetragenen Werte lassen sich gut mit jeweils einer Geraden zu verschwindender Lichtleistung extrapolieren, so daß der unverschobene Wert für die Schwebungsfrequenz bei

$$1/4 f_{1S-2S} - f_{2S-4S} = 4836.138(75) \text{ MHz} \quad (4.1)$$

liegt. Eine genauere Analyse der Daten zeigt, daß die Flanken der Signale eine wichtige Rolle bei der Anpassung eines Lorentzprofils spielen, womit sich ein gegenüber [Gro98] nach unten korrigierter Wert ergibt. In dieser Arbeit werden nicht nur die Daten der 4S-Fluoreszenz, sondern erstmals auch der Einbruch der 2S-Zählrate, berücksichtigt. Der hier angegebene Wert für die Schwebungsfrequenz ergibt sich aus dem gewichteten Mittel der beiden angepaßten und miteinander konsistenten Geraden, und ist in guter

Übereinstimmung mit dem früher bestimmten Wert 4836.178(10) MHz [Wei95], wobei die damals gewonnene Genauigkeit die hier erreichte noch etwa um einen Faktor sieben übertrifft. Will man diese Genauigkeit weiter steigern, muß beachtet werden, daß die bei hohen Leistungen aufgenommenen Spektren durch optisches Pumpen zu gering verschoben sind, so daß eine Extrapolation mit einer Geraden nicht mehr zulässig ist. Rechnungen zu früheren Experimenten bestätigen [Wei95, Gar90], daß der sehr schwache Zweiphotonen-Übergang bei so hohen Lichtleistungen, wie sie hier auftreten, eine Sättigung zeigt. Anschaulich bedeutet dies, daß Atome auf der IR-Strahlachse bei hohen Leistungen durch optisches Pumpen in den Grundzustand im geringeren Maß vorhanden sind als seitlich davon, was zu einer asymmetrischen Verbreiterung und somit zu einer nichtproportionalen Verschiebung der Schwebungsfrequenz führt. Um diesen Effekt genau zu beschreiben, sind umfangreiche Simulationsrechnungen nötig, aber vor allem das Aufnehmen von Resonanzen für kleine IR-Leistungen.

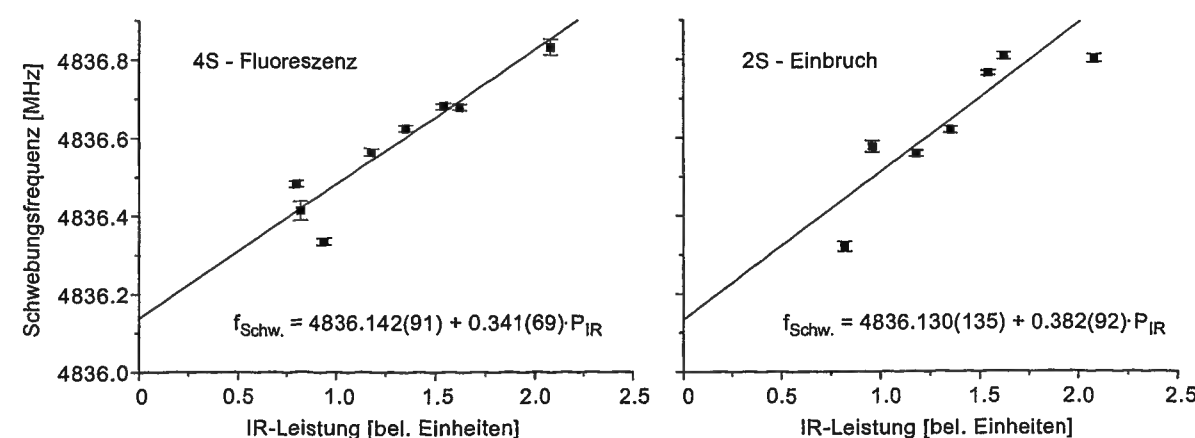


Abbildung 4.10: Extrapolation der, bei verschiedenen IR-Leistungen aufgenommenen, Linienmitten der 2S-4S Resonanz. Links ist das Ergebnis der aus der 4S-Fluoreszenz gewonnenen Daten aufgetragen, rechts das aus dem Einbruch der 2S-Zählrate.

Bei kleinen IR-Leistungen kann jedoch der Einbruch der 2S-Zählrate nicht mehr aufgelöst werden. Auch der Nachweis von 4S-Atomen mit Hilfe der Fluoreszenz der Atome ist wegen des zu schlechten Signal- zu Rausch-Verhältnisses bei geringen IR-Leistungen nicht mehr möglich. Das größte experimentelle Problem stellt das einen Untergrund bei den Fluoreszenz-Spektren bewirkende Streulicht dar. Auch der Einbau mehrerer Blenden um den 4S-Detektor und auf den Resonatorspiegeln konnte den, vermutlich von den Spiegeln durch Verluste des UV-Lichts ins sichtbare Spektrum herrührenden, Untergrund nicht verkleinern. Abhilfe könnte ein völlig neu konzipierter 4S-Detektor schaffen, bei dem der Einsatz schmalbandiger Interferenzfilter möglich ist. Diese können bei dem hier verwendeten Hohlspiegel nicht eingesetzt werden, da die Fluoreszenz unter großen Winkeln auf die Detektoren fällt. Eine weitere Problematik stellt die im Vergleich zu den einfach resonanten UV-Spiegeln geringere Reflektivität der doppelresonanten Spiegel dar. Die hier um einen Faktor vier kleinere Finesse des UV-Resonators verursacht eine um den Faktor sechzehn geringere Anregungsrate des

1S-2S Zweiphotonen-Übergangs im Vergleich zu dem einfach resonanten Fall. Damit stehen erheblich weniger metastabile Atome für eine weitere Anregung zur Verfügung.

Eine Möglichkeit die mit den doppelresonanten Spiegeln verbundenen Probleme zu umgehen, wäre die Anregung der metastabilen 2S-Atome in höhere Niveaus, wie zum Beispiel 8S bzw. 8D. Der Vorteil wäre, daß die Spiegelschichten in diesem Fall besser konzipiert werden könnten, da die beiden Frequenzen nicht mehr Harmonische voneinander sind. Laut Herstellerangabe [Mel99] könnte man beispielsweise doppelresonante Spiegel für eine Anregung der 2S-8S bzw. 2S-8D Resonanz bei 778 nm mit einer ähnlichen Güte herstellen wie im einfach resonanten Fall. Somit stünden ähnlich viele metastabile 2S-Atome wie im einfach resonanten Fall zur Verfügung, so daß auch mehr Atome in einen höheren Zustand angeregt werden könnten. Die Frequenz des 2S-8S bzw. 2S-8D Übergangs könnte dann auch mit Hilfe der Frequenzkette (Kapitel 3.2) absolut ausgemessen werden. Zusammen mit der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messung der Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs wäre es dann möglich, einen neuen Wert für sowohl die 1S-Lamb-Verschiebung als auch die Rydberg-Konstante anzugeben.

Kapitel 5

Linienformmodell

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs ist es wichtig die Linienmitte der experimentellen $1S$ - $2S$ Spektren mit hoher Genauigkeit angeben zu können. Dabei ist es von entscheidender Bedeutung systematische Einflüsse auf die Übergangsfrequenz detailliert zu verstehen, zu reduzieren und gegebenenfalls zu korrigieren. Der größte systematische Effekt, der einen verschiebenden Einfluß auf die Linienmitte hat, ist der Doppler-Effekt zweiter Ordnung. Wie bereits in Kapitel 4.1 ausführlich dargestellt, wird dieser geschwindigkeitsabhängige Effekt durch Selektion langsamer Atome eines kalten Atomstrahls deutlich verkleinert. Durch Anpassen eines theoretischen Linienformmodells an die experimentellen Daten konnte der Doppler-Effekt bis auf $1/100$ der experimentell gewonnenen Linienbreite korrigiert werden.

Im ersten Teil dieses Kapitels wird das theoretische Linienformmodell vorgestellt, das maßgeblich im Rahmen der Dissertation von A. Huber [Hub97, Hub98b] entwickelt und in dieser Arbeit für Auswertungen der Absolutfrequenzmessung des $1S$ - $2S$ Übergangs in atomarem Wasserstoff (Kapitel 6) aufbereitet wurde. Es wird gezeigt, wie unter Berücksichtigung der Anregungsgeometrie und experimenteller Rahmenbedingungen das theoretische Modell in der Lage ist die experimentell gewonnene Linienform des $1S$ - $2S$ Zweiphotonen-Übergangs wiederzugeben. Durch Anpassen des Modells an die experimentellen Daten kann die Linienmitte des $1S$ - $2S$ Übergangs auf wenige zehn Hertz angegeben werden. Im zweiten Teil folgt eine Diskussion weiterer, neben dem Doppler-Effekt zweiter Ordnung, wichtiger systematischer Effekte, die einen verbreiternden und verschiebenden Einfluß auf den $1S$ - $2S$ Übergang haben. Dabei bildet der durch die Wechselwirkung des Lichtfelds mit den Atomen bedingte dynamische Stark-Effekt den größten verschiebenden Effekt. Um die in dieser Arbeit vorgestellte Genauigkeit zu erreichen, wurde dieser systematisch untersucht und korrigiert. Darüber hinaus wird der Beitrag einiger kleinerer systematischer Effekte, wie der des statischen Stark-Effekts und der Druckverschiebung, diskutiert.

5.1 Theoretisches Linienformmodell

Die Simulationen der Linienform des $1S$ - $2S$ Übergangs erfordert die genauere Beschreibung der Population und Kohärenz zweier atomarer Niveaus des Wasserstoffatoms. Der Grundzustand $|a\rangle$ entspricht dabei dem Hyperfeinniveau $1S_{1/2}(F=1)$ und der angeregte Zustand $|b\rangle$ dem $2S_{1/2}(F=1)$ -Zustand in atomarem Wasserstoff. Aus dieser Annahme ergibt sich für die Populationen ρ_{aa} und ρ_{bb} von Grund- und angeregtem Zustand sowie deren Kohärenz ρ_{ab} folgendes System gekoppelter Differentialgleichungen, das unter dem Namen Bloch-Gleichungen [Coh77, Mey89] bekannt ist:

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{aa}(t) &= -\frac{2}{\hbar} \cdot M'_{ab} \cdot I_L \cdot \text{Im}[\rho_{ab}(t)] \\ \dot{\rho}_{bb}(t) &= \frac{2}{\hbar} \cdot M'_{ab} \cdot I_L \cdot \text{Im}[\rho_{ab}(t)] \\ \dot{\rho}_{ab}(t) &= -i\Delta\omega \cdot \rho_{ab}(t) - \frac{i}{\hbar} \cdot M'_{ab} \cdot I_L \cdot [\rho_{bb}(t) - \rho_{aa}(t)] .\end{aligned}\quad (5.1)$$

Die Intensität des anregenden Lichtfelds der Frequenz ω_L wird dabei mit I_L und dessen Verstimmung gegen die atomare Resonanz ω_{ab} mit $\Delta\omega = 2\omega_L - \omega_{ab}$ bezeichnet. Die Größe M'_{ab} ist durch das Matricelement M_{if} für Zweiphotonen-Übergänge aus Kapitel 2.5 und dem dort angegebenen Zahlenwert für den $1S$ - $2S$ Übergang zu

$$M'_{ab} = \frac{1}{2} \cdot \frac{M_{if}}{\hbar\epsilon_0 c} = 2.4398 \cdot 10^{-38} \text{ J(W/m}^2\text{)}^{-1} \quad (5.2)$$

gegeben. Die Bloch-Gleichungen können hier in guter Näherung ohne Relaxationen angenommen werden, da die Lebensdauer des angeregten Zustands von $1/7$ s die experimentell möglichen Wechselwirkungszeiten bei weiten übertrifft. Mit diesen Gleichungen kann nun die theoretische Linienform unter Berücksichtigung der verwendeten Anregungsgeometrie berechnet werden.

Um der Anregungsgeometrie Rechnung zu tragen, werden einige einfache Grundannahmen gemacht. Dabei bewegt sich ein Atom mit der Geschwindigkeit v auf einer klassischen Bahn von der Düse zu dem $2S$ -Detektor. Auf seiner Bahn kreuzt das Atom das anregende Laserlichtfeld, wie in Abbildung 5.1 angedeutet. Das Atom befindet sich beim Start in der Düse zum Zeitpunkt $t = 0$ im $1S$ -Grundzustand. Zum Zeitpunkt $t = T_f$ wird die durch die Wechselwirkung mit dem Laserlichtfeld erzeugte Besetzung $\rho_{bb}(t)$ des angeregten $2S$ -Zustands im Detektor abgefragt. Dabei wird die Form des elektrischen Feldes, das den $2S$ - mit dem $2P$ -Zustand mischt, nicht berücksichtigt. Es wird angenommen, daß das angeregte Atom in der Mitte des Detektors unter Aussendung eines L_α -Photons zerfällt. Die Intensität I_L des anregenden Laserlichtfelds der Frequenz ω_L ist nach [Kog66] durch ein Gaußprofil gegeben:

$$I_L(r, z) = \frac{2P}{\pi w(z)^2} \cdot e^{-2(\frac{r}{w(z)})^2}, \quad (5.3)$$

$$\text{mit } w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2}\right)^2}, \quad w_0 = \sqrt{\frac{\lambda}{\pi} \sqrt{D(R-D)}}.$$

Der Abstand der Spiegel wird mit D (hier 270 mm) und der Radius des gekrümmten hochreflektierenden Spiegels mit R (hier -2000 mm) bezeichnet. Die Form des Überhöhungsresonators geht über den Strahlradius w und die Strahltaile w_0 ($w_0 = 230 \mu\text{m}$) in das Strahlprofil des Laserlichtfelds ein. Die Leistung P gibt die gesamte Leistung des anregenden Laserlichtfelds mit der Wellenlänge $\lambda = 243.1$ nm an. Um die Symmetrie des Aufbaus auszunutzen, wird das Problem mit Zylinderkoordinaten behandelt, wobei der Abstand r von der Strahlachse und die Entfernung z von dem Einkoppelspiegel in das Strahlprofil eingehen. Die endliche Zeit, in der das Atom das anregende Lichtfeld „sieht“, führt zu der sogenannten Durchflugsverbreiterung. Um diese auf natürliche Art und Weise zu berücksichtigen, werden die Simulationen im atomaren Bezugssystem durchgeführt. In diesem System ergibt sich das anregende Lichtfeld $I_L(r, z)$ mit den Trajektorien der Atome zu $I_L(r(t), z(t))$.

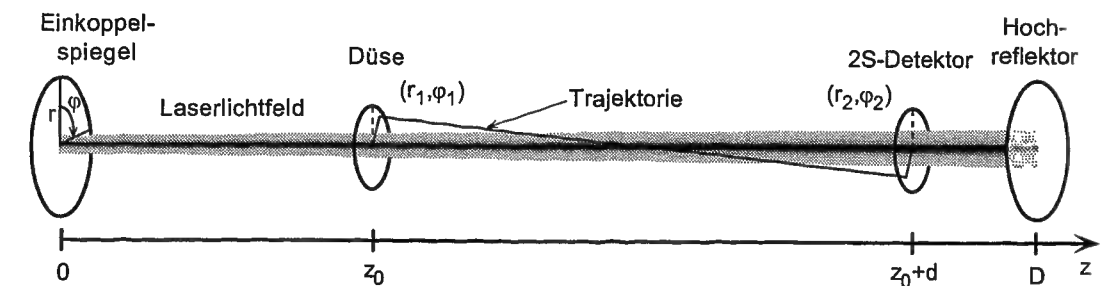


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung der Anregungsgeometrie.

Basierend auf diesen Annahmen können nun die experimentellen Rahmenbedingungen in das Modell eingebaut werden. Der Doppler-Effekt zweiter Ordnung wird dabei durch die im atomaren System verschobene Laserfrequenz ω_L zu $\omega_L[1 + \frac{1}{2}(v/c)^2]$ berücksichtigt. Damit ist die Verstimmung $\Delta\omega$ aus Gleichung 5.1 durch

$$\Delta\omega = 2\omega_L - \omega_{ab} + \left(\frac{v}{c}\right)^2 \omega_L \quad (5.4)$$

gegeben. Um das periodische Ein- und Ausschalten des anregenden Laserlichtfelds aufgrund des mechanischen Lichtunterbrechers (Kapitel 3.1) zu berücksichtigen, wird eine periodische Rechteckfunktion $R(t)$ eingeführt, mit der die Intensität I_L aus Gleichung 5.3 multipliziert wird. Die beiden Werte Null und Eins der Funktion $R(t)$ stehen für Licht „aus“ und „an“. Dabei muß beachtet werden, wann ein Atom in Bezug auf den Lichtunterbrecher in der Düse startet. Eine Funktion ϕ_{ch} gibt dazu die Phasendifferenz des Zeitpunkts, zu dem ein Atom in der Düse startet, zum Zeitpunkt des nächsten Sprungs der Funktion $R(t)$ von Null auf Eins an. Der Beitrag eines Atoms zum $2S$ -Signal ist damit durch

$$\rho_{bb}(T_f)_{\Delta\omega} = \rho_{bb}(T_f = \frac{d}{v}, \underline{r}_1, \underline{r}_2, \phi_{ch})_{\Delta\omega} \quad (5.5)$$

gegeben. Wie in Abbildung 5.1 skizziert, gibt d den Abstand zwischen Düse und Detektor an, wobei die Vektoren $\underline{r}_1 = (r_1, \varphi_1)$ und $\underline{r}_2 = (r_2, \varphi_2)$ den Start- und Endpunkt

der Trajektorie bezeichnen, auf der sich ein Atom mit der Geschwindigkeit v bewegt. Aus diesen Angaben ist die Trajektorie vollständig bestimmt (Abbildung 5.1) und damit auch die Intensität $I_L(r(t), z(t)) = I_L(r_1, \varphi_1, r_2, \varphi_2, z = vt, \phi_{ch})$ des anregenden Laserlichtfelds aus Gleichung 5.3, das ein Atom auf seinem Weg von der Düse zu dem Detektor erfährt.

Gleichung 5.5 wird mit Hilfe des Systems gekoppelter Differentialgleichungen 5.1 numerisch berechnet. Dazu wird ein Runge-Kutta-Algorithmus vierter Ordnung [Num89] verwendet. Um schließlich das 2S-Signal $S(\Delta\omega)$ bei verschiedenen Verstimmungen $\Delta\omega$ zu berechnen, muß der Beitrag eines einzelnen Atoms (Gleichung 5.5) über alle möglichen Trajektorien, die Geschwindigkeitsverteilung und die Phase ϕ_{ch} des Lichtunterbrechers integriert werden. Dazu wird folgender Ausdruck für einen Satz Verstimmungen $\Delta\omega$ berechnet:

$$S(\Delta\omega) = \int_v f(v) dv \int \int_{Raum} dr_1 dr_2 \int_{\phi_{ch}} d\phi_{ch} \rho_{bb}(T_f = \frac{d}{v}, r_1, r_2, \phi_{ch})_{\Delta\omega}. \quad (5.6)$$

Das vierdimensionale Integral über Düsen- und Detektorfläche kann aus Symmetriegründen auf ein dreidimensionales Integral reduziert werden. Die Integrationen werden für bestimmte Verstimmungen $\Delta\omega$ numerisch nach dem Gauß-Legendre-Verfahren [Num89] durchgeführt. Im Rahmen der Dissertation von A. Huber [Hub97] wurde ein effizienter Programmcode für die aufwendige Berechnung von $S(\Delta\omega)$ entwickelt. Die verwendeten Routinen wurden dabei so ausgelegt, daß die durch sie entstehende Unsicherheit die Mitte der berechneten Spektren um weniger als 0.1 % der Linienbreite verschiebt.

Bis jetzt wurden noch keine Annahmen über die Geschwindigkeitsverteilung $f(v)$ gemacht. Da die wichtigsten systematischen Effekte, Doppler-Effekt zweiter Ordnung und Durchflugsverbreiterung, direkt von dieser abhängen, ist es wichtig, diese in geeigneter Weise zu beschreiben. Die genaue Form von $f(v)$ ist aber nicht von vornherein bekannt und darüber hinaus wird im Experiment bei verschiedenen Temperaturen der Düse gearbeitet. Daher wird in Gleichung 5.6 das Geschwindigkeitsintegral nicht ausgeführt, sondern vielmehr der restliche Ausdruck in 5.6 für verschiedene diskrete Geschwindigkeiten v_j , die den Stützstellen der Gauß-Legendre-Integration entsprechen, berechnet. Das Ergebnis wird in einer Matrix m_{ij} abgespeichert, wobei i die verschiedenen Verstimmungen $\Delta\omega_i$ und j die diskreten Geschwindigkeiten v_j bezeichnet. Auf diese Art und Weise werden etwa 40 Matrizen für verschiedene Verzögerungszeiten berechnet, um die mit zeitverzögerter Technik aufgenommenen experimentellen Daten (Kapitel 4.1) zu beschreiben. Die Form der Geschwindigkeitsverteilung geht damit erst bei der Anpassung des theoretischen Modells an die experimentellen Daten ein. Dabei werden die $f(v)$ charakterisierenden Parameter bei der Anpassung als freie Parameter behandelt. Als Ergebnis sind diese zusätzlich bestimmt und geben Auskunft über die konkrete Form der Geschwindigkeitsverteilung.

Die Form der Geschwindigkeitsverteilung ist im wesentlichen dadurch bestimmt, daß der Atomstrahl von einer Düse geformt wird. Nach [Sco88] ist $f(v)$ im Prinzip durch

eine Maxwell-Verteilung gegeben:

$$f(v) = \frac{1}{N} v^3 e^{-(v/v_0)^2}, \quad \text{mit } v_0 = \sqrt{2kT/M}. \quad (5.7)$$

Dabei bezeichnet v die atomare Geschwindigkeit, v_0 die wahrscheinlichste Geschwindigkeit, k die Boltzmann-Konstante, M die atomare Masse, T die Temperatur des Atomstrahls und N einen Normierungsfaktor. Die Näherung $|v| \sim v_z$ ist in diesem Fall zulässig, da durch die Blenden nur Atome zum Signal beitragen, für die $v_z \geq 85v_{x,y}$ gilt. Aufgrund von Stößen innerhalb der Düse sind langsame Atome in geringerem Maß vorhanden als durch Gleichung 5.7 beschrieben [Sco88, Ber62]. Um die geringere Zahl langsamer Atome in dem Atomstrahl zu erklären, muß die in Gleichung 5.7 angegebene Form der Geschwindigkeitsverteilung noch etwas modifiziert werden. Schon Zacharias stellte bei dem Versuch, einen atomaren Springbrunnen mit einem Atomstrahl zu verwirklichen, fest, daß langsame Atome in wesentlich geringerem Maß vorhanden sind als es sich aus der Maxwell-Verteilung ergibt. Dieser Effekt ist daher heute unter dem Namen Zacharias-Effekt [For85, Ram90] bekannt. Um diesen Effekt zu berücksichtigen, wird die sogenannte Knudsenzahl K eingeführt, die sich aus der mittleren freien Weglänge $\bar{\lambda}$ und der Länge L_D der Düse als $K = \bar{\lambda}/L_D$ zusammensetzt. Für eine Düse mit dem Radius r_D und $L_D/r_D \gg 1$ (hier $L_D/r_D \cong 20$), kann der Zacharias-Effekt durch die Funktion $P(K, x)$ mit $x = v/v_0$ in Gleichung 5.7 berücksichtigt werden [Sco88] und liefert folgende korrigierte Form der Geschwindigkeitsverteilung:

$$f_c(x) = f(x) \cdot P(K, x), \quad \text{mit} \quad (5.8)$$

$$P(K, x) = \frac{\sqrt{\pi} \cdot \text{erf}[g(x)]}{2g(x)}, \quad g(x) = \sqrt{\frac{x^{-2/5} F_{a0}(6, x)}{2^{3/2} K}}.$$

In [Ber62] ist eine Tabelle für die Funktion $F_{a0}(6, x)$ angegeben. Die korrigierte Form $f_c(v)$ der Geschwindigkeitsverteilung geht für eine Knudsenzahl $K > 10$ in eine rein Maxwell'sche-Verteilung über, da dann Stöße innerhalb der Düse sehr unwahrscheinlich werden. Erst für $K < 10$ wird die Verteilung $f_c(v)$ gegenüber $f(v)$ zu höheren Relativgeschwindigkeiten verschoben, wobei eine maximale Verschiebung existiert, in die $f_c(v)$ ab einer Knudsenzahl $K < 0.1$ übergeht. Diese Modifizierung der Geschwindigkeitsverteilung zur Unterdrückung langsamer Atome ist aber nur für Temperaturen $T > 10$ K ausreichend. Um die Spektren auch bei sehr niedrigen Temperaturen mit $T < 10$ K richtig beschreiben zu können, ist es notwendig, die Unterdrückung langsamer Atome in Gleichung 5.7 mit zwei weiteren Parametern zu beschreiben. Wie in Kapitel 4.1 ausgeführt, friert ab dieser Temperatur der molekulare Wasserstoff an den Düsenwänden an, so daß sich die Stöße innerhalb der Düse verringern. Dadurch nimmt der Einfluß des Zacharias-Effekts auf langsame Atome ab. Der Druck innerhalb der Vakuumkammer nimmt dabei um fast eine Größenordnung ab, so daß mehr langsame Atome den 2S-Detektor erreichen können. Es zeigt sich, daß der Anteil langsamer Atome richtig beschrieben wird, wenn die v^3 -Abhängigkeit in Gleichung 5.7 für Geschwindigkeiten kleiner v_s durch eine $v^{v_{exp}}$ -Abhängigkeit ersetzt wird. Die sich aus der Anpassung ergebenden Werte für v_{exp} liegen typischerweise zwischen vier und fünf, so daß die Zahl langsamer Atome stärker unterdrückt wird. Dies läßt sich vermutlich

auf Stöße der langsamen Atome mit dem Hintergrundgas zurückführen [Ram89]. Mit diesen vier Parametern, der Temperatur T , der Knudsenzahl K , der Geschwindigkeit v_s und dem Exponenten v_{exp} wird die Geschwindigkeitsverteilung so gut beschrieben, daß das Anpassen der theoretischen Daten an die experimentellen Spektren für alle Düsentemperaturen in gleicher Weise mit hervorragender Genauigkeit möglich ist.

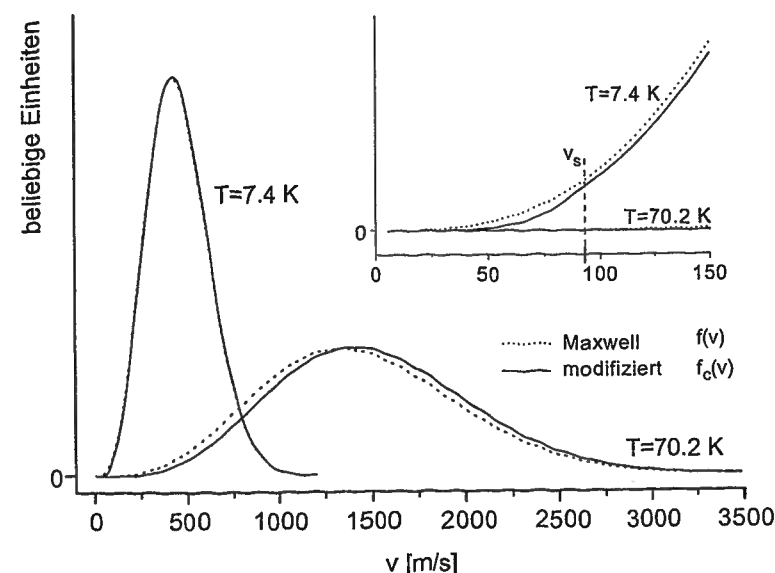


Abbildung 5.2: Modifizierte Geschwindigkeitsverteilung bei zwei verschiedenen Düsentemperaturen als Teilergebnis der Anpassung des theoretischen Linienformmodells an die experimentellen Spektren. Zum Vergleich sind die Maxwell-Verteilungen bei entsprechenden Temperaturen aufgetragen.

Abbildung 5.2 zeigt zwei Beispiele für die Geschwindigkeitsverteilung $f_c(v)$ bei verschiedenen Temperaturen T , wie sie sich aus der Anpassung der theoretischen Daten an die experimentellen Spektren ergeben. Zum Vergleich sind zusammen mit $f_c(v)$ auch zwei reine Maxwell-Verteilungen bei den entsprechenden Temperaturen gegen die Geschwindigkeit aufgetragen. Die Verteilung bei $T = 70.2$ K ist aufgrund des Zacharias-Effekts deutlich zu höheren Geschwindigkeiten verschoben, was sich in der aus der Anpassung erhaltenen Knudsenzahl $K = 0.05$ widerspiegelt. Außerdem ergibt sich die Temperatur des Atomstrahls zu $T = 71.2$ K in guter Übereinstimmung mit der experimentell bestimmten Temperatur der Düse von $T = 70.2$ K. Dies zeigt, daß die Atome mit der Düse thermalisieren, was auch bei niedrigen Temperaturen bestätigt wird. Wie oben ausgeführt, zeigt sich deutlich, daß die modifizierte Geschwindigkeitsverteilung $f_c(v)$ in Abbildung 5.2 bei einer Temperatur $T = 7.4$ K kaum noch verschoben ist. Aus der Anpassung ergibt sich die Temperatur T des Atomstrahls zu $T = 7.2$ K, die Knudsenzahl $K = 2.4$, die Geschwindigkeit $v_s \cong 90$ m/s und der Exponent $v_{exp} = 4.7$, gegenüber 3 im Fall einer rein Maxwell'schen-Verteilung. In dem vergrößerten Teil in Abbildung 5.2 ist die stärkere Unterdrückung langsamer Atome mit Geschwindigkeiten $v < v_s$ bei kleinen Temperaturen gut zu erkennen. Für die Verteilung bei $T = 70.2$ K ergibt die

Anpassung keine deutliche zusätzliche Unterdrückung sehr langsamer Atome.

Mit Hilfe der oben modellierten Geschwindigkeitsverteilung werden die theoretischen Daten mit dem Levenberg-Marquart-Algorithmus [Num89] simultan an die experimentellen Spektren der verschiedenen Verzögerungszeiten angepaßt. Um sicher zu stellen, daß alle Verzögerungszeiten mit gleicher Gewichtung eingehen, werden alle Spektren auf eine gemeinsame Amplitude A gestreckt. Diese entspricht der Amplitude des Spektrums mit der kleinsten zeitlichen Verzögerung. Durch Verwendung von sieben Parametern können die theoretischen Daten gut an die experimentellen Spektren angepaßt werden. Dabei handelt es sich um die allen Verzögerten gemeinsame Amplitude A , die Temperatur T des Atomstrahls und eine gemeinsame Verschiebung Δ_{det} , um die Frequenzen theoretischer und experimenteller Daten einander anzugleichen. Diese Verschiebung bezeichnet dabei den wichtigsten Parameter. Der aus der Anpassung für Δ_{det} bestimmte Wert gibt die bezüglich dem Doppler-Effekt zweiter Ordnung unverschobene Übergangsfrequenz an. Aus der Amplitude A kann auf die Zahl atomaren Wasserstoffs in dem Atomstrahl geschlossen werden. Die relativen Amplituden und Verschiebungen der verzögerten Spektren ergeben sich aus dem Linienformmodell. Zusätzlich gehen noch die restlichen die Geschwindigkeitsverteilung betreffenden Parameter, also die Knudsenzahl K , die Geschwindigkeit v_s und der Exponent v_{exp} ein. Ein weiterer Parameter Γ_{Lor} gibt die Breite eines Lorentzprofils an, mit dem die theoretischen Daten gefaltet werden. Damit werden zusätzliche den $1S$ - $2S$ Übergang verbreiternde Effekte, wie zum Beispiel die Laserlinienbreite, berücksichtigt.

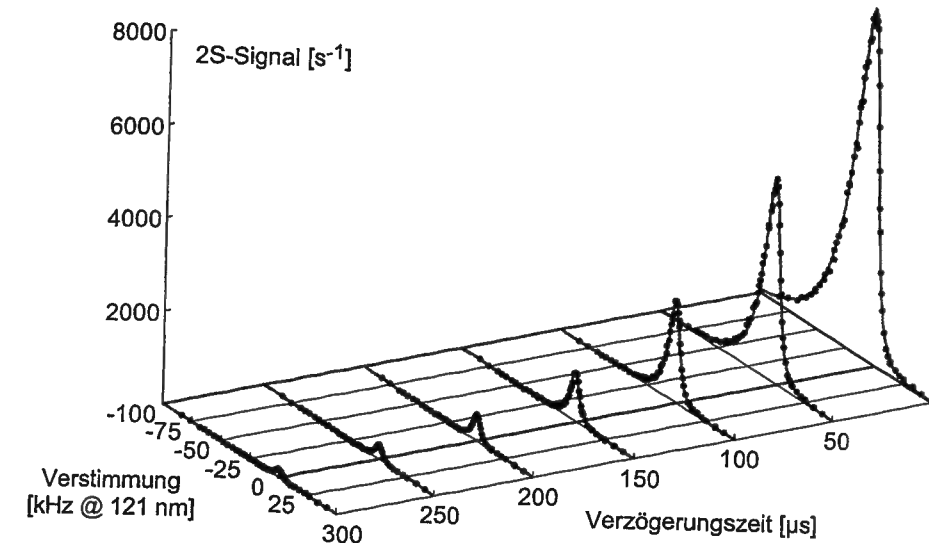


Abbildung 5.3: Zeitaufgelöstes $1S$ - $2S$ Spektrum bei einer Düsentemperatur von $T = 70.2$ K. Aufgetragen ist die $2S$ -Zählrate gegen die Laser-Verstimmung für unterschiedliche Verzögerungszeiten.

Abbildung 5.3 zeigt ein zeitaufgelöstes Spektrum bei einer Düsentemperatur $T = 70.2$ K, aufgetragen gegen die Laser-Verstimmung für unterschiedliche Verzöge-

rungszeiten. Die durchgezogenen Linien sind das Ergebnis der simultanen Anpassung des vorgestellten Linienformmodells mit den sieben freien Parametern an alle zeitlich verzögerten Spektren. Die experimentellen Daten sind durch die Punkte dargestellt. Die Abbildung verdeutlicht, wie gut das Linienformmodell die experimentellen Spektren widerspiegelt und zur Anpassung an die experimentellen Daten geeignet ist. Die in Abbildung 5.2 gezeigte Geschwindigkeitsverteilung bei einer Temperatur $T = 70.2$ K ergibt sich aus der Anpassung an das in Abbildung 5.3 gezeigte zeitaufgelöste Spektrum. In Kapitel 6.2 wird im Rahmen der Auswertung der Absolutfrequenzmessung des $1S$ - $2S$ Übergangs ein zeitaufgelöstes Spektrum bei einer Düsentemperatur $T = 6.8$ K gezeigt.

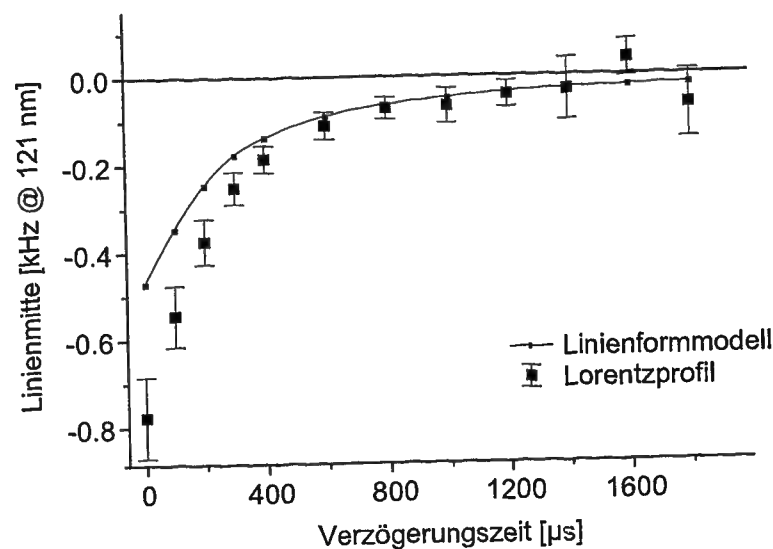


Abbildung 5.4: Linienmitten eines zeitaufgelösten Spektrums bei einer Düsentemperatur $T = 7.4$ K. Die verbundenen Punkte ergeben sich aus dem Linienformmodell, die gezeigten Punkte mit Fehlerbalken durch Anpassen eines Lorentzprofils an die einzelnen Teilspektren.

Für eine präzise Bestimmung der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs ist es wichtig, die unverschobene Linienmitte mit hoher Genauigkeit angeben zu können. Das vorgestellte Linienformmodell eignet sich hervorragend die experimentellen Spektren bezüglich der relativistischen Doppler-Verschiebung zu korrigieren. Die dafür entscheidende Größe ist die aus der Anpassung des Linienformmodells an die experimentellen Daten gewonnene gemeinsame Verschiebung Δ_{det} . Abbildung 5.4 zeigt die Linienmitten der unterschiedlichen zeitlich verzögerten Spektren bei einer Düsentemperatur $T = 7.4$ K. Die Punkte mit Fehlerbalken sind das Ergebnis der Anpassung eines einfachen Lorentzprofils an jedes einzelne der zeitlich verzögerten experimentellen Spektren. Die mit einer Linie verbundenen Punkte ergeben sich aus dem Linienformmodell für die entsprechenden Verzögerten. Deutlich zu erkennen ist die Abnahme der Doppler-Verschiebung zweiter Ordnung zu größeren zeitlichen Verzögerungen hin. Auf diese Weise können langsamere Atome selektiert werden, so daß sich die Linienmitten

asymptotisch dem unverschobenen Wert Δ_{det} annähern. Für kleine Verzögerungszeiten τ weichen die mit dem Lorentzprofil erhaltenen Werte von denen des Linienformmodells ab. Der Grund dafür ist die stark asymmetrische Linienform der Spektren bei kleinen Verzögerungszeiten. Für $\tau > 800$ μ s führen sowohl das Lorentzprofil als auch das Linienformmodell zu einem ähnlichen Ergebnis. Das Linienformmodell liefert dieses aber mit einer wesentlich größeren Genauigkeit. Der entscheidende Vorteil gegenüber der Anpassung mit einem Lorentzprofil besteht darin, daß das Linienformmodell die Information aller zeitlich verzögerten Spektren berücksichtigt. Die unverschobene Linienmitte ist durch die gemeinsame Verschiebung Δ_{det} gegeben. Die statistische Genauigkeit von Δ_{det} ergibt sich aus der Anpassung des Linienformmodells typischerweise zu 20 bis 40 Hz bei 121 nm. Der Doppler-Effekt zweiter Ordnung läßt sich somit auf etwa 1/100 der Linienbreite korrigieren. Die entscheidende Größe Δ_{det} ist dabei sehr unempfindlich gegenüber der Wahl der restlichen Parameter des Linienformmodells und erlaubt die Bestimmung der $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenz mit hoher Genauigkeit.

5.2 Systematische Korrekturen der Übergangsfrequenz

Die folgende Zusammenstellung soll einen kurzen Überblick über die wichtigsten systematischen Effekte geben, die die $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenz verschieben. Dabei werden vor allem die systematischen Effekte vorgestellt, die eine wichtige Rolle bei der Bestimmung der absoluten $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenz spielen und damit von großer Bedeutung für die in Kapitel 6 vorgestellte Absolutfrequenzmessung sind. Alle hier vorkommenden Frequenzen werden bei 121 nm, der atomaren Resonanzfrequenz, angegeben. Eine detaillierte Darstellung, unter anderem der die $1S$ - $2S$ Resonanz verbreiternden Effekte, findet sich in [Hub97].

Relativistischer Doppler-Effekt

Der Doppler-Effekt wurde bereits in Kapitel 4.1 ausführlich vorgestellt. Wie dort erläutert, verschwindet der Doppler-Effekt erster Ordnung für die Anregung durch zwei Photonen entgegengesetzter Richtung und es verbleibt nur der Doppler-Effekt zweiter Ordnung. Dieser ist im Laborsystem durch

$$\Delta f_{Dopp} = -\frac{1}{2} \cdot f_0 \cdot \left(\frac{v}{c}\right)^2 \quad (5.9)$$

gegeben und hängt damit quadratisch von der Geschwindigkeit v ab. Die unverschobene $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenz wird dabei mit f_0 bezeichnet. Als Folge des Doppler-Effekts zweiter Ordnung ergibt sich bei der Spektroskopie an einem thermischen Wasserstoff-Atomstrahl eine stark asymmetrische Verbreiterung und Rotverschiebung der $1S$ - $2S$ Resonanz. Durch die in Kapitel 4.1 angeführten experimentellen Techniken kann der relativistische Doppler-Effekt stark unterdrückt und, wie in Kapitel 5.1 ausgeführt, auf wenige zehn Hertz korrigiert werden.

Dynamischer Stark-Effekt

Der zweite wichtige systematische Effekt ist der dynamische Stark-Effekt. Dieser bewirkt eine Blauverschiebung des $1S$ - $2S$ Übergangs als Folge der Wechselwirkung des anregenden Lichtfelds mit dem im Atom induzierten elektrischen Dipol. Nach [Bea86] läßt sich die Verschiebung zu

$$\Delta f_{AC} = 2 \cdot I \cdot \beta_{AC} \quad (5.10)$$

angeben, wobei I die Intensität des UV-Lichts pro Richtung im Überhöhungsresonator angibt. Aus einer Störungsrechnung zweiter Ordnung für einen Zweiphotonen-Übergang [Gar90] ergibt sich für den $1S$ - $2S$ Übergang der Koeffizient β_{AC} zu $\beta_{AC} = 1.667 \cdot 10^{-4} \text{ Hz(W/m}^2\text{)}^{-1}$ [Bea86]. Aus der maximalen Intensität $I_0 = 2P/\pi\omega_0^2$ pro Richtung auf der Strahlachse, wobei P die gesamte Leistung pro Richtung bezeichnet, ergibt sich für die verwendete Anregungsgeometrie eine Verschiebung von 4 Hz/mW als obere Grenze. Da Zweiphotonen-Übergänge vergleichsweise schwach sind, muß mit relativ hohen Lichtleistungen gearbeitet werden. Somit spielt die dynamische Stark-Verschiebung eine große Rolle und es ist wichtig, einen genaueren Wert als obige grobe Abschätzung für die Verschiebung anzugeben. Dazu ist es nötig, über alle Trajektorien der Atome zu mitteln, um zu berücksichtigen, daß die Atome das Lichtfeld abhängig von ihrer Flugbahn kreuzen. Eine solche Berechnung läßt sich mit dem in Kapitel 5.1 vorgestellten Linienformmodell leicht durchführen. Zuerst wird dazu ein theoretischer Datensatz bei einer durch Gleichung 5.4 gegebenen Verstimmung $\Delta\omega$ bestimmt. Für die Berechnung eines zweiten Datensatzes wird die Verstimmung

$$\Delta\omega = 2\omega_L - \omega_{ab} + \left(\frac{v}{c}\right)^2 \omega_L - 2\pi\beta_{AC} I_L \quad (5.11)$$

verwendet, um die Verschiebung aufgrund des dynamischen Stark-Effekts zu berücksichtigen. Die Intensität I_L bezeichnet dabei die gesamte Intensität im Überhöhungsresonator. Die beiden so gewonnenen Datensätze werden an ein typisches zeitaufgelöstes Spektrum angepaßt. Aus dem Unterschied der jeweils ermittelten Linienmitte ergibt sich für die dynamische Stark-Verschiebung ein Wert von 2.45(5) Hz/mW [Hub97]. Daraus folgt für eine Leistung von $I = 400 \text{ mW}$ pro Richtung im Resonator eine Verschiebung von etwa 1 kHz. Das Signal- zu Rausch-Verhältnis der experimentellen Spektren erweist sich bis herunter zu einer Leistung $I = 80 \text{ mW}$ für die Anpassung des Linienformmodells an die experimentellen Daten als ausreichend. Bei dieser Lichtleistung ergibt sich eine Verschiebung von 200 Hz gegenüber der ungestörten $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenz. Um den dynamischen Stark-Effekt auf wenige Hertz zu korrigieren, ist es daher nötig, die $1S$ - $2S$ Frequenz bei verschiedenen Lichtleistungen aufzunehmen. Aus den so gewonnenen Linienmitten kann durch Extrapolation zu verschwindender Lichtleistung die, bezüglich des dynamischen Stark-Effekts, korrigierte Übergangsfrequenz mit einer Genauigkeit von wenigen Hertz angegeben werden. Diese Methode konnte in den hier in Kapitel 6 vorgestellten Messungen erstmals erfolgreich angewendet werden.

Einfluß der Schwarzkörper-Strahlung

Alle Körper senden aufgrund ihrer Temperatur T eine Lichtstrahlung aus. Die spektrale Energiedichte $u(\omega, T)$ dieser sogenannten Schwarzkörper-Strahlung ist nach der Planckschen Strahlungsformel durch $u(\omega, T) \propto \omega^3 / (e^{\hbar\omega/kT} - 1)$ gegeben. Die Schwarzkörper-Strahlung bewirkt eine Verschiebung $\Delta f_{\text{Schwarz}}$ der $1S$ - $2S$ Resonanz aufgrund des dynamischen Stark-Effekts. Die Verschiebung $\Delta f_{\text{Schwarz}}$ ist nach [Far81] zu

$$\Delta f_{\text{Schwarz}} = \delta f_{1S} - \delta f_{2S} \quad \text{mit} \quad (5.12)$$

$$\delta f_k \propto \sum_{j,n} |\langle k | r_j | n \rangle|^2 \int_0^\infty u(\omega, T) \left(\frac{1}{\omega_{kn} - \omega} + \frac{1}{\omega_{kn} + \omega} \right) d\omega$$

gegeben. Dabei bezeichnet δf_k die Verschiebung der einzelnen Niveaus, r_j die drei Raumrichtungen und ω_{kn} die Übergangsfrequenz $(E_k - E_n)/\hbar$. Die Summe läuft über die drei Raumrichtungen und über alle möglichen Zustände $|n\rangle$. In [Far81] wird die Verschiebung $\Delta f_{\text{Schwarz}}$ bei einer Temperatur $T = 300 \text{ K}$ zu etwa einem Hertz angegeben. Dieser Wert kann als obere Schranke für die Verschiebung aufgrund der Schwarzkörper-Strahlung angesehen werden, da die Temperatur in der Vakuumkammer aufgrund der Kryopumpe kleiner als 300 K ist.

Statischer Stark-Effekt

Die Wirkung statischer elektrischer Felder wurde bereits in Kapitel 3.1 beschrieben. Ein elektrisches Feld führt zu einer Mischung des langlebigen $2S$ -Zustands mit dem benachbarten kurzlebigen $2P$ -Zustand. In dem hier vorgestellten Experiment wird ein elektrisches Feld als Nachweis für die angeregten Atome verwendet. Der statische Stark-Effekt bewirkt zusätzlich eine Verschiebung der ungestörten $1S$ - $2S$ Resonanz um [Bet77]

$$\Delta f_{DC} = 3600 \cdot E^2 \text{ Hz(V/cm)}^{-2} \quad (5.13)$$

Diese unerwünschte Verschiebung während der Anregung wird im Experiment mit einem Faraday-Käfig bestehend aus einem Drahtgitter, der elektrische Felder abschirmt, minimiert (Kapitel 3.1). Zusätzlich werden die Flächen mit Graphit beschichtet, um statische Ladungen zu verhindern und die Wechselwirkungsregion auf demselben elektrischen Potential zu halten. In der Gruppe von F. Biraben [Gar90] wurden in einer ähnlichen Apparatur zur Anregung anderer Übergänge in atomarem Wasserstoff die elektrischen Felder zu weniger als 30 mV/cm vermessen. Nimmt man diesen Wert als obere Schranke für elektrische Streufelder in dem vorgestellten Aufbau an, so ergibt sich eine Verschiebung von wenigen Hertz durch den statischen Stark-Effekt.

Druckverschiebung

Als Folge von Stößen der Atome mit dem Hintergrundgas ergibt sich die sogenannte Druckverschiebung, die in früheren Arbeiten bestimmt wurde. In einer Gaszelle konnte

die Verschiebung für atomaren Wasserstoff zu

$$\Delta f_P = -8.4 \text{ MHz/mbar} \quad (5.14)$$

bestimmt werden [McI89]. Ein etwas kleinerer Wert ist in [Ber95] angegeben. Bei einer Düsentemperatur von etwa $T \cong 10 \text{ K}$ friert molekularer Wasserstoff an der Düse an und es stellt sich ein Druck von etwa $p = 10^{-6} \text{ mbar}$ in der Apparatur ein. Folglich ergibt sich eine Rotverschiebung von etwa 10 Hz. Die Druckverschiebung wurde auch an einem Bose-Einstein-Kondensat als Funktion der Teilchendichte n bestimmt [Kil98]. Die aus der Gasgleichung $p = nkT$ mit dem dort angegebenen Wert von $-3.8(8) \cdot 10^{-10} n \text{ Hz cm}^3$ bestimmte Druckverschiebung liefert ebenfalls eine Verschiebung von etwa 10 Hz.

Korrekturen aufgrund unebener optischer Wellenfronten

Bei einer Zweiphotonen-Spektroskopie in einer idealen stehenden Welle sind die absorbierten Photonen exakt kollinear. Hier werden die Atome jedoch in einem fokussierten Stehwellenfeld des verwendeten Überhöhungsresonators angeregt. Die Folge ist eine kleine Komponente $\Delta \underline{k}$ des Wellenvektors $\underline{k}$ in transversaler Richtung, so daß die absorbierten Photonen nicht exakt kollinear sind. In erster Näherung ergibt sich ein geschwindigkeitsabhängiger Anteil $\Delta \underline{k} \underline{v}$, der zu der, bereits in Kapitel 4.1 ausführlich behandelten und in dem Linienformmodell berücksichtigten, Durchflugsverbreiterung führt. In zweiter Näherung ergibt sich eine Rückstoßverschiebung $\Delta \underline{k}^2/2M$, die sich für die verwendete Resonatorgeometrie (Strahltaile $w_0 = 230 \text{ } \mu\text{m}$) auf weniger als 10 Hz beläuft [Bor97]. Mögliche Effekte aufgrund höherer Moden, die sich in dem Überhöhungsresonator ausbilden können, führen zu einem kleinen Doppler-Effekt erster Ordnung. Die sich daraus ergebende Verschiebung wurde in [Hub97] zu wenigen Hertz abgeschätzt. Eine denkbare Verschiebung aufgrund der geometrischen Phase einer Stehwelle kann bei einer Zweiphotonen-Anregung nicht auftreten, da die beiden Photonen gleichzeitig, also am gleichen Ort, absorbiert werden.

Verbreiterung durch das statische Magnetfeld

Zur Spektroskopie des $1S-2S$ Übergangs in atomarem Wasserstoff werden nur die von äußeren Magnetfeldern schwach abhängigen Komponenten $1S_{1/2}(F=1, m_F=\pm 1) \rightarrow 2S_{1/2}(F=1, m_F=\pm 1)$ angeregt. Wie in Kapitel 2.5 dargestellt, führt das im Experiment angelegte äußere Magnetfeld unter der Annahme gleichbesetzter Zeeman-Niveaus zu einer Aufspaltung der beobachteten Komponenten der $1S-2S$ Resonanz. Die Aufspaltung beträgt etwa 72 Hz/G [Sch95]. Der Schwerpunkt des beobachteten Übergangs wird durch das äußere Magnetfeld hingegen nicht verschoben. Diese zusätzliche Verbreiterung der $1S-2S$ Resonanz wird in dem Linienformmodell näherungsweise durch die Faltung mit einem Lorentzprofil berücksichtigt.

Kapitel 6

Absolutfrequenzmessung des $1S-2S$ Übergangs

Die Bestimmung der absoluten Frequenz des $1S-2S$ Übergangs in atomarem Wasserstoff ist aus mehreren Gründen von großem Interesse. Wie schon in Kapitel 4.3 ausgeführt, ist eine Messung der Absolutfrequenz dieses Übergangs von großer Bedeutung für eine Bestimmung der Rydberg-Konstanten und der $1S$ -Lamb-Verschiebung. Zum jetzigen Zeitpunkt ist die Bestimmung dieser Größen jedoch durch die Messung anderer Übergangsfrequenzen in atomarem Wasserstoff begrenzt. Es ist daher notwendig die hier gewonnenen Erfahrungen und Techniken auf andere Übergänge auszuweiten. Dies würde dann in Zukunft genauere Werte der Rydberg-Konstante sowie der $1S$ -Lamb-Verschiebung erlauben. Ein weiteres großes Bestreben besteht darin die Genauigkeit mit der die Absolutfrequenz des $1S-2S$ Übergangs bestimmt werden kann, zu steigern, um die hohe Güte des Übergangs für einen möglichen zukünftigen optischen primären Uhrenübergang auszunutzen. Eine über mehrere Jahre hinweg wiederholte Messung der Absolutfrequenz des $1S-2S$ Übergangs könnte zudem Aufschluß über die Frage nach der Konstanz von Naturkonstanten geben.

Die in dieser Arbeit durchgeführten Messungen der Absolutfrequenz des $1S-2S$ Übergangs wurden zuerst mit Hilfe einer, in Kapitel 3.3 vorgestellten, kommerziellen Cäsium-Atomuhr durchgeführt. Dieser erste direkte phasenkohärente Vergleich einer ultravioletten Frequenz mit dem primären Frequenznormal wird in der Arbeit von J. Reichert [Rei00, Rei00a] ausführlich vorgestellt und diskutiert. Der bei dieser Messung erhaltene Wert für die Absolutfrequenz des $1S-2S$ Übergangs von

$$f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187.29(37) \text{ kHz} \quad (6.1)$$

verbessert mit einer Genauigkeit von $1.5 \cdot 10^{-13}$ den zuletzt bestimmten Wert [Ude97a] um mehr als einen Faktor zwei. Mit dieser Genauigkeit stellt der $1S-2S$ Übergang in atomarem Wasserstoff bereits [Rie99] den am genauesten vermessenen optischen Übergang im sichtbaren und ultravioletten Bereich dar.

Mit der hier vorgestellten Messung ist es erstmals möglich einen direkten phasen-

kohärenten Vergleich der 1S-2S Übergangsfrequenz in atomarem Wasserstoff mit einer erheblich genaueren Fontänen-Cäsium-Atomuhr (Kapitel 3.3) durchzuführen. Die hohe Präzision dieser Uhr erlaubte die an diesem Übergang erstmalige Auflösung systematischer Einflüsse, wie des dynamischen Stark-Effekts, sowie dessen genaue Untersuchung. Diese Untersuchungen wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit detailliert durchgeführt. Dabei ist es nicht mehr wie in früheren Arbeiten ausreichend die experimentellen Spektren mit einem Lorentzprofil anzupassen. Vielmehr muß an dieser Stelle erstmals das in Kapitel 5.1 vorgestellte Linienformmodell angewendet werden. Das Ergebnis dieser Anpassung liefert die bezüglich des Doppler-Effekts zweiter Ordnung unverschobene Linienmitte mit einer statistischen Unsicherheit zwischen 20 und 40 Hz. Um den Einfluß des dynamischen Stark-Effekts zu korrigieren, wird der 1S-2S Übergang bei verschiedenen Lichtleistungen induziert. Durch lineare Extrapolation kann damit der Wert für die Absolutfrequenz bei verschwindender Leistung des Anregungslichtfelds bestimmt werden. Insgesamt ergibt sich die über zehn Meßtage gemittelte Absolutfrequenz des 1S-2S Zentroids zu

$$f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187\,103(46) \text{ Hz} . \quad (6.2)$$

Mit der hier erreichten Genauigkeit von $1.8 \cdot 10^{-14}$ kann die in Gleichung 6.1 angegebene um eine Größenordnung verbessert werden.

Im folgenden Kapitel wird die Auswertung und das Ergebnis dieser Absolutfrequenzmessung vorgestellt und diskutiert. Gegenstand des ersten Teils ist die Untersuchung und Bestimmung der absoluten Frequenzachse. Im zweiten Teil wird schließlich erläutert, wie sich mit Hilfe des Linienformmodells und der Korrektur des dynamischen Stark-Effekts die oben vorgestellte Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs ergibt.

6.1 Absolute Frequenzachse

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs in atomarem Wasserstoff durch einen direkten phasenkohärenten Vergleich mit einer Fontänen-Cäsium-Atomuhr bestimmt. Der experimentelle Aufbau wurde bereits in Kapitel 3 ausführlich vorgestellt. Wie dort erläutert, wird ein kalter Wasserstoff-Atomstrahl in einem kollinear ausgerichteten Stehwellenfeld bei 243 nm mit Hilfe Doppler-freier Zweiphotonen-Spektroskopie in den metastabilen 2S-Zustand angeregt. Die 2S-Atome werden am Ende der Wechselwirkungszone durch Anlegen eines kleinen elektrischen Feldes mit dem kurzlebigen 2P-Zustand gemischt. Dieser zerfällt spontan unter Aussendung eines L_α -Photons bei 121 nm in den Grundzustand und wird mit Hilfe eines Photomultipliers detektiert. Das für die Spektroskopie benötigte ultraviolette Licht bei 243 nm wird durch Frequenzverdopplung eines Farbstofflasers bei 486 nm erzeugt. Zur Minimierung von Drift und Linienbreite wird dieser auf einen hochstabilen Fabry-Perot-Resonator hoher Güte stabilisiert. Um den Farbstofflaser verstimmen zu können, wird ein Teilstrahl zweimal in die erste Ordnung eines akusto-optischen Modulators (AOM) abgelenkt, bevor er in den Resonator eingekoppelt wird. Zur Bestimmung der

6.1. ABSOLUTE FREQUENZACHSE

absoluten Frequenz des 1S-2S Übergangs in atomarem Wasserstoff wird ein Teilstrahl des Farbstofflasers direkt mit Hilfe einer phasenkohärenten Frequenzkette (Kapitel 3.2) mit der Fontänen-Cäsium-Atomuhr verglichen. Die für diesen Vergleich wichtigste Komponente stellt der von einem modengekoppelten Femtosekunden-Laser emittierte Frequenzkamm dar, mit dem Frequenzlücken bis zu einer Breite von etwa 45 THz überbrückt werden können. Der Abstand der Kammoden ist durch die Repetitionsrate des Femtosekunden-Lasers gegeben und wird mit Hilfe der Cäsium-Atomuhr auf einen genau bekannten Wert geregelt. Wie in Kapitel 3.2 ausführlich erläutert, wird ein Ende des Kamms phasenkohärent auf den zur Spektroskopie verwendeten Farbstofflaser stabilisiert. Die Absolutfrequenz ist dann nach Gleichung 3.1 durch zwei Frequenzintervalle, von denen der Farbstofflaser jeweils das untere Ende bildet, gegeben. Diese Frequenzintervalle werden durch die Zahl der zu ihrer Überbrückung nötigen Moden und zwei Radiofrequenzen f_{Z_1} und f_{Z_2} bestimmt. Dabei handelt es sich um die Frequenzen der Schwebungssignale der beiden oberen Enden der Frequenzintervalle mit entsprechenden Moden des Frequenzkamms, die mit Hilfe zweier Radiofrequenzzähler ausgemessen werden. Insgesamt benötigt die Frequenzkette zur Synthetisierung der beiden Frequenzintervalle acht phasenkohärente Schritte. Dafür werden entsprechend acht synchronisierte Radiofrequenzzähler verwendet, die zusätzlich als Kontrolle über sporadisch auftretende Verluste von optischen Zyklen der Phasenstabilisierung dienen.

An insgesamt zehn Meßtagen wurden jeweils zwischen 40 und 90 Wasserstoff 1S-2S Spektren aufgenommen. Die Frequenz des Lasers f_{Laser} wird durch Ansteuerung des AOMs in diskreten Schritten mit einem zeitlichen Abstand von etwa einer Sekunde verstellt. Innerhalb dieser Zeit wird mit Hilfe eines Photonen-Vielkanalzählers die 2S-Zählrate zeitaufgelöst (Kapitel 4.1) aufgenommen und dazu synchronisiert die Frequenzen f_{Z_1} und f_{Z_2} der beiden Radiofrequenzzähler ausgelesen. Zusammen mit den acht Kontrollzählern werden die Ergebnisse in einer Tabelle abgespeichert und stehen in dieser Form für eine spätere Auswertung zur Verfügung.

Bei der Auswertung wurde nicht die nach Gleichung 3.1 mit der Frequenzkette bestimmte absolute Frequenz des 1S-2S Übergangs direkt verwendet, sondern der Referenzresonator als optisches „Schwungrad“ ausgenutzt. Der Vorteil liegt darin begründet, daß die Kurzzeitstabilität des Resonators die der Frequenzkette übertrifft. Die absolute Frequenz des Resonators ergibt sich aus Gleichung 3.1 und der Beziehung $2 \cdot f_{AOM} + f_{Laser} = f_{Resonator}$ und $f_{1S-2S} = 4 \cdot f_{Laser}$ (Kapitel 3.1) zu

$$f_{Resonator} = 2 \cdot \left[\underbrace{f_{AOM} - f_{Z_1} - 8f_{Z_2}}_{f_{AZ}} \right] + \frac{1}{4}f_K , \quad (6.3)$$

wobei f_K nach Gleichung 3.1 durch $f_K = 2466.06384$ THz gegeben ist. Abbildung 6.1 zeigt die Frequenz f_{AZ} , die bis auf die feste Frequenz f_K die Frequenz des Resonators als Funktion der Zeit während eines Meßtags darstellt.

In der Abbildung erkennt man die zeitliche Drift der Resonatorfrequenz, die bis zu 100 Hz/s bei 121 nm beträgt. Diese Drift korreliert mit den Raumtemperaturschwankungen des Labors, das sich im Laufe des Tages aufheizt und trotz der getroffenen

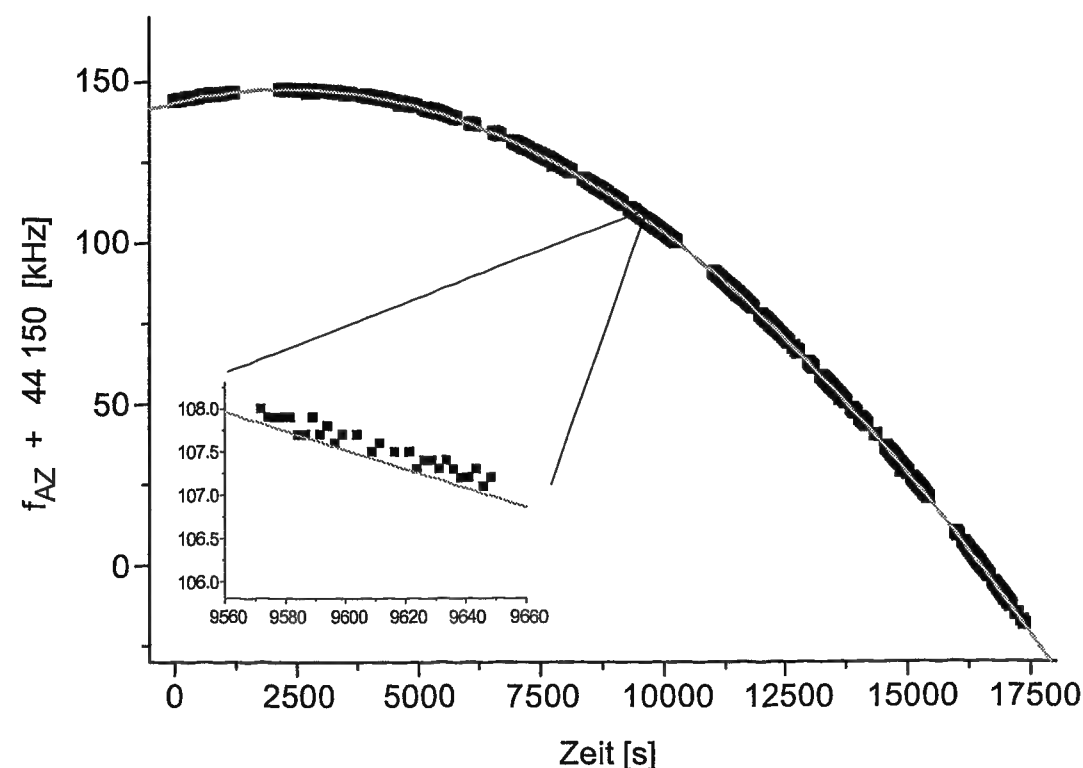


Abbildung 6.1: Resonatordrift während eines einzelnen Meßtags. Der vergrößerte Ausschnitt zeigt die Drift des Resonators für ein einzelnes Wasserstoff 1S-2S Spektrum.

passiven und aktiven Dämpfungsmaßnahmen des Referenzresonators zu Änderungen der Resonator-Eigenfrequenz führt. Die Drift ist höchstwahrscheinlich hauptsächlich auf die aus Quarzglas gefertigten hochreflektierenden Spiegel des Resonators zurückzuführen. Zwar ist der Abstandshalter, auf dem die Spiegel optisch kontaktiert sind, aus Zerodur (Schott), aber der um Größenordnungen schlechtere Ausdehnungskoeffizient von Quarzglas bestimmt im wesentlichen die thermischen Eigenschaften. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein weiterer Resonator in Betrieb genommen, der sich in einem klimatisierten Nebenraum befindet, so daß die Raumtemperaturschwankungen deutlich geringer sind [Lei95]. Der Abstandshalter besteht dabei aus ULE (Ultra Low Expansion), einem Spezialquarzglas (Corning), das noch bessere thermische Eigenschaften als Zerodur aufweist. Aber auch hier kommen wieder Quarzglasspiegel zum Einsatz, die damit das thermische Verhalten bestimmen. Die Drift ist mit diesem Resonator um einen Faktor fünf gegenüber dem verwendeten Resonator im Labor reduziert. Bei allen Messungen kam aber trotzdem der im Labor befindliche Resonator wegen seiner größeren Zuverlässigkeit bei der Stabilisierung des Farbstofflasers zum Einsatz. Mittlerweile wird ein Resonator aufgebaut, bei dem sowohl der Abstandshalter als auch die Spiegel aus ULE gefertigt sind. Durch eine zweistufige Dämpfung, gebildet aus langen Federn, an denen der Abstandshalter im Vakuum hängt, und einem separaten Tisch, soll die Linienbreite des Lasers verkleinert werden. Eine mehrstufige Kombination von aktiver

und passiver Temperaturregelung soll die Drift deutlich reduzieren. Bei einem solchen System sollten sich Linienbreiten unter einem Hertz [You99] sowie eine Laserdrift von unter einem Hertz pro Sekunde erreichen lassen [Mar97]. Diesen Verbesserungen könnte bei zukünftigen noch genaueren Messungen der 1S-2S Übergangsfrequenz große Bedeutung zukommen.

Zur Mittelung der Resonatordrift wird ein Polynom dritten Grades an diese angepaßt. Versucht man jedoch mit einem solchen Polynom die Drift während eines ganzen Tages gleichzeitig zu approximieren, wie in Abbildung 6.1 gezeigt (durchgezogene Linie), so weicht die genäherte Resonatorfrequenz, wie im vergrößerten Ausschnitt gezeigt, teilweise von der gemessenen Frequenz ab. Daher wird die Drift abschnittsweise für jedes einzelne Spektrum durch ein Polynom dritten Grades, wie in Abbildung 6.2 gezeigt, angepaßt.

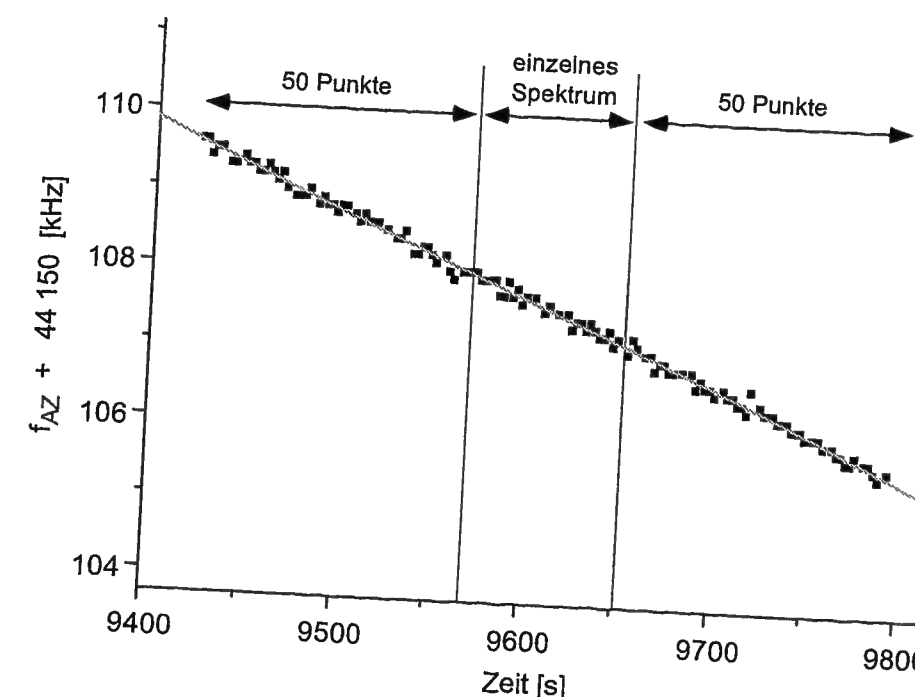


Abbildung 6.2: Resonatordrift für ein einzelnes Wasserstoff 1S-2S Spektrum mit jeweils fünfzig Punkten vor und nach dem Spektrum. Die durchgezogene Linie ergibt sich durch Anpassung eines Polynoms dritter Ordnung an diese Meßdaten.

Dabei erweist es sich als günstig, nicht jeweils nur die Punkte eines einzelnen Spektrums, sondern fünfzig Punkte vor und nach einem Spektrum bei der Anpassung zu berücksichtigen. Der in Abbildung 6.2 gezeigte Abschnitt für ein einzelnes Spektrum entspricht dabei dem in Abbildung 6.1 vergrößerten Teilbereich. Die Zahl der Meßpunkte, bei denen mindestens ein Kontrollzähler von seiner Sollfrequenz abweicht variiert zwischen 20 und 40 %. Diese Verlustzyklen werden bei der Anpassung der Resonatordrift nicht berücksichtigt. Damit ist sichergestellt, daß das Auftreten von Verlustzyklen die Messungen nicht verfälscht. Mit Hilfe des aus der Anpassung der Resonatorfrequenz

f_{AZ} gewonnenen Polynoms dritten Grades $f_{AZ}(t)$ ergibt sich die absolute Frequenz des 1S-2S Übergangs zu

$$f_{1S-2S} = 8 \cdot [f_{AZ}(t) - f_{AOM}] + f_K. \quad (6.4)$$

Im folgenden Teil wird beschrieben, wie mit Hilfe der so erzeugten absoluten Frequenzachse die Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs bestimmt wird.

6.2 Bestimmung der Absolutfrequenz

Frühere Messungen der absoluten Frequenz des 1S-2S Übergangs in atomarem Wasserstoff waren maßgeblich durch zwei Faktoren limitiert: Zum einen durch die bislang verwendete Frequenzkette zur phasenkohärenten Überbrückung optischer Frequenzen [Ude97a], zum anderen durch den verwendeten Frequenzstandard [Ude97a, Rei00a]. Daher erwies es sich bislang als ausreichend, die Absolutfrequenz durch Anpassen eines Lorentzprofils an die experimentellen Spektren zu bestimmen. Zur Korrektur des Doppler-Effekts zweiter Ordnung wurde das Signal möglichst langsamer Atome für die Auswertung verwendet. Wie in Kapitel 4.1 ausgeführt, reduziert sich die asymmetrische Verbreiterung der Linienform für die Spektren mit hoher zeitlicher Verzögerung, so daß ein Lorentzprofil für die Anpassung dieser Spektren geeignet ist. Die Verzögerung wird dabei so groß gewählt, daß der störende systematische Einfluß des Doppler-Effekts zweiter Ordnung auf den 1S-2S Übergang ausreichend verringert wird. Der zweite dominante systematische Effekt, die dynamische Stark-Verschiebung, hängt linear von der Intensität des anregenden Laserlichtfelds ab. Der 1S-2S Übergang wurde bei diesen früheren Messungen mit einer fest eingestellten Laserleistung induziert, so daß mit dem in Kapitel 5.2 angegebenen Wert für die Verschiebung eine Korrektur möglich war.

Mit Hilfe der in Kapitel 3.2 vorgestellten Frequenzkette wurden erstmals durch einen direkten phasenkohärenten Vergleich der 1S-2S Übergangsfrequenz in atomarem Wasserstoff mit der Fontänen-Cäsium-Atomuhr (Kapitel 3.3) systematische Einflüsse, wie der dynamischen Stark-Effekt, aufgelöst und detailliert untersucht. Dabei ist es nicht mehr, wie oben angedeutet, ausreichend die experimentellen Spektren mit einem einfachen Lorentzprofil anzupassen. Vielmehr muß an dieser Stelle zur Bestimmung der Linienmitte eines experimentellen Spektrums erstmals das in Kapitel 5.1 vorgestellte theoretische Linienformmodell angewendet werden. Durch simultane Anpassung des Modells an alle zeitlichen Verzögerten eines solchen Spektrums ergibt sich die um den Doppler-Effekt zweiter Ordnung korrigierte Linienmitte mit einer statistischen Unsicherheit zwischen 20 und 40 Hz. Abbildung 6.3 zeigt ein Beispiel der etwa 600 zur Bestimmung der Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs aufgenommenen, zeitlich aufgelösten, experimentellen Spektren. Aufgetragen ist die 2S-Zählrate bei den verschiedenen Verzögerungszeiten gegen die durch Gleichung 6.4 bestimmte Absolutfrequenz. Die Spektren mit hoher zeitlicher Verzögerung sind in dem oberen Bildausschnitt noch einmal vergrößert dargestellt. Die durchgezogenen Linien sind das Ergebnis der Anpassung des Linienformmodells an die experimentellen Daten. Wie bereits in Kapitel

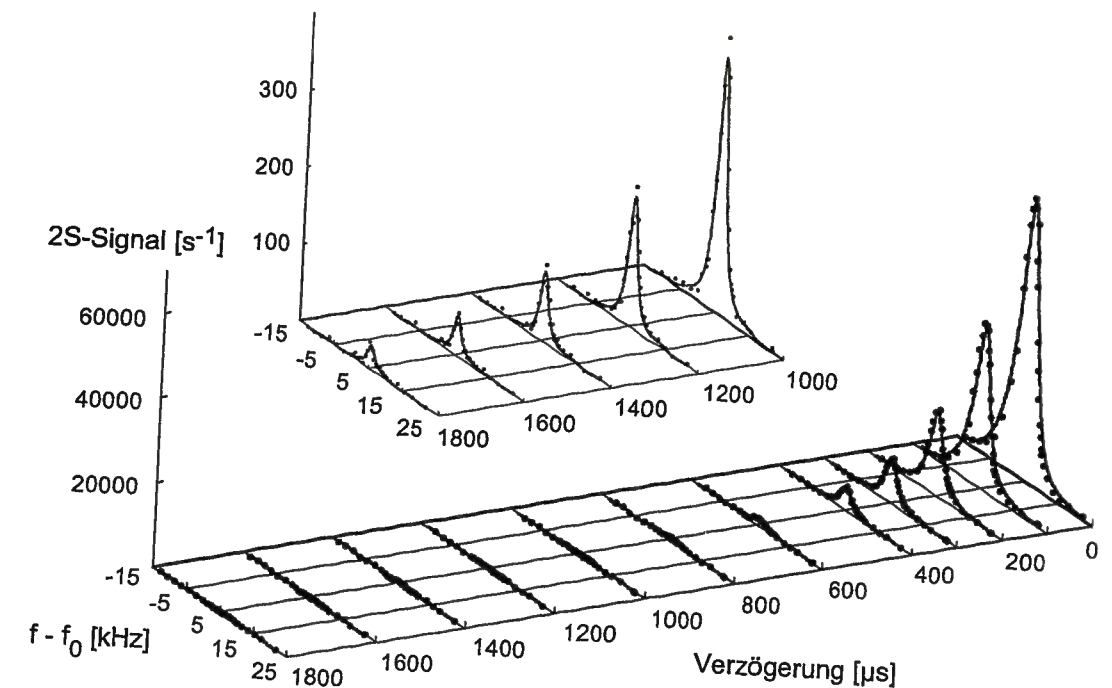


Abbildung 6.3: Zeitaufgelöstes 1S-2S Spektrum bei einer Düsentemperatur $T=6.5$ K. Aufgetragen ist die 2S-Zählrate für verschiedene Verzögerungszeiten gegen die absolute Frequenz mit $f_0 = 2\,466\,061\,102\,470$ kHz. Der obere Teil zeigt die Spektren mit hoher zeitlicher Verzögerung mit vergrößertem Maßstab.

5.1 ausgeführt, liegt der Vorteil dieser Auswertmethode gegenüber der alleinigen Betrachtung von Spektren hoher zeitlicher Verzögerung darin begründet, daß hier die Information aller zeitlichen Verzögerten gleichermaßen berücksichtigt wird. Dadurch ist es auch möglich, Spektren, die bei geringer Lichtleistung zur Anregung des 1S-2S Übergangs aufgenommen wurden, mit hoher Genauigkeit anzupassen. Obwohl die damit verbundene geringe Anregung der Wasserstoffatome in den 2S-Zustand zu einem verschwindenden Anteil hoher zeitlicher Verzögerter des Signals führt, kann damit die Verschiebung aufgrund des Doppler-Effekts zweiter Ordnung trotzdem mit einer Unsicherheit von nur 20 bis 40 Hz korrigiert werden. Dies ist für die Untersuchung des dynamischen Stark-Effekts von entscheidender Bedeutung. Um diesen mit hoher Genauigkeit korrigieren zu können, ist es wichtig die Lichtleistung über einen weiten Bereich zu variieren. Durch eine lineare Extrapolation kann damit der Wert für die Absolutfrequenz bei verschwindender Lichtleistung bestimmt werden. Die Auswertung von einzelnen Spektren mit hoher zeitlicher Verzögerung wäre hingegen bei geringen Lichtleistungen nicht mehr möglich. Daher müßte in diesem Fall eine geringere Verzögerung gewählt werden, für die das Signal ausreichend groß ist. Das bedeutete aber, daß schnellere Atome zu einem solchen Spektrum beitragen würden und damit eine hinreichende Reduzierung des Doppler-Effekts zweiter Ordnung nicht mehr möglich wäre.

Die in dem Resonator umlaufende UV-Lichtleistung bei 243 nm zur Anregung des

1S-2S Übergangs wird während des Experiments für jeden Meßpunkt eines Spektrums mitgeschrieben. Dazu befindet sich hinter dem Auskoppelspiegel des Überhöhungsresonators ein Photomultiplier (Kapitel 3.1), der die transmittierte Lichtleistung aufnimmt. Das so gewonnene Signal wird nach einem Verstärker auf einen Integrator gegeben, der von dem verwendeten Meßalgorithmus für jeden Meßpunkt eines Spektrums bei einer festen Laserverstimmung ausgelesen wird. Dieser Wert ist damit ein Maß für die im Resonator umlaufende mittlere Lichtleistung für den jeweiligen Meßpunkt. Für die Auswertung werden die gesamten, zu einem Spektrum gehörenden, mittleren Leistungen gemittelt. Dieser Mittelwert gibt somit die Leistung an, bei der ein Spektrum, wie beispielsweise das in Abbildung 6.3 gezeigte, aufgenommen wurde. Das so bestimmte Leistungsmaß ist dabei erst einmal in beliebigen Einheiten gegeben. Durch Entfernen des Einkoppelspiegels des Überhöhungsresonators und Bestimmung der Lichtleistung vor dem Auskoppelspiegel mit Hilfe eines Leistungsmeßgeräts kann die von dem Photomultiplier detektierte Transmission kalibriert werden. Durch mehrmalige Wiederholung der Kalibrierung kann die absolute Lichtleistung mit einer Unsicherheit von etwa 20 % angegeben werden. Da bei der Bestimmung der Absolutfrequenz diese Kalibrierung jedoch nicht relevant ist, kann das mitgeschriebene, genauer bekannte Leistungsmaß direkt verwendet werden. Es ist dabei nur entscheidend, daß der Nullpunkt der Leistungsskala fest bleibt und täglich reproduzierbar ist, worauf während den Messungen genau geachtet wurde. Die sich daraus ergebende Unsicherheit für die extrapolierte Absolutfrequenz kann zu weniger als ein Hertz angegeben und damit an dieser Stelle vernachlässigt werden.

Für eine systematische Untersuchung des dynamischen Stark-Effekts ist es wichtig die Lichtleistung über einen weiten Bereich zu variieren. Daher wurden an insgesamt zehn Meßtagen jeweils zwischen 40 und 90 Wasserstoff 1S-2S Spektren bei verschiedenen Lichtleistungen aufgenommen. Abbildung 6.4 zeigt das Ergebnis eines solchen Meßtags. Aufgetragen sind die Absolutfrequenzen der an diesem Meßtag aufgenommenen experimentellen Spektren für die verschiedenen Lichtleistungen. Dabei gibt jeder einzelne Punkt das Ergebnis der Anpassung des Linienformmodells an ein experimentelles Spektrum an. Wie oben ausgeführt, ist also jeder einzelne Punkt bereits um den Doppler-Effekt zweiter Ordnung korrigiert und damit bei allen Lichtleistungen gleichermaßen mit einer statistischen Unsicherheit zwischen 20 und 40 Hz bestimmt. Unterhalb einer umlaufenden Lichtleistung von etwa 80 mW im Resonator ist eine Aufnahme von Spektren mit ausreichendem Signal- zu Rausch-Verhältnis nicht mehr möglich. Deutlich zu erkennen ist in Abbildung 6.4 die Verschiebung der 1S-2S Resonanz aufgrund des dynamischen Stark-Effekts (Kapitel 5.2). Die hier auftretenden Lichtleistungen sind vergleichsweise so gering, daß die Verschiebung aufgrund des dynamischen Stark-Effekts in guter Näherung als linear angenommen werden kann. Durch Anpassung einer Geraden ergibt sich der bei verschwindender Lichtleistung extrapolierte Wert für die Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs, dargestellt durch den Fehlerbalken auf der Absolutfrequenzachse. In der verbleibenden statistischen Unsicherheit sind dabei die beiden dominierenden Systematiken, Doppler-Effekt zweiter Ordnung und dynamischer Stark-Effekt, bereits berücksichtigt. Der extrapolierte Wert bei verschwindender Lichtleistung hängt nicht von den verwendeten Einheiten der Leistung ab. Die Anpassung

6.2. BESTIMMUNG DER ABSOLUTFREQUENZ

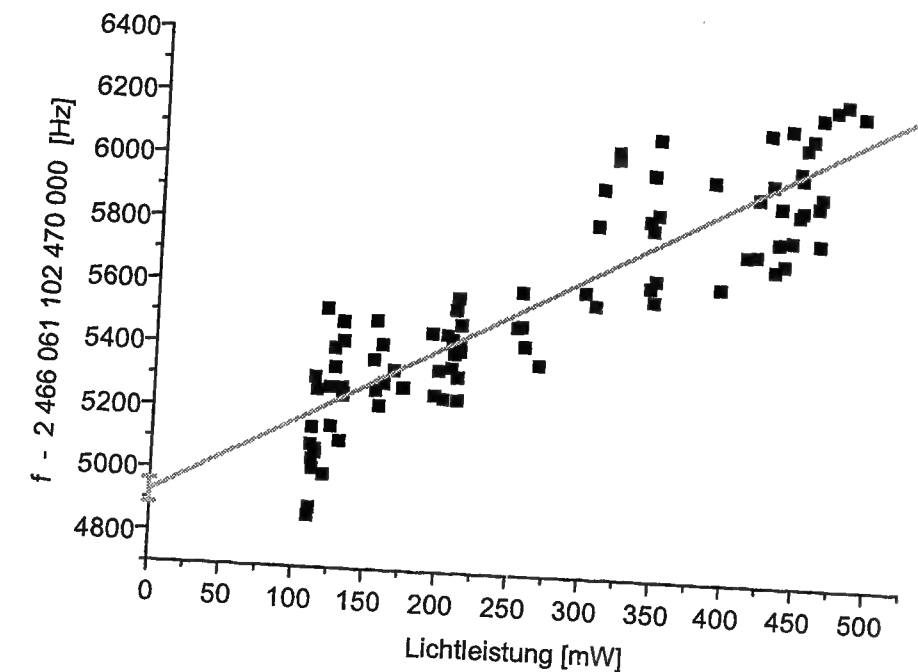


Abbildung 6.4: Dynamische Stark-Verschiebung der 1S-2S Resonanz in atomarem Wasserstoff. Die Punkte ergeben sich durch Anpassen des theoretischen Linienformmodells an die experimentellen Spektren. Durch Anpassen einer Geraden ergibt sich der extrapolierte Wert für die Absolutfrequenz bei verschwindender Lichtleistung des anregenden Lichtfelds.

wird daher für das mitgeschriebene Leistungsmaß durchgeführt. Die in Abbildung 6.4 angegebene Leistungsskala ergibt sich dann aus der bei der Anpassung zusätzlich gewonnenen Steigung der Geraden und dem in Kapitel 5.2 angegebenen theoretischen Wert von 2.45(5) Hz/mW. Wie dort erläutert, kann dieser theoretische Wert mit Hilfe des Linienformmodells bestimmt werden, bei dem die verwendete Anregungsgeometrie bereits berücksichtigt ist. Die Leistungsskala wird hier nicht in der oben erläuterten Kalibrierung angegeben, da diese mit einer deutlich größeren Unsicherheit behaftet ist. An dieser Stelle sei aber betont, daß die Leistungen, die sich aus dem theoretischen Wert und der experimentellen Kalibrierung ergeben, im Rahmen ihrer Fehlergrenzen übereinstimmen. Es ergibt sich 2.64(45) Hz/mW als gemittelter Wert für die aus der Anpassung einer Geraden erhaltenen Steigungen der verschiedenen Meßtage. Diese stimmen im Rahmen ihrer jeweiligen Unsicherheiten von etwa 10 % überein.

Nach dem beschriebenen Verfahren wurde die Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs in atomarem Wasserstoff an jedem der zehn Meßtage ermittelt. Abbildung 6.5 zeigt das Ergebnis dieser Auswertung und den statistischen Mittelwert, wobei der Doppler-Effekt zweiter Ordnung und der dynamische Stark-Effekt bereits berücksichtigt sind. In diese Werte gehen auch Korrekturen der Fontänen-Cäsium-Atomuhr aufgrund genau bekannter Systematiken, wie beispielsweise erster und zweiter Ordnung Doppler-Effekt, ein. Die Systematiken haben einen zu langsamen Gang der Atomuhr zur Folge, so daß die

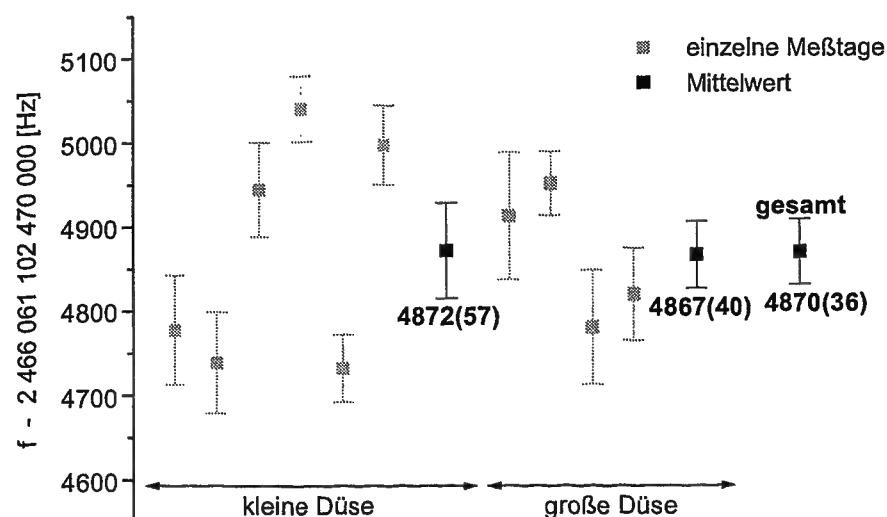


Abbildung 6.5: Ergebnisse für die Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs in atomarem Wasserstoff an zehn verschiedenen Meßtagen. Die Messungen wurden mit zwei verschiedenen Düsendurchmessern durchgeführt (kleine Düse: 1.2 mm, große Düse: 2.0 mm). Angegeben sind außerdem die jeweiligen statistischen Mittelwerte sowie das gesamte Mittel.

Korrekturen eine Blauverschiebung der Absolutfrequenz um etwa 40 Hz bewirken. Der Fehler dieser Korrekturen beträgt weniger als ein Hertz und kann damit an dieser Stelle vernachlässigt werden. Insgesamt ergibt sich die Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs zu 2 466 061 102 474 870 Hz mit einer statistischen Unsicherheit von 36 Hz. Dabei ist zu beachten, daß dieser Wert die Frequenz des 1S-2S Übergangs mit den Hyperfeinkomponenten ($F = 1, m_F = \pm 1$) angibt (Kapitel 2.4). Der systematische Fehler, der sich aus der Unsicherheit der Linienform ergibt, wurde bislang noch nicht berücksichtigt. Dieser kann für das theoretische Linienformmodell zu etwa 20 Hz angegeben werden [Hub97]. Mit dieser Unsicherheit werden auch die verbleibenden systematischen Fehler aufgrund des Doppler-Effekts zweiter Ordnung und des dynamischen Stark-Effekts berücksichtigt.

Neben den bereits korrigierten dominanten Systematiken, dem Doppler-Effekt zweiter Ordnung und dem dynamischen Stark-Effekt, sind an dieser Stelle noch die Druckverschiebung und der statische Stark-Effekt zu beachten. Wie in Kapitel 5.2 angegeben und erläutert, ergibt sich eine Druckverschiebung als Folge von Stößen der Atome mit dem Hintergrundgas von etwa 10 Hz. Dieser Wert wird als eher konservative Abschätzung für die Unsicherheit der Absolutfrequenz aufgrund der Druckverschiebung angenommen. Um sicher zu stellen, daß ein erhöhter Druck innerhalb der Düse nicht zu einer größeren Verschiebung führt als bislang aufgrund des Hintergrunddrucks in der Vakuumkammer angenommen, wurden die zehn Messungen mit zwei verschiedenen Düsendurchmessern durchgeführt. Wie in Abbildung 6.5 gezeigt, wurden an sechs Meßtagen die 1S-2S Spektren mit einem kleinen Düsendurchmesser von 1.2 mm und

6.2. BESTIMMUNG DER ABSOLUTFREQUENZ

an vier dazwischen liegenden Tagen mit einem großen Durchmesser von 2.0 mm aufgenommen. Innerhalb ihrer Fehler stimmen die jeweils für die kleine und große Düse gemittelten Absolutfrequenzen sehr gut überein (Abbildung 6.5). Damit kann mit der hier erreichten Genauigkeit bei der vorliegenden Anregungsgeometrie keine zusätzliche Verschiebung aufgrund eines höheren Drucks innerhalb der Düse beobachtet werden.

Der statische Stark-Effekt bewirkt aufgrund elektrischer Felder eine Verschiebung der atomaren Energieniveaus. Um mögliche Streufelder abzuschirmen und zu unterdrücken, ist der gesamte Wechselwirkungsbereich von einem Drahtgitter als Faradaykäfig umgeben. Außerdem sind alle Flächen mit Graphit beschichtet, um Kontaktspannungen zu verhindern. Nach Kapitel 5.2 kann der Einfluß von statischen elektrischen Feldern zu etwa 3 Hz angegeben und damit an dieser Stelle vernachlässigt werden. Auch die Schwarzkörper-Strahlung und mögliche Stehwelleneffekte haben nach Kapitel 5.2 ebenfalls nur einen geringen Einfluß auf die 1S-2S Resonanz.

Um die Zentroidfrequenz des 1S-2S Übergangs angeben zu können, muß nach Kapitel 2.4 eine Korrektur $\Delta f_{HFS} = 310\,712\,223(13)$ Hz zur Berücksichtigung der Hyperfeinstruktur zu dem Ergebnis für die Absolutfrequenz addiert werden. Zusammen mit der Druckverschiebung ergibt sich somit die Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs zu

$$f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187\,103(46) \text{ Hz} . \quad (6.5)$$

Tabelle 6.1 gibt an, wie sich der Wert für die Absolutfrequenz der 1S-2S Zentroids sowie dessen Unsicherheit von 46 Hz im einzelnen zusammensetzt.

	Frequenz [Hz]	Unsicherheit [Hz]
Extrapolierte Übergangsfrequenz ($F = 1 \rightarrow F' = 1$)	2 466 061 102 474 870	36
Korrekturen:		
Druckverschiebung		
Linienformmodell	10	10
statischer Stark-Effekt	0	20
Schwarzkörper-Strahlung	0	<5
Stehwelleneffekte	0	1
Nullpunkt der Leistungsskala	0	<10
Hyperfeinstruktur	0	<1
	310 712 223	
insgesamt (Zentroidfrequenz)	2 466 061 413 187 103	46

Tabelle 6.1: Einzelne Beiträge zu der Absolutfrequenz des 1S-2S Zentroids sowie statistische als auch systematische Unsicherheiten. Die Unsicherheit der extrapolierten Übergangsfrequenz gibt den rein statistischen Fehler an. Die restlichen Unsicherheiten bilden die systematischen Fehler der Korrekturen der Absolutfrequenz.

Damit wurde die Genauigkeit der Absolutfrequenz des 1S-2S Zentroids um eine

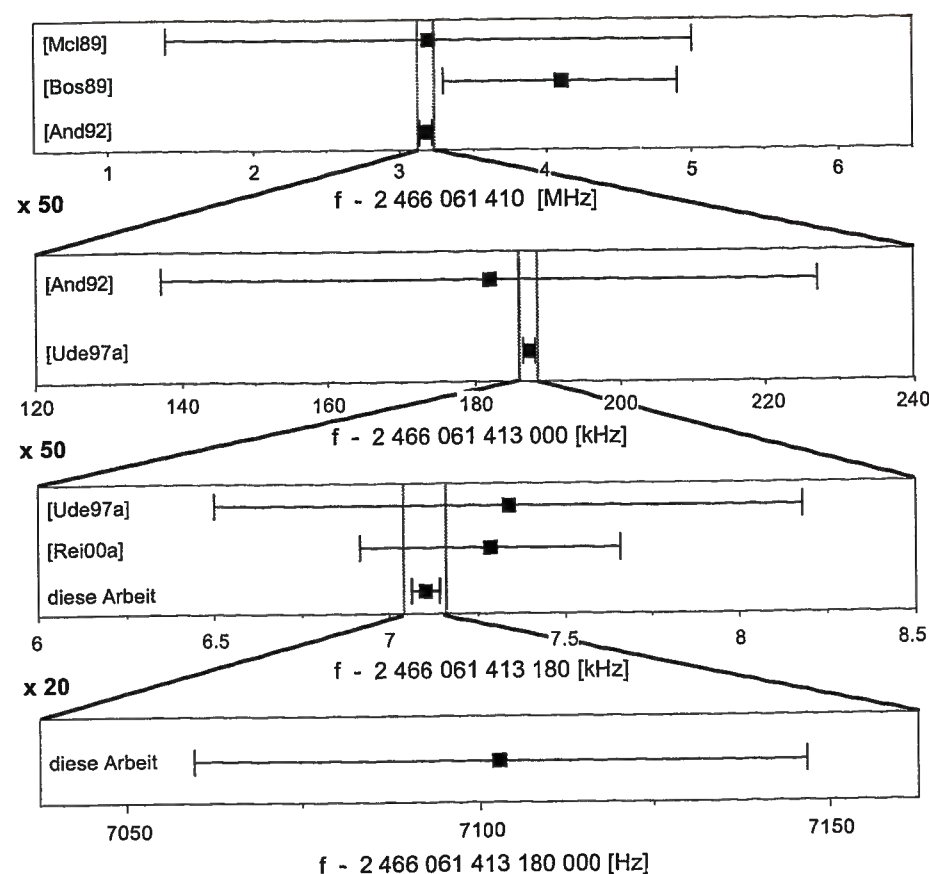


Abbildung 6.6: Vergleich der Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs in atomarem Wasserstoff aus Messungen der letzten zehn Jahre.

Größenordnung auf $1.8 \cdot 10^{-14}$ gesteigert. Der 1S-2S Übergang in atomarem Wasserstoff stellt somit den im sichtbaren und ultravioletten Bereich am besten vermessenen Übergang dar. Abbildung 6.6 zeigt die enorme Entwicklung mit der die Auflösung des 1S-2S Übergangs in den letzten zehn Jahren gesteigert werden konnte. Um diese weiter zu verbessern, wird es nötig sein das Wasserstoff-Spektrometer weiterzuentwickeln. Dazu wurde zum einen damit begonnen einen neuen Referenzresonator zur besseren Stabilisierung des Farbstofflasers aufzubauen. Zum anderen wird es zur weiteren Reduzierung von systematischen Einflüssen nötig sein das Signal langsamer Atome zu steigern. Dazu werden von M. Fischer bereits Überlegungen angestellt, die Vakuumkammer differentiell zu pumpen und damit die Stöße mit dem Restgas zu verringern. In jüngster Vergangenheit wurde vorgeschlagen, den Atomstrahl mit Hilfe einer L_α -Quelle bei 121 nm [Wie97, Wie98, Ulr99] abzubremesen. Damit könnte die Geschwindigkeitsverteilung der Atome (Kapitel 5.1) zu kleineren Geschwindigkeiten hin verschoben werden und dadurch die Zahl langsamer Atome weiter gesteigert werden. Zusammenfassend sollte es mit diesen Maßnahmen möglich sein die Genauigkeit, mit der die 1S-2S Übergangsfrequenz bestimmt werden kann, weiter zu steigern.

Kapitel 7

Ausblick

Die vorliegende Arbeit beschreibt eine Messung der Absolutfrequenz des 1S-2S Übergangs am Wasserstoffatom auf wenige 10^{-14} . Dies stellt eine Verbesserung gegenüber früheren Experimenten um etwa eine Größenordnung dar. Damit stellt die 1S-2S Resonanz die am präzisesten vermessene Resonanz im optischen und ultravioletten Bereich dar. Andere präzise Absolutfrequenzmessungen wurden zum Beispiel bei neutralen Atomen an Calcium (auf $2.5 \cdot 10^{-13}$) [Rie99] und bei einzelnen gespeicherten Ionen an Strontium (auf $4.5 \cdot 10^{-13}$) [Ber99] durchgeführt.

Während der Messungen zeigte sich, daß für eine weitere Steigerung der Genauigkeit ein stabilerer Laser zur Anregung des Übergangs wichtig ist. Mit der Planung eines dafür benötigten besseren Referenzresonators wurde bereits begonnen und es sollte möglich sein, diesen in naher Zukunft in Betrieb zu nehmen. Mit ihm sollten sich sowohl die Frequenzdrift als auch die Linienbreite des Farbstofflasers deutlich verbessern lassen, so daß mit diesem Lasersystem eine bessere Auflösung der 1S-2S Resonanz möglich sein sollte.

Um eine solche weitere Steigerung der Auflösung des 1S-2S Übergangs an dem kalten Wasserstoff-Atomstrahl, sowie darüber hinaus auch den Einfluß systematischer Effekte weiter zu reduzieren, ist es wichtig, den Anteil langsamer Atome zu vergrößern. Dazu wird es nötig sein, das bisherige Vakuumsystem differentiell zu pumpen, um die Stöße der Wasserstoffatome mit dem Restgas zu verringern. Eine zweite Möglichkeit ergibt sich durch den Einsatz einer L_α -Quelle bei 121 nm [Wie97, Wie98, Ulr99]. Mit dieser inkohärenten Quelle sollte es durch Anregen des 1S-2P Einphotonen-Übergangs möglich sein, die Geschwindigkeitsverteilung des Wasserstoff-Atomstrahls zu kleineren Geschwindigkeiten hin zu verschieben. Auf diesem Weg könnte die Zahl langsamer Atome deutlich gesteigert werden. In einem nächsten Schritt könnte man sogar daran denken, die Atome mit einer solchen Quelle zu kühlen oder sogar in einer magneto-optischen Falle (MOT) zu fangen. In unserer Gruppe wird auch intensiv an der Erzeugung von kohärentem L_α -Licht mit Hilfe von Vierwellen-Mischungsprozessen gearbeitet [Eik99]. Das experimentelle Problem dieses Ansatzes besteht derzeit in der noch zu geringen Leistung von wenigen 10 nW an erzeugtem L_α -Licht.

Die Steigerung der Auflösung des $1S$ - $2S$ Übergangs etabliert diesen in zunehmenden Maße als möglichen primären optischen Frequenzstandard, dessen Genauigkeit zukünftig im Bereich von 10^{-16} liegen könnte. Die demonstrierte Steigerung der Auflösung erlaubt aber auch tiefere Einblicke in die unterschiedlichen Kernstrukturen der beiden Isotope Wasserstoff und Deuterium. Mit der höheren Auflösung könnte ein genauere Wert für die Differenz der Übergangsfrequenzen der beiden Elemente [Hub98], die sogenannte Isotopieverschiebung, bestimmt werden. Schon heute übertrifft die dabei erreichbare Genauigkeit die der an Teilchenbeschleunigern durchgeführten Experimente.

Die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente verdeutlichen, daß die Bestimmung von genaueren Werten für die $1S$ -Lamb-Verschiebung und die Rydberg-Konstante in Zukunft nur mit Hilfe einer zweiten absolut gemessenen Frequenz, wie zum Beispiel der des $2S$ - $8S$ bzw. $2S$ - $8D$ Übergangs, möglich sein wird. Es hat sich gezeigt, daß das dazu alternative doppelresonante Experiment in seiner jetzigen Form vor zu großen technischen Schwierigkeiten steht, die vor allem auf den doppelresonanten Spiegeln beruhen. Ein experimentelles Problem ist es, daß die beiden gleichzeitig mit diesen Spiegeln überhöhten Wellenlängen zur Doppler-freien Zweiphotonen-Anregung der $1S$ - $2S$ und $2S$ - $4S$ Übergänge ganzzahlige Vielfache sind. Daher erweist es sich als schwierig, Spiegel mit einer hohen Reflektivität herzustellen. Falls die Wellenlängen keine Harmonischen sind, wie im Fall des $1S$ - $2S$ und des $2S$ - $8S$ bzw. $2S$ - $8D$ Übergangs, können die Spiegelschichten besser konzipiert werden. Bei einem Vergleich dieser Übergänge könnten die gesamten Erfahrungen und Vorteile der doppelresonanten Spektroskopie an einem kalten Atomstrahl ausgenutzt werden, um die $2S$ - $8S$ bzw. $2S$ - $8D$ Frequenz absolut genau zu bestimmen. Mit Hilfe der in dieser Arbeit verwendeten Techniken zur Überbrückung optischer Frequenzintervalle könnte die Frequenz dieses Übergangs bei 778 nm direkt phasenkohärent mit einer Cäsium-Atomuhr als primäres Frequenznormal verglichen werden. Mit diesem Experiment wäre ein präziserer Vergleich zwischen experimentellen und theoretischen Wert für die $1S$ -Lamb-Verschiebung als Test der Quantenelektrodynamik an einem gebundenen System möglich.

Aber auch die Klärung weitreichenderer Fragestellungen stellt eine lohnende Aufgabe für die Zukunft dar. Zum einen würde der Vergleich der $1S$ - $2S$ Übergangsfrequenzen in Wasserstoff und Antiwasserstoff einen wichtigen Test der Invarianz eines gebundenen Systems unter einer CPT-Transformation liefern. Momentan arbeiten verschiedene Forschungsgruppen an der Erzeugung von Antiwasserstoff am europäischen Forschungslabor CERN in Genf. Zum anderen ist die Frage nach der Konstanz von Naturkonstanten zu nennen. Die Messung der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs mit Hilfe einer Cäsium-Atomuhr entspricht dabei dem Vergleich eines elektronischen Übergangs mit einem Hyperfeinübergang. Durch eine wiederholte Messung der Absolutfrequenz des $1S$ - $2S$ Übergangs in atomarem Wasserstoff über mehrere Jahre hinweg könnte diese Fragestellung mit den in dieser Arbeit beschriebenen Techniken untersucht werden.

Anhang A

Ramsey-Spektren

Wie in Kapitel 4.2 ausgeführt, besteht die grundlegende Idee der Ramsey-Spektroskopie darin, eine einzige Wechselwirkungsregion durch zwei getrennte Zonen zu ersetzen. Abbildung A.1 zeigt zwei mit zeitlich getrennten Wechselwirkungsregionen aufgenommene Ramsey-Spektren bei einer Modulationsfrequenz von 10 kHz. Für die Pulssequenz im linken Teil beträgt das Verhältnis von Hell- zu Dunkelphase 1:1, im rechten Teil 1:3. Haben die beiden Zonen eine Pulsdauer t und einen zeitlichen Abstand T , so ist die Breite der Einhüllenden zu $1/t$ und die eines Interferenzstreifens zu $1/T$ gegeben. Dies ist deutlich an der größeren Breite von 40 kHz der Einhüllenden des rechten Spektrums gegenüber einer Breite von 20 kHz im linken Spektrum zu erkennen. Die in den beiden Spektren auftretenden höheren Ordnungen der Interferenzstreifen liegen bei einem

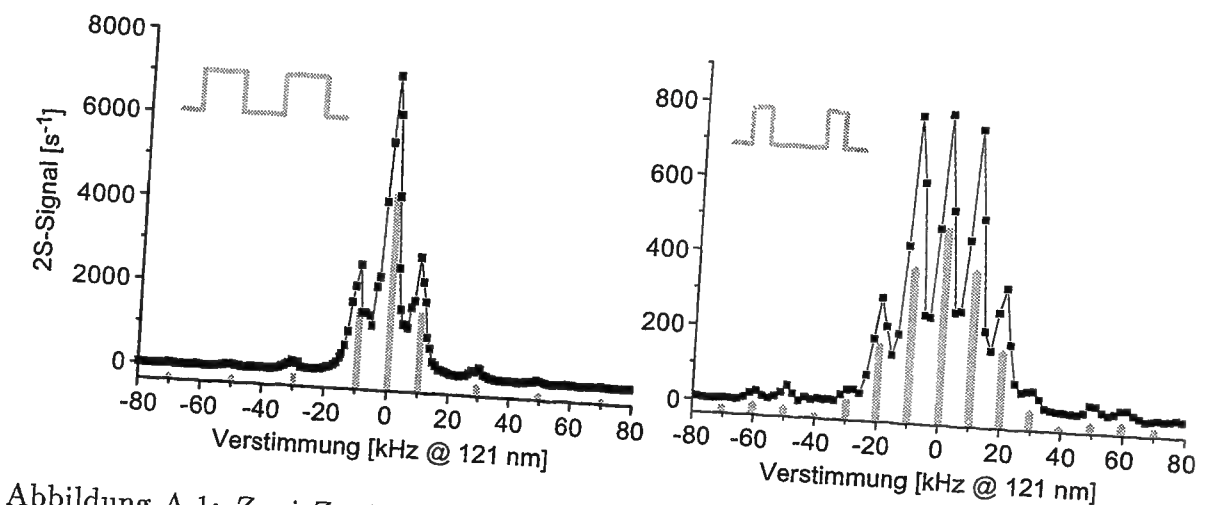


Abbildung A.1: Zwei Zweiphotonen-Ramsey-Spektren des $1S$ - $2S$ Übergangs in atomarem Wasserstoff, aufgenommen bei einer Modulationsfrequenz von 10 kHz. Das Verhältnis Hell- zu Dunkelphase ist jeweils links neben den Spektren durch die eingezeichnete Pulssequenz angedeutet und beträgt im linken Teil 1:1 und im rechten 1:3. Die Balken stellen das Fourierspektrum der jeweiligen Pulssequenz dar.

Vielfachen der Modulationsfrequenz. Die Zahl der Ordnungen und auch deren relative Amplitude lassen sich leicht mit Hilfe des Fourier-Spektrums der entsprechenden Pulsform erklären, wie man deutlich an den mit Balken dargestellten Fourierkomponenten erkennen kann.

Erhöht man die Modulationsfrequenz, so können die Atome im Mittel mehr als zweimal mit dem Lichtfeld wechselwirken. Die Folge ist eine Interferenzstruktur mit schmäleren Maxima in Analogie zu den aus der Optik bekannten Airy-Funktionen für Vielstrahlinterferenzen. Abbildung A.2 zeigt ein solches Spektrum bei einer Modulationsfrequenz von etwa 50 kHz.

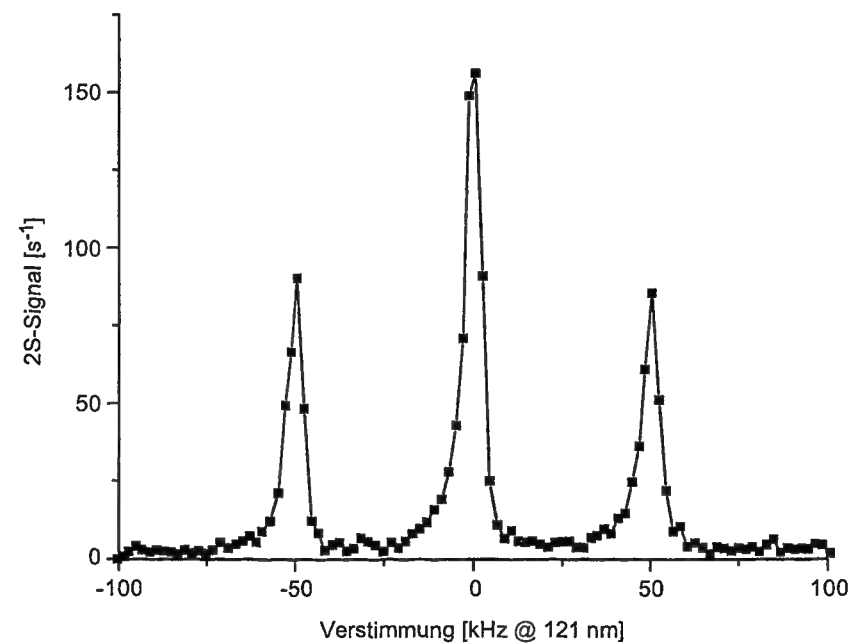


Abbildung A.2: Zweiphotonen-Ramsey Spektrum bei einer Modulationsfrequenz von 50 kHz.

Die Linienbreite der einzelnen Interferenzstreifen beträgt etwa 4 kHz und ist damit um einen Faktor sechs gegenüber einem vergleichbaren Ramsey-Spektrum mit einer sinusförmigen Struktur reduziert. Die Linienform eines einzelnen Streifens zeigt deutlich die asymmetrische Linienform und Verbreiterung wie man sie bereits von der kontinuierlichen Anregung (Kapitel 4.1) her kennt.

Anhang B

Bei Phys. Rev. Lett. veröffentlichte Artikel

In diesem Anhang sind die im Rahmen dieser Arbeit bei *Physical Review Letters* erschienenen Artikel wiedergegeben:

- Referenz [Rei00a]:

Phase Coherent Vacuum-Ultraviolet to Radio Frequency Comparison with a Mode-Locked Laser,
J. Reichert, M. Niering, R. Holzwarth, M. Weitz, Th. Udem und T. W. Hänsch,
Phys. Rev. Lett. **84**, 3232 (2000).

- Referenz [Nie00]:

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

Phase Coherent Vacuum-Ultraviolet to Radio Frequency Comparison with a Mode-Locked Laser

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

Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Straße 1, 85748 Garching, Germany
(Received 18 November 1999)

We demonstrate a versatile new technique that provides a phase coherent link between optical frequencies and the radio frequency domain. The regularly spaced comb of modes of a mode-locked femtosecond laser is used as a precise ruler to measure a large frequency gap between two different multiples (harmonics or subharmonics) of a laser frequency. In this way, we have determined a new value of the hydrogen 1S-2S two-photon resonance, $f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187.29(37)$ kHz, representing now the most accurate measurement of an optical frequency.

PACS numbers: 06.30.Ft, 31.30.Jv, 42.60.Fc, 42.62.Fi

Using a new approach to measure the absolute frequency of light with a train of femtosecond laser pulses, we have directly compared the vacuum ultraviolet frequency of the 1S-2S interval of atomic hydrogen [1] at 2466 THz ($\lambda = 121.6$ nm) with a 10 MHz reference frequency provided by a commercial atomic cesium clock. We reach an accuracy of 1.5 parts in 10^{13} , surpassing the best previous measurement of the 1S-2S frequency [2], and also a recent record breaking measurement of the Ca intercombination line [3] with a traditional harmonic laser frequency chain [4], thus reestablishing the lead of the 1S-2S two-photon resonance as the most precisely measured optical frequency in the ultraviolet and visible optical region. A further improvement by an order of magnitude is expected soon when the commercial cesium clock is replaced by a more accurate transportable cesium fountain clock [5].

The hydrogen 1S-2S resonance with its natural linewidth of only 1 Hz has long inspired advances in high resolution laser spectroscopy and optical frequency metrology, since it provides an important cornerstone for tests of quantum electrodynamics theory (QED), for measurements of fundamental constants, and even for studies of hadronic structure [6]. In the future, it may reveal possible slow changes of fundamental constants or, with the antihydrogen experiments now under preparation at CERN [7], conceivable differences between matter and antimatter.

Recently, we have demonstrated that the femtosecond pulse train of a Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser can provide a wide comb of precisely equidistant mode frequencies, which can serve as a ruler to measure large optical frequency intervals with unprecedented precision [8,9]. In these experiments, the pulse repetition rate and thus the spacing of the teeth of the frequency comb are electronically phase locked to the radio frequency of a cesium atomic clock which serves as the frequency standard.

Here we demonstrate, for the first time, a new type of laser frequency chain which measures absolute optical frequencies with the help of a femtosecond pulse train. To this end, the interval between two harmonic frequencies of a

laser oscillator is bridged with the new frequency ruler. We also take advantage of the precise bisection of optical frequency gaps with an optical interval divider [10,11]. These new tools will soon replace the large, delicate, complex, and highly specialized harmonic laser frequency chains of the past with compact, reliable, and versatile solid state systems for the measurement and synthesis of optical frequencies. We have experimentally demonstrated a potential accuracy of a few parts in 10^{18} [12] for this new type of laser "clockwork," which is likely to play an important role in future generations of atomic clocks that can now be based on sharp optical resonances in atoms [2], ions [13], or molecules.

The reciprocal relationship between time and frequency implies that a single short pulse has a broad spectral bandwidth. A pulse circulating inside the cavity of a mode-locked laser, however, can be described as a superposition of discrete, well-defined laser modes. The resonator provides a long-term phase memory, so that successive emitted pulses have a high degree of mutual phase coherence. The use of such periodic laser pulse trains for the measurement of optical frequency intervals and for high resolution "Ramsey-type" spectroscopy via multiple coherent interactions had been demonstrated in elementary form more than 20 years ago [14]. Similar ideas have also been discussed by Chebotayev [15]. However, phase coherent absolute frequency measurements, as demonstrated here, would not be possible without the more recent dramatic advances in the technology of ultrafast solid state lasers.

Naively, for a laser cavity with dispersive optical elements, one would expect the mode frequencies to be not precisely equally spaced. As a result, a short pulse circulating inside the cavity would tend to spread and change its shape with time. The Kerr lens produced by the circulating light pulse in a nonlinear optical medium via the intensity dependent refractive index counteracts this tendency by periodically modulating the cavity losses. Each mode is, in fact, injection locked by modulation sidebands of the other modes, and will oscillate in precise lock step, as long as the cavity dispersion is sufficiently well

compensated, so that the mode frequencies do not have to be pulled too far. Modes unable to follow this collective dictate cannot take advantage of the Kerr lens and suffer high round-trip losses in a properly designed cavity.

In the time domain, the output of a mode-locked femtosecond laser may be considered as a continuous carrier wave that is strongly amplitude modulated by a periodic pulse envelope function. If such a pulse train and the light from a cw laser are combined on a photodetector, the beat note between the carrier wave and the cw oscillator is, in fact, observed in a stroboscopic sampling scheme. The detector signal will thus reveal a slow modulation at the beat frequency modulo the sampling rate or pulse repetition frequency.

Of course, the laser spectrum is subject to acoustic and other technical noise. However, in a Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser, this noise can be readily suppressed with the same servo techniques that are normally used to stabilize the frequency of cw lasers. Carrier frequency and pulse repetition rate, i.e., the position and spacing of the frequency comb, can, in fact, be easily controlled independently by changing the phase and group velocity separately [16]. The ability to measure the absolute frequencies of the laser modes implies that we are now able to measure and stabilize the rate at which the carrier phase slips relative to the pulse envelope [16], or the offset frequency that displaces the laser frequency comb from the harmonic frequencies of the pulse repetition rate. The relative phase between carrier and envelope should become important for nonlinear interactions of light pulses that last for only a few optical cycles.

We were initially surprised that the generation of femtosecond pulses in a Kerr-lens mode-locked laser is so highly reproducible that the spectral modes remain precisely equidistant out into the far wings of the spectrum. We have since shown that this remains true even if the laser spectrum is further broadened by self phase modulation in a nonlinear optical fiber [12]. Recently, extreme spectral broadening has been observed with "photonic crystal fibers" [17], which manage the optical dispersion with the help of a microstructured cladding. Meanwhile we have shown [12] that such highly nonlinear fibers can preserve the phase coherence between successive pulses, so that frequency combs spanning more than one octave are becoming available. A compact frequency chain consisting of two lasers only (a frequency doubled Nd:YAG and a femtosecond laser) has already been operated in our laboratory [12]. A high degree of mutual phase coherence has even been observed for pairs of white light continuum pulses produced by focusing the light from an amplified Ti:sapphire femtosecond laser at two separate spots inside a nonlinear medium, despite complications such as self-focusing, stimulated Raman and Brillouin scattering, or shock wave formation [18]. Similar experiments with high harmonics produced in gas jets [19] suggest that it may eventually become feasible to extend absolute optical

frequency measurements into the extreme ultraviolet and soft x-ray region.

To demonstrate the new approach to optical frequency metrology in the most expeditious way, we start with an existing laser frequency chain, as described in detail elsewhere [2], and we introduce a commercial Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser (Coherent, model Mira 900) as an active frequency comb generator to measure two large optical frequency gaps as illustrated in Fig. 1.

Previously, the $3.39\text{ }\mu\text{m}$ CH₄-stabilized He-Ne laser with its frequency $f \approx 88.4$ THz served as the reference standard. In the new chain, the He-Ne laser acts only as an optical flywheel. The reference standard is now a cesium atomic clock (Hewlett Packard, model 5071A), which controls the repetition rate of the femtosecond laser and thus all the optical frequencies in the chain.

The dye laser for the hydrogen spectrometer operates at a frequency $7f - 2\Delta f$, where the offset $\Delta f \approx 1$ THz posed a major challenge in earlier experiments [2]. As before, we produce the fourth harmonic $4f$ of the He-Ne laser in two frequency doubling steps, using a phase-locked $1.70\text{ }\mu\text{m}$ NaCl:OH⁻ color center laser at $2f$ and an 848 nm diode laser at $4f$ as transfer oscillators (not shown in Fig. 1). An optical frequency interval divider [11] between f and $7f - 2\Delta f$ generates the precise center frequency $4f - \Delta f$ (oval symbol in Fig. 1). The relatively small interval Δf between $4f$ and $4f - \Delta f$ can now be measured effortlessly with the much broader frequency comb of the mode-locked femtosecond laser.

To measure the absolute optical frequencies, we introduce a 973 nm diode laser whose second harmonic frequency (generated in a B-cut KNbO₃ crystal) is phase

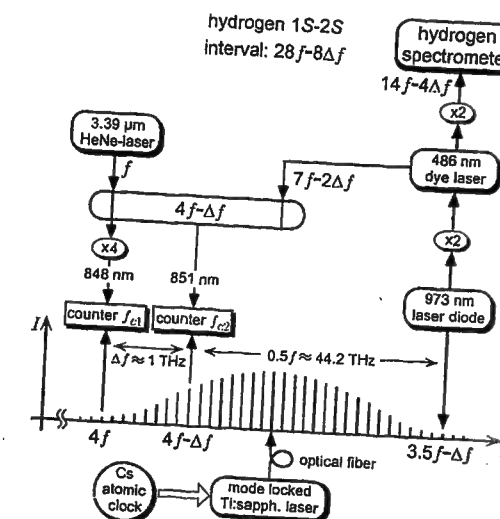


FIG. 1. Novel frequency chain for the measurement of the hydrogen 1S-2S interval. The frequency comb of a mode-locked laser is used to measure two large optical frequency differences.

locked to the dye laser, so that it oscillates at the precise subharmonic $3.5f - \Delta f$. By bridging the interval of $0.5f$ between $4f - \Delta f$ and $3.5f - \Delta f$ with the frequency comb of the femtosecond laser, we are, in effect, measuring the frequency f of the He-Ne laser directly in terms of the atomic clock frequency. Since the Mira laser has a rather moderate pulse length of 73 fs, we send its output through a 40 cm long single mode fiber which broadens the spectrum by self-phase modulation so that it bridges the interval of 45.2 THz [12,16].

A single step link between the 45.2 THz interval and the 10 MHz output frequency of the cesium clock is established by stabilizing the 200th harmonic of the pulse repetition rate to a 15.2 GHz signal [16] provided by a microwave synthesizer (Hewlett Packard, model 83623A). The synthesizer is referenced to the cesium clock, which is continuously monitored using a global positioning system (GPS) time receiver (Hameg, model 8125). In addition to the mode spacing, we "fix" the entire comb by stabilizing the beat signal between the dye laser and the second harmonic of the 973 nm laser diode, which is phase locked to a particular mode at $3.5f - \Delta f$. The simultaneous control of the mode spacing and the absolute position of our comparatively narrow frequency comb [16] already enables us to measure any optical frequency between 848 and 973 nm.

All frequency locks in the chain are optical phase-locked loops [20], which control the frequency of one laser, so that the beat frequency with the second laser oscillates in phase with a reference (or local oscillator) frequency provided by our cesium atomic clock. To continuously monitor the performance of these servo loops, we count all in-lock beat signals with radio frequency counters (Hewlett Packard, model HP 53131A) using a different filter bandwidth as used for the phase detectors. In this way, possible cycle slipping events are effectively removed from our data [9].

As shown in Fig. 1, we measure the beat frequencies f_{c1} and f_{c2} at $4f$ and $4f - \Delta f$ with the modes of the comb. To ensure that the beat notes are counted correctly, we use additional laser diodes (not shown in Fig. 1) phase locked to these modes to provide enough power for a strong beat signal (signal to noise ratio ≥ 40 dB in 400 kHz detection bandwidth). In the phase-locked condition, the chain relates the frequency of the hydrogen $1S-2S$ transition ($28f - 8\Delta f$) to the measured radio frequencies f_{c1} and f_{c2} through

$$f_{1S-2S} = -8f_{c1} - 64f_{c2} + (-8N_1 + 64N_2)f_r + f_{LO} \\ = -8f_{c1} - 64f_{c2} + 2466.06384 \text{ THz}, \quad (1)$$

where $N_1 = 595\,351$ and $N_2 = 581\,421$ are the number of modes between the 973 nm laser diode and the modes that produce the measured beat notes, $f_r = 76$ MHz is the pulse repetition rate, and $f_{LO} = 5.504$ GHz contains all contributions from the local oscillator frequencies used for phase locking.

The hydrogen spectrometer has been described in detail previously [21]. The extremely narrow $1S_{1/2}(F=1, m_F=\pm 1) \rightarrow 2S_{1/2}(F'=1, m_{F'}=\pm 1)$ Doppler-free two-photon resonance at 243 nm is driven in a cold atomic beam by a frequency doubled ultrastable dye laser. The UV radiation is resonantly enhanced in a linear cavity inside a vacuum chamber and excites the atoms traveling collinear to this standing wave. At a distance of $l \approx 14$ cm downstream from the beam nozzle atoms that have been excited to the metastable $2S$ state are probed with the help of a quenching electric field that forces the emission of Lyman- α photons. In order to reduce time-of-flight broadening and second order Doppler shifts, we select slow atoms from the thermal beam by turning the laser light periodically off with a chopper and counting signal photons only if they arrive after a time delay of $\tau = 1.2$ ms.

We determine the center of the recorded lines by fitting a Lorentzian to the experimental data. As confirmed by simulations [22], this procedure is sufficiently precise at present if the second order Doppler shift is corrected appropriately. An upper limit for the second order Doppler shift $\Delta\nu = -1/2 (v/c)^2 f_{1S-2S}$ is given by $v = v_{\max} = l/\tau$. A detailed model for the line shape of the resonance [22], however, predicts that for sufficiently long delay times an effective velocity $\bar{v} \approx v_{\max}/2$ gives a realistic estimate for the second order Doppler shift, as the slowest atoms spend the longest time for excitation in the light field. Assuming an uncertainty of 50% in $\bar{v}$, we correct for a redshift of $1.9 \times 10^{-14} \pm 1.9 \times 10^{-14}$. Averaging the actual particle trajectories in the laser light field, the line shape model [22] yields an ac Stark blueshift of $2.45(5)$ Hz/mW, corresponding to a correction of $-2.7 \times 10^{-13} \pm 1.3 \times 10^{-13}$. The relative uncertainty of 50% in the (linear power-dependent) ac Stark shift is due to a 50% uncertainty in the absolute determination of the light power inside the enhancement cavity. Other uncertainties are estimated to contribute less than 8×10^{-15} [22,23].

During the experiment the dye laser is locked to a stable Zerodur cavity. An acousto-optic modulator (AOM) is used to shift the dye laser frequency relative to the frequency of the light in the cavity, so that the dye laser can be scanned over the atomic resonance. For the data analysis, we first determine the frequency of the light in the cavity with our frequency chain with a counter gate time of one second. The cavity has a superior short term stability so that the phase stability of the frequency chain including its cesium reference (specified Allan standard deviation 5×10^{-12} within one second) can be derived. The measured scatter of cavity frequency readings was reduced by a factor of 10 (to the specified Allan standard deviation of 5×10^{-13} within one second) when we replaced the quartz oscillator at the output of the cesium clock by a quartz with a tenfold improved stability. Thus, with the present radio frequency reference, the frequency chain contributes at a negligible level to the total measurement noise.

To use the cavity, that is drifting at a relative rate of up to 6×10^{-14} per second, as a flywheel in the optical region we fit a third order polynomial to its frequency as a function of time (for periods of usually more than 3 h). This polynomial is used to calculate the absolute frequencies of the $1S-2S$ line centers from the recorded number of emitted Lyman- α photons, the AOM operating frequency, and the recorded time tags. For a typical day of measurement, we obtain about 35 recorded hydrogen spectra and a total of 900 s of measurement data valid for the frequency evaluation of the reference cavity.

Evaluating the data of ten days of measurement, we determine the frequency of the $1S_{1/2}(F=1) \rightarrow 2S_{1/2}(F'=1)$ transition as the weighted mean value of the daily results. The scatter of the one-day mean values of the line centers is due to two statistical effects: the cesium clock instability of 1.5×10^{-13} (specified to less than 2.8×10^{-13}) within 900 s and the statistical uncertainty of around 10^{-13} due to the fitting procedures (polynomials and Lorentzians). For the full ten days of data acquisition, this reduces to a total statistical uncertainty of 5.7×10^{-14} .

We further apply corrections due to small deviations of the GPS time from the universal time, as published by the Bureau International des Poids et Mesures in Paris. In addition, we correct for the gravitational redshift at the site of our laboratory at 490 m above sea level by subtracting 5.3×10^{-14} from the result. We conservatively estimate the uncertainty of this calibration of our cesium clock to be less than 2 parts in 10^{14} .

To account for the well-known hyperfine splittings of the $1S$ and $2S$ levels [24], we add $310\,712\,223(13)$ Hz to the result to obtain the $1S-2S$ hyperfine centroid frequency:

$$f_{1S-2S} = 2\,466\,061\,413\,187.29(37) \text{ kHz}. \quad (2)$$

The error budget is dominated by the 1.3×10^{-13} uncertainty of the ac Stark shift and the 5.7×10^{-14} statistical uncertainty of the mean value of the line centers. Both contributions can be reduced significantly if a more stable radio frequency source is used. In this case measurements with different excitation powers can be performed in a reasonable integration time to extrapolate to zero ac Stark shift.

In conclusion, we have performed the first phase coherent radio frequency to vacuum UV comparison to measure the $1S-2S$ transition frequency of atomic hydrogen. The measurement is limited by the short-term stability of our local cesium atomic clock. Together with a new, more accurate value of the proton charge radius [25] and planned precise absolute frequency measurements of hydrogen transitions between excited states with ultracold atoms [26], our measurement will allow more stringent tests of bound-state QED theory.

Even though the reported experiments are based on an existing complex harmonic frequency chain, the techniques introduced here can be applied with reliable and much more compact solid state and semiconductor lasers. This opens for the first time the possibility to construct an optical clock with a clockwork that can continuously work for an extended period of time.

- [1] See, for example, *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] F. Riehle *et al.*, IEEE Trans. Instrum. Meas. **48**, 613 (1999).
- [4] H. Schnatz *et al.*, Phys. Rev. Lett. **76**, 18 (1996).
- [5] G. Santarelli *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 4619 (1999).
- [6] A. Huber *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 468 (1998).
- [7] J. Eades and F.J. Hartmann, Rev. Mod. Phys. **71**, 373 (1999).
- [8] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T.W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **82**, 3568 (1999).
- [9] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T.W. Hänsch, Opt. Lett. **24**, 881 (1999).
- [10] D. McIntyre and T.W. Hänsch, in Digest of the Annual Meeting of the Optical Society of America, paper ThG3, Washington, D.C., 1988.
- [11] H.R. Telle, D. Meschede, and T.W. Hänsch, Opt. Lett. **15**, 532 (1990).
- [12] R. Holzwarth *et al.* (to be published).
- [13] E. Peik *et al.*, in Proceedings of the 13th European Frequency and Time Forum and the 1999 IEEE International Frequency Control Symposium, Besançon, 1999.
- [14] J.N. Eckstein, A.I. Ferguson, and T.W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **40**, 847 (1978).
- [15] V.P. Chebotayev and V.A. Ulybin, Appl. Phys. B **50**, 1 (1990).
- [16] J. Reichert, R. Holzwarth, Th. Udem, and T.W. Hänsch, Opt. Commun. **172**, 59 (1999).
- [17] W.J. Wadsworth *et al.*, postdeadline paper to the 12th Annual Meeting of the IEEE Lasers and Electro-Optics Society, PD 1.5, San Francisco, 1999; J.K. Ranka, R.S. Windeler, and A.J. Stentz, Opt. Lett. **25**, 25 (2000).
- [18] M. Bellini and T.W. Hänsch, Opt. Lett. (to be published).
- [19] M. Bellini *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 297 (1998).
- [20] M. Prevedelli, T. Freegarde, and T.W. Hänsch, Appl. Phys. B **60**, S241 (1995).
- [21] C. Zimmermann, R. Kallenbach, and T.W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **65**, 571 (1990); F. Schmidt-Kaler *et al.*, Phys. Rev. A **51**, 2789 (1995).
- [22] A. Huber, B. Gross, M. Weitz, and T.W. Hänsch, Phys. Rev. A **59**, 1844 (1999).
- [23] T.C. Killian *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 3807 (1998).
- [24] L. Essen *et al.*, Nature (London) **229**, 110 (1971); J.W. Heberle, H.A. Reich, and P. Kusch, Phys. Rev. **101**, 612 (1956).
- [25] D. Taqqu *et al.*, Hyperfine Interact. **119**, 311 (1999).
- [26] D. Kleppner (private communication).

Measurement of the Hydrogen 1S-2S 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. Clairon¹

¹BNM-LPTF, Observatoire de Paris, 61 Avenue de l'Observatoire, 75014 Paris, France

²Laboratoire Kastler Brossel, ENS, 24 rue Lhomond, 75005 Paris, France

(Received 6 March 2000)

We report on an absolute frequency measurement of the hydrogen 1S-2S two-photon transition in a cold atomic beam with an accuracy of 1.8 parts in 10^{14} . Our experimental result of 2466061413187103(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 1S-2S 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 1S-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 1S-2S 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 1S-2S transition frequency, already the most precisely measured optical transition frequency, by an order of magnitude [5].

The hydrogen 1S-2S 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-lens 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 1S-2S 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 2S-*n*S and 2S-*n*D two-photon transitions [3,10]. For an accurate determination of the hydrogen 1S-2S 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 1S-2S 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 1S-2S 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 1S ground state to the excited 2S metastable state. After a distance $d \approx 13$ cm the atoms enter the detection region. A small electric field

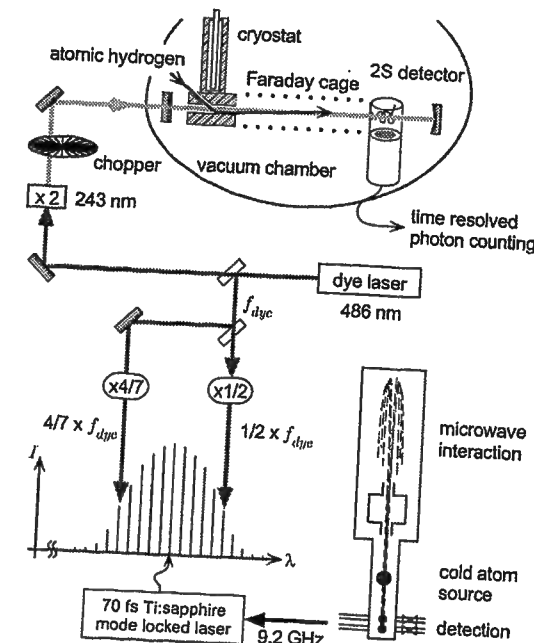


FIG. 1. Experimental setup for comparison of the hydrogen 1S-2S transition frequency with an atomic cesium fountain clock.

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_{1S-2S}^{hf} 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 $f_{dye} \approx 616.5$ 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 $4/7 f_{dye}$ and $1/2 f_{dye}$ as described below. The frequency gap $4/7 f_{dye} - 1/2 f_{dye} = 1/14 f_{dye} \approx 44$ THz is sufficiently small that it can be measured with the wide comb of regularly spaced laser

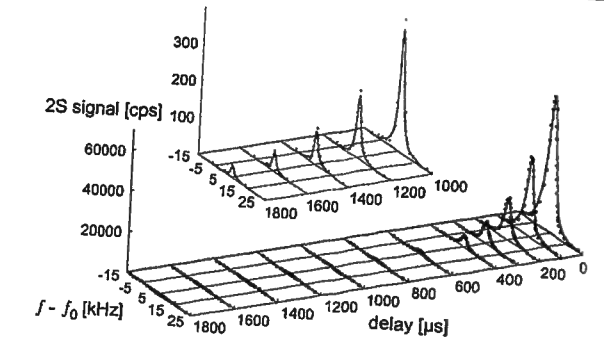


FIG. 2. Time-resolved Doppler-free 1S-2S two-photon spectrum in atomic hydrogen. The recorded 2S count rate is plotted versus delay time and absolute frequency, where $f_0 = 2466061102470$ kHz.

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 $1/2 f_{dye}$ 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 ($2 \times 1/2 f_{dye}$) to it. Two laser frequencies $1/7 f_{dye}$ and $4/7 f_{dye}$ 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: $1/7 f_{dye} : 4/7 f_{dye} : f_{dye}$. At the same time $4/7 f_{dye}$ is phase locked to the fourth harmonic of $1/7 f_{dye}$. Because our 3.39 μ m He-Ne laser could not be tuned far enough to reach $1/7 f_{dye}$ 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 $1.8 \times 10^{-13} (\text{Hz } \tau)^{-1/2}$, 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 $v^{\nu_{\text{exp}}}$. With the two additional fit parameters v_s and ν_{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

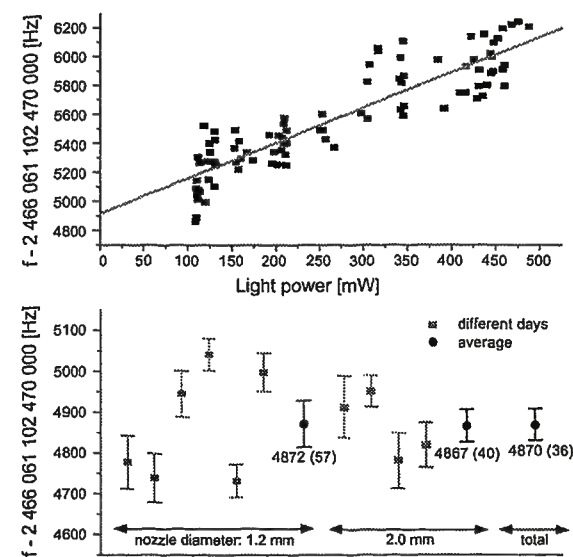


FIG. 3. Experimental results for the 1S-2S absolute frequency. The upper graph shows the results for all spectra recorded in a typical measurement day, where the absolute frequency, derived from our line-shape model, is plotted versus the excitation light field power. The graph below shows the complete 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 $f_{1S-2S}^{\text{hf}} = 2\,466\,061\,102\,474\,870$ 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 $\Delta\nu_{\text{dc-Stark}} = 3600E^2$ 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-2S} of the hyperfine centroid is obtained by adding a correction $f_{\text{hf}} = 310\,712\,233(13)$ Hz to account for the well known hyperfine splitting of the 1S and 2S levels [20] to the measured transition frequency f_{1S-2S}^{hf} . Taking the pressure shift into account the obtained result is

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

where the quoted uncertainty was obtained by quadratically adding the uncertainties of the frequencies f_{1S-2S}^{hf} 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- n S or 2S- n D ($n = 4, 8, \dots$) two-photon transitions, are measured more accurately. An interesting option for a comparison with 1S-2S could be the direct excitation of a 1S- n S 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).

Literaturverzeichnis

- [And92] 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).
- [Bak76] Ye. Baklanov, V. P. Chebotayev and B. Ya Dubetsky, Appl. Phys. **11**, 201 (1976).
- [Bar70] R. Barbieri, J. A. Mignaco und E. Remiddi, Nuovo Cim. Lett. **3**, 588 (1970);
B. E. Lautrup, A. Peterman und E. de Rafael, Phys. Lett. B **31**, 577 (1994).
- [Bas77] F. Bassani, J. J. Forney und A. Quattropiani, Phys. Rev. Lett. **39**, 1070 (1977).
- [Bea86] R. G. Beausoleil, Dissertation, Stanford-University USA (1986).
- [Ber62] K. Berkling, R. Helbing, K. Kramer, H. Pauly, Ch. Schlier und P. Toschek, Zeitschrift für Physik **166**, 406 (1962).
- [Ber95] D. J. Berkeland, E. A. Hinds und M. G. Boshier, Phys. Rev. Lett. **75**, 2470 (1995).
- [Ber99] J. E. Bernard, A. A. Madej, L. Marmet, B. G. Whitford, K. J. Siemsen und S. Cundy, Phys. Rev. Lett. **82**, 3228 (1999).
- [Bet77] H. A. Bethe und E. E. Salpeter, *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms*, Plenum, New York (1977).
- [Bor97] Ch. J. Bordé, private Mitteilung.
- [Bos89] M. G. Boshier, P. E. G. Baird, C. J. Foot, E. A. Hinds, M. D. Plimmer, D. N. Stacey, J. B. Swan, D. A. Tate, D. M. Warrington und G. K. Woodgate, Phys. Rev. A **40**, 6169 (1989).
- [Cag73] B. Cagnac, G. Grynberg und F. Biraben, Jour. Phys. (Paris) **34**, 845 (1973).

- [Cla95] A. Clairon, S. Ghezali, G. Santarelli, Ph. Laurent, S. N. Lea, M. Bahoura, E. Simon, S. Weyers und K. Szymaniec, *Proceedings of the Fifth Symposium on Frequency Standards and Metrology*, Herausgeber J. Bergquist, World Scientific, Singapore (1996).
- [Cla95a] A. Clairon, P. Laurent, G. Santarelli, S. Ghezali, S. N. Lea und M. Bahoura, *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **44**, 128 (1995).
- [Coh77] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu und F. Laloë, *Quantum Mechanics*, Bd. I, Wiley, New York, London, Sydney, Toronto (1977).
- [Dre84] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley und H. Ward, *Appl. Phys.* **33**, 97 (1984).
- [Eid95] M. Eides und V. Shelyuto, *Phys. Rev. A* **52**, 954 (1995).
- [Eik99] K. S. E. Eikema, J. Walz und T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 3828 (1999).
- [Ess71] L. Essen, R. W. Donaldson, M. J. Bangham und E. G. Hope, *Nature* **229**, 110 (1971).
- [Far81] J. W. Farley und W. H. Wing, *Phys. Rev. A* **23**, 2397 (1981).
- [For85] P. Forman, *Proc. IEEE* **73**, 1181, (1985).
- [Fri97] J. L. Friar und G. L. Payne, *Phys. Rev. A* **56**, 5137 (1997).
- [Gar90] J. C. Garreau, M. Allegrini, L. Julien und F. Biraben, *J. Phys. France* **51**, 2263, 2275, 2293 (1990).
- [Gro98] B. Gross, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München 1998.
- [Gro98a] B. Gross, A. Huber, M. Niering, M. Weitz und T. W. Hänsch, *Europhys. Lett.* **44**, 186 (1998).
- [Hae75] T. W. Hänsch, S. A. Lee, R. Wallenstein und C. Wiemann, *Phys. Rev. Lett.* **34**, 307 (1975).
- [Hae77] T. W. Hänsch, in *Laser Spectroscopy III*, J. L. Hall und J. L. Carlsten (Herausgeber), Springer-Verlag, Berlin 1977, 149-153.
- [Hae80] T. W. Hänsch und B. Couillaud, *Opt. Comm.* **35**, 441 (1980).
- [Han63] L. Hand, D. I. Miller und R. Wilson, *Rev. Mod. Phys.* **35**, 335 (1963).
- [Heb56] J. W. Heberle, H. A. Reich und P. Kusch, *Phys. Rev.* **101**, 612 (1956).
- [Hub97] A. Huber, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München 1997.

- [Hub98] A. Huber, Th. Udem, B. Gross, J. Reichert, M. Kourogi, M. Weitz und T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 468 (1998).
- [Hub98a] A. Huber, B. Gross, M. Weitz und T. W. Hänsch, *Phys. Rev. A* **58**, R2631 (1998).
- [Hub98b] A. Huber, B. Gross, M. Weitz und T. W. Hänsch, *Phys. Rev. A* **59**, 1844 (1998).
- [Kal90] R. Kallenbach, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München 1990.
- [Kar93] S. G. Karshenboim, *LETP* **76**, 541 (1993).
- [Kar95] S. G. Karshenboim, *J. Phys. B* **28**, L77 (1995).
- [Kar98] S. G. Karshenboim, MPQ-Bericht 230, Max-Planck-Institut für Quantenoptik (1998).
- [Kas89] M. Kasevich, E. Riis, S. Chu und R. De Voe, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 612 (1989).
- [Joh85] W. R. Johnson und G. Soff, *At. Data Nucl. Data Tables* **33**, 405 (1985).
- [Kil98] Th. C. Killian, D. G. Fried, L. Willman, D. Landhuis, S. C. Moss, Th. J. Greytak und D. Kleppner, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3807 (1998).
- [Kog66] H. Kogelnik und T. Li, *Appl. Opt.* **5**, 1550 (1966).
- [Lam47] W. E. Lamb und R. C. Retherford, *Phys. Rev.* **72**, 241 (1947).
- [Lei95] D. Leibfried, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München 1995.
- [Lem00] P. Lemonde et al., in *Frequency Measurement and Control*, A. N. Luiten (Herausgeber), Springer-Verlag, Berlin 2000.
- [Mal98] S. Mallampalli und J. Sapirstein, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 5297 (1998).
- [Mar97] L. Marmet, A. Mardej, K. Siemsen, J. Bernard und B. Whitford, *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **46**, 169 (1997).
- [McI89] D. H. McIntyre, R. G. Beausoleil, C. J. Foot, E. A. Hildum, B. Coulliaud und T. W. Hänsch, *Phys. Rev. A* **39**, 4591 (1989).
- [McI90] D. H. McIntyre, W. M. Fairbank, S. A. Lee, T. W. Hänsch und E. Riis, *Phys. Rev. A* **41**, 4632 (1990).
- [Mel99] Melles Griot, private Mitteilung.
- [Mer96] P. Mergell, U. G. Meissner und D. Drechsel, *Nucl. Phys. A* **596**, 367 (1996).

- [Mey89] P. Meystre und M. Sargent, *Elements of Quantum Optics*, Springer, Berlin, New York (1989).
- [Nie00] 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).
- [Num89] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky und W. T. Vetterling, *Numerical Recipes in Pascal*, Cambridge University Press, Cambridge, New York, Melbourne (1989).
- [Pac93] K. Pachucki, Phys. Rev. A **48**, 120 (1993).
- [Pac94] K. Pachucki, Phys. Rev. Lett. **72**, 3154 (1994).
- [Pac95] K. Pachucki und H. Grotch, Phys. Rev. A **51**, 1854 (1995).
- [Pac95a] K. Pachucki, Phys. Rev. A **52**, 1079 (1995).
- [Pac96] K. Pachucki, D. Leibfried, M. Weitz, A. Huber, W. König und T. W. Hänsch, J. Phys. B **29**, 177 (1996).
- [Pre95] M. Prevedelli, T. Freearge und T. W. Hänsch, Appl. Phys. B **60**, 241 (1995).
- [Rab38] I. I. Rabi, J. R. Zacharias, S. Millman und P. Kusch, Phys. Rev. **53**, 318 (1938).
- [Ram58] N. F. Ramsey, Phys. Rev. **106**, 822 (1958).
- [Ram89] N. F. Ramsey, in *Nobel Lectures in Physics 1981-1990*, T. Frängsmyr und G. Ekspong (Herausgeber), World Scientific, Singapore 1993, 553-572.
- [Ram90] N. F. Ramsey, Rev. Mod. Phys. **62**, 541 (1990).
- [Rei99] J. Reichert, R. Holzwarth, Th. Udem und T. W. Hänsch, Opt. Comm. **172**, 59 (1999).
- [Rei00] J. Reichert, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München 2000.
- [Rei00a] J. Reichert, M. Niering, R. Holzwarth, M. Weitz, Th. Udem und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **84**, 3232 (2000).
- [Rie91] F. Riehle, Th. Kisters, A. Witte, J. Helmcke und Ch. J. Bordé, Phys. Rev. Lett. **67**, 177 (1991).
- [Rie99] F. Riehle, H. Schnatz, B. Lipphardt, G. Zinner, T. Trebst und J. Helmcke, IEEE Trans. Instrum. Meas. **48**, 613 (1999).
- [Ros99] R. Rosenfeld, nucl-th/9912031 (1999).

- [Sal52] E. E. Salpeter, Phys. Rev. **87**, 328 (1952).
- [San99] 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).
- [Sap90] J. R. Sapirstein und D. R. Yennie, in *Quantum Electrodynamics*, T. Kinoshita (Herausgeber), World Scientific, Singapur (1990).
- [Sch92] F. Schmidt-Kaler, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München 1992.
- [Sch95] F. Schmidt-Kaler, D. Leibfried, S. Seel, C. Zimmermann, W. König, M. Weitz und T. W. Hänsch, Phys. Rev. A **51**, 2789 (1995).
- [Sco88] G. Scoles, D. Bassi, U. Buck und D. Laine, *Atomic and Molecular Beam Methods*, Band 1, Oxford University Press, New York, (1988).
- [Sim80] G. G. Simon, C. Schmidt, F. Borkowski und V. H. Walther, Nucl. Phys. A **333**, 381, (1980).
- [Sob92] I. I. Sobelman, *Atomic spectra and radiative transitions*, 2. Aufl., Springer, Berlin, Heidelberg, New York (1992).
- [Tee77] R. Teets, J. Eckstein und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **38**, 760 (1977).
- [Tel90] H. R. Telle, D. Meschede und T. W. Hänsch, Opt. Lett. **15**, 532 (1990).
- [Ude97] Th. Udem, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München 1997.
- [Ude97a] Th. Udem, A. Huber, B. Gross, J. Reichert, M. Prevedelli, M. Weitz und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **79**, 2646 (1997).
- [Ulr99] A. Ulrich, C. Nießl, J. Wiesner, H. Tomizawa, D. E. Murnick und M. Salvermoser, J. Appl. Phys. **86**, 3525 (1999).
- [Vas70] L. S. Vasilenko, V. P. Chebotayev und A. V. Shishaev, JETP Lett. **12**, 113 (1970).
- [Wei92] M. Weitz, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München 1992.
- [Wei92a] M. Weitz, F. Schmidt-Kaler und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **68**, 1120 (1992).
- [Wei94] M. Weitz, F. Schmidt-Kaler, A. Huber, D. Leibfried und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. **72**, 328 (1994).
- [Wei95] 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).

- [Wie97] J. Wieser, D. E. Murnick, A. Ulrich, H. A. Huggins, A. Liddle und W. L. Brown, *Rev. Sci. Instrum.* **68**, 1360 (1997).
- [Wie98] J. Wieser, M. Salvermoser, L. H. Shaw, A. Ulrich, D. E. Murnick und H. Dahi, *J. Phys. B.* **31**, 4589 (1998).
- [Won94] Ch. W. Wong, *Int. J. Mod. Phys.* **3**, 821 (1994).
- [You99] B. C. Young, F. C. Cruz, W. M. Itano und J. C. Bergquist, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3799 (1999).
- [Zim90] C. Zimmermann, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München 1990.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich zuallererst bei Herrn Professor Theodor Hänsch bedanken. Nicht nur für die uneingeschränkte Unterstützung und die Möglichkeit diese Arbeit unter hervorragenden Bedingungen anfertigen zu dürfen, sondern vor allem für seine offene und herzliche Art mit der er mir immer begegnet ist und all meine Probleme ernst und fruchtbar diskutiert hat.

Aber auch bei Martin Weitz möchte ich mich für die lange und unkomplizierte Zusammenarbeit bedanken. Es gibt nicht viele, die so hilfsbereit sind und alles im wahrsten Sinne des Wortes stehen und liegen lassen, um sich den Problemen anderer mit vollem Einsatz zu widmen. Es war für mich immer wieder aufs neue faszinierend auf jede Frage klärende und einfach verständliche Antworten zu erhalten.

Mein besonderer Dank gilt all meinen Vorgängern für ihr „Erbe“, das sie in all den Jahren mit großer Gewissenhaftigkeit und Sorgfalt behandelt haben. Vor allem danken möchte ich dabei meinen direkten Vorgängern. Ohne den unbegrenzten Einsatz, mit dem Andreas Huber einen unersetzbaren Programmcode entwickelt hat, wären die darauf aufbauenden Ergebnisse dieser Arbeit undenkbar gewesen. Meinen Dank könnte am besten seine Doktorarbeit ausdrücken, deren abgegriffener Zustand der beste Zeuge für die vielen Male ist, an denen sie mir mit Rat zur Seite stand. Bruno Gross danke ich für die lange und unvergeßliche Zeit, die wir gemeinsam an dem Experiment verbracht haben, und für seine Geduld und Ausdauer, mit der er mir die letzten Geheimnisse vermittelt hat. Mit Marc Fischer ist ein Nachfolger gefunden, mit dem es auch in Zukunft Spaß machen wird sich um Wasserstoff zu „kümmern“ und bei dem ich mich für die gute Atmosphäre in den letzten Monaten meiner Arbeit bedanken möchte.

Ohne die hervorragende und unkomplizierte Zusammenarbeit mit der „Frequenzkette“, als Team mit Ronald Holzwarth, Jörg Reichert und Thomas Udem, wären die Ergebnisse dieser Arbeit undenkbar gewesen. Die vielen Stunden des gemeinsamen Messens werden mir immer unvergessen bleiben. Danke!

Aber auch bei dem unteren „Ende“ der Kette, den „Franzosen“ Pierre Lemonde, Giorgio Santarelli und Michele Abgrall möchte ich mich für die einmalige Zusammenarbeit während unserer gemeinsamen Messungen bedanken.

Den „Fremden“ im Wasserstofflabor, Michael Mei, Sile Nic Chormaic und Schani Tost danke ich für das gute Klima und die stets freundschaftliche Atmosphäre. Vor allem Michael Mei ein Danke für viele aufmunternde Gespräche und Diskussionen, ohne die ich die lange Phase des alleinigen Bestreitens des Experiments sicher nicht so gut überstanden hätte.

Bei dem „Antipart“, Kjeld S. E. Eikema, Jochen Walz und Anette Pahl möchte ich mich trotz der „natürlichen Spannung“ zwischen unseren Teilchen für die stets gute und nette Zusammenarbeit bedanken. Es war immer wieder ein gutes Gefühl auf die meisten technischen und physikalischen Probleme eine Lösung aus deren schier unend-

lich erscheinenden Trickkiste als Sicherheit zu haben.

Danken möchte ich auch Karsten Sändig und Rainer Scheunemann für die vielen Gespräche und Diskussionen, die mir bei der Lösung etlicher Probleme geholfen und mir immer wieder Mut gegeben haben.

Aber auch alle anderen, die ich hier nicht aufgeführt habe, waren bei dem Erfolg mitbeteiligt und ich möchte mich bei ihnen für das super Klima und die offene Atmosphäre bedanken.

Den Technikern Wolfgang Simon und Charlie Linner danke ich für die stete Hilfsbereitschaft bei der Lösung technischer Probleme, aber auch für die Möglichkeit immer wieder eine kleine Fluchtmöglichkeit zu finden, wenn die Wissenschaft zu viel wurde. Auch bei Helmut Brückner bedanke ich mich für die vielen großen und kleinen Dinge, die auf der elektronischen Seite für das Gelingen der Experimente nötig waren. Unseren Sekretärinnen Rosemarie Lechner und Gabriele Gschwendtner danke ich für die Lösung aller organisatorischer Probleme.

Ganz herzlich bedanken möchte ich mich nicht zuletzt bei meinen Eltern für alles, was sie für mich getan haben. Meiner lieben Rita danke ich von ganzem Herzen für ihre liebevolle Unterstützung und die schier endlose Energie, die sie mir geschenkt hat. Ohne sie wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen.



The first part of the paper discusses the importance of maintaining accurate records of all transactions. This is essential for ensuring the integrity of the financial system and for providing a clear audit trail. The second part of the paper examines the various methods used to collect and analyze data, highlighting the strengths and weaknesses of each approach. The third part of the paper focuses on the development of effective communication strategies, which are crucial for ensuring that all stakeholders are kept informed and engaged. Finally, the paper concludes with a series of recommendations for improving the overall performance of the organization, based on the findings of the research.