# Hochauflösende Spektroskopie gespeicherter Indium-Ionen

Dissertation der Fakultät für Physik der Ludwig-Maximilians-Universität München

> vorgelegt von Thomas Becker aus München

München, den 23. Oktober 2002

- 1. Gutachter: Prof. Dr. Herbert Walther
- 2. Gutachter: Prof. Dr. Dietrich Habs

Tag der mündlichen Prüfung: 19. Juli 2002

#### Zusammenfassung

Die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse betreffen die Eignung eines einzelnen positiven Indium-Ions als Referenz für ein optisches Frequenznormal. Nach einer grundsätzlichen Diskussion der Vorteile eines Frequenznormals auf der Basis eines einzelnen gekühlten Ions im ersten Abschnitt werden im zweiten Abschnitt die Prinzipien des Speicherns geladener Teilchen rekapituliert. Dabei wird auch auf die Besonderheiten der in diesem Experiment verwendeten miniaturisierten Ionenfallen eingegangen.

Im dritten Abschnitt werden die Ergebnisse zur Seitenbandkühlung einzelner Indium-Ionen sowie von Zwei-Ionen-Coulomb-Kristallen vorgestellt. Diese Ergebnisse sind einmal von fundamentalem Interesse, da das Schema der Seitenbandkühlung im Indium-Ion in einzigartig direkter Weise implementiert werden kann. Daneben sind die erreichbaren kältesten Temperaturen auch im Hinblick auf das angestrebte Frequenznormal interessant, da zahlreiche systematische Linienverschiebungen wie etwa der Doppler-Effekt zweiter Ordnung mit der Temperatur skalieren. Die Amplitude der Mikrobewegung des Ions in der Falle konnte dabei auf Werte von weniger als  $\lambda/20$  reduziert werden. Ebenso wurde gezeigt, dass sich sowohl ein einzelnes Ion, als auch ein Zwei-Ionen-Kristall praktisch in den Schwingungsgrundzustand des Fallenpotentials abkühlen lassen.

Im Rahmen der höchstauflösenden Spektroskopie, die im vierten Abschnitt vorgestellt wird, konnte zunächst ein Verfahren etabliert werden, mit dessen Hilfe der schmale  ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{0}$  Referenzübergang schnell gefunden werden kann. Bei der Spektroskopie dieses Überganges wurde eine Auflösung von etwa  $1 \cdot 10^{-13}$  erzielt. Ebenso wurde die Zeemanverschiebung der  $m_{F} = 9/2 \rightarrow m_{F} = 7/2$  Komponente des Referenzüberganges, die den wichtigsten Beitrag zu den systematischen Unsicherheiten des Referenzüberganges liefern dürfte, zu  $(-636 \pm 27)$  Hz/G bestimmt.

Im fünften Abschnitt werden noch zwei Messungen der Absolutfrequenz des Indium-Referenzüberganges vorgestellt. In beiden Messungen war die erreichte Genauigkeit durch die verwendeten Sekundärstandards bestimmt; in der zweiten Messung konnte eine Genauigkeit von  $1,8 \cdot 10^{-13}$  erreicht werden.

Insgesamt wurde gezeigt, dass die entscheidenden Voraussetzungen für die Realisierung eines Indium-Frequenznormals, nämlich eine stabile Speicherung und Kühlung, sowie eine eindeutige Detektion der Quantensprünge möglich ist. Es kann davon ausgegangen werden, dass das hier diskutierte System als Frequenznormal Genauigkeiten im Bereich 10<sup>-18</sup> ermöglicht; diese Tatsache macht weitergehende Untersuchungen zu einem spannenden Arbeitsgebiet.

# Inhaltsverzeichnis

1	Gespeicherte Ionen als optische Frequenznormale						
	1.1	1.1 Frequenznormale und Uhren					
	1.2	Stabili	ität und Genauigkeit von Frequenznormalen	3			
	1.3	Realis	erung eines Frequenznormals mit Hilfe eines gespeicherten Ions	7			
		1.3.1	Das Indium-Ion als Kandidat für ein optisches Frequenzhormal .	8			
2	Spe	peicherung geladener Teilchen					
	2.1	.1 Speicherung in Ionenfallen		11			
	2.2	Speic	nerung in miniaturisierten Fallen	14			
	2.3	Verwe	andete Fallentypen	17			
		2.3.1	Zusatzliche Kompensationselektroden	18			
3	Laserkühlung gespeicherter Indium-Ionen						
	3.1	Atom	physik des Indium-Kühlüberganges	20			
	3.2	Kühlla	asersystem	21			
	3.3	Komp	ensation der Mikrobewegung	23			
	3.4	Seiter	ıbandkühlung gespeicherter Indium-Ionen	26			
		3.4.1	Temperaturbestimmung seitenbandgekühlter Ionen	28			
		3.4.2	Kühlgrenzen der Seitenbandkühlung	30			
		3.4.3	Bichromatisches Kühlen einzelner Indium-Ionen	31			
		3.4.4	Bichromatisches Kühlen von Coulomb-Kristallen	34			
4	Höchstauflösende Spektroskopie gespeicherter Indium-Ionen						
	4.1	Atomphysik des Indium-Referenzüberganges					
	4.2	Aufna	hme höchstauflösender Spektren des Referenzüberganges	41			
	4.3	Frequ	enzstabiler Abtastlaser	43			
	4.4	Auffin	Iden des schmalen Referenzüberganges	46			
	4.5	Höchs	stauflösende Spektroskopie des Referenzüberganges	51			
		4.5.1	Allan-Varianz des Indium-Frequenznormals	54			
	4.6	Syster	matische Verschiebungen des In <sup>+</sup> Referenzüberganges	56			
		4.6.1	Transversale Magnetfeldkompensation	56			
		4.6.2	Eichung der Spulen in Laserstrahlrichtung	57			
		4.6.3	Zeemanverschiebung des Referenzüberganges	59			
		4.6.4	Weitere systematische Linienverschiebungen	61			
5	Absolutfrequenzmessung des Indium-Referenzüberganges						
	5.1	Absolutfrequenzmessung mit Hilfe einer Iodzelle					
		5.1.1	Messaufbau	65			
		5.1.2	Diskussion der Ergebnisse	67			
	5.2	Frequ	enzmessung mit einem modengekoppelten Kurzpulslaser	70			
		5.2.1	Messaufbau	70			

	5.2.2	Auswertung und Diskussion der Ergebnisse	73			
6	Ausblick		78			
Lit	Literaturverzeichnis					

## 1 Gespeicherte Ionen als optische Frequenznormale

### 1.1 Frequenznormale und Uhren

Der Begriff einer Uhr bedarf keiner Definition, jedes Zeitmessgerät wird generell als Uhr bezeichnet, dies ist auch in dieser Arbeit nicht anders. Betrachtet man die technische Realisierung einer Uhr genauer, so lassen sich drei Komponenten unterscheiden: ein Frequenznormal, das ein zeitlich periodisches Signal erzeugt, ein Uhrwerk, das dieses periodische Signal in definierte Zeiteinheiten - üblicherweise eine Sekunde - umwandelt, sowie eine Anzeige. Bei einer mechanischen Uhr übernimmt das periodisch schwingende Pendel die Aufgabe des Frequenznormals, ein mechanisches Uhrwerk wandelt dessen Schwingungen in Sekundentakte um und treibt die Zeiger an. Es ist klar, dass die Genauigkeit einer Uhr im Wesentlichen durch die Eigenschaften des Frequenznormals bestimmt ist, und so steht die Entwicklung genauerer Frequenznormale im Zentrum der Entwicklung besserer Uhren.

Bei modernen Atomuhren sind nun nicht mehr die mechanischen Ausschläge eines Pendels, sondern die Schwingungen einer elektromagnetischen Welle das Ausgangssignal des Frequenznormals. Um diese Frequenz zeitlich konstant zu halten, wird die Wechselwirkung zwischen elektromagnetischen Wellen und Atomen ausgenutzt. Entspricht die Frequenz  $\nu$  der Welle nach der Beziehung  $E = h\nu$  gerade der Energiedifferenz zweier diskreter Energieniveaus eines Atoms, so ist die Anregungswahrscheinlichkeit des Atoms in das energetisch höhere Niveau maximal. Da die Energiedifferenz zwischen den Niveaus eines Atoms bei Abwesenheit äußerer Störeinflüsse nur von fundamentalen Kopplungskonstanten bestimmt wird und demnach als konstant angesehen werden kann, kann auch die Frequenz einer elektromagnetischen Welle als konstant betrachtet werden, wenn diese durch einen Rückkoppelungsmechanismus in Resonanz mit dem atomaren Übergang gehalten wird. In diesem Zusammenhang ist es interessant, dass neue Realisierungen atomarer Frequenzstandards in Genauigkeitsbereiche vorstoßen, in denen durch einen Vergleich verschiedenartiger Frequenznormale die obige Annahme der zeitlichen Konstanz fundamentaler Naturkonstanten einer experimentellen Prüfung unterzogen werden kann [1, 2, 3]. Bei einem Vergleich hochstabiler Cäsium- und Rubidium-Uhren konnte dabei eine obere Grenze für die Veränderung der Feinstrukturkonstanten  $\alpha$  von  $\dot{\alpha}/\alpha < 8 \cdot 10^{-15}$ /Jahr angegeben werden [4].

Die Bedeutung hinreichend genauer Uhren in unserem Alltagsleben muss an dieser Stelle nicht weiter diskutiert werden. Da moderne Atomuhren relative Genauigkeiten von  $10^{-15}$  und besser erreichen, was einer Abweichung von einer Sekunde in 10 Millionen Jahren entspricht, ist die Frage erlaubt, ob eine weitere Steigerung dieser Genauigkeit überhaupt sinnvoll ist. Hier sind zunächst Problemstellungen der Grundlagenforschung zu nennen, die von genaueren Frequenznormalen profitieren können. So ist es generell immer von Interesse, die Gültigkeit einer physikalischen Theorie mit immer größerer Präzision zu testen; sei es, um diese zu bestätigen oder um Grenzen ihres Gültigkeitsbereiches aufzuzeigen. Da Frequenzen die derzeit am genauesten messbaren physikalischen Größen sind, spielen Frequenznormale in diesem Bemühen eine entscheidende Rolle. So konnte bereits 1972 durch den Vergleich einer beschleunigten und einer ruhenden Atomuhr das berühmte Zwillingsparadoxon der Relativitätstheorie Einsteins eindrucksvoll bestätigt werden [5]. Durch die Verwendung von Wasserstoffmasern als hochstabile Atomuhren konnten auch die Gravitations-Rotverschiebung [6] und das Äquivalenzprinzip der allgemeinen Relativitätstheorie [7] nachgewiesen werden. Als weiteres Beispiel sei der Vergleich der Frequenz des  $1S \rightarrow 2S$  Überganges im Wasserstoffatom mit einer Cäsium-Fontänen-Uhr, die derzeit die genaueste Realisierung der SI-Basiseinheit Sekunde darstellt, genannt. Da das Wasserstoffatom als einfachstes atomares System auch theoretisch sehr gut beschrieben werden kann, ist so eine experimentelle Überprüfung der Quantenelektrodynamik möglich. Bisher konnte bis auf eine Genauigkeit von  $10^{-14}$  eine Übereinstimmung zwischen Experiment und theoretischen Rechnungen erzielt werden, wodurch die Quantenelektrodynamik als die derzeit am genauesten überprüfte physikalische Theorie gelten kann [8]. Die Suche nach möglichen zeitlichen Veränderungen von Naturkonstanten wurde als weitere Anwendungsmöglichkeit bereits erwähnt. Eine Übersicht verschiedener Anwendungen hochstabiler Frequenznormale findet sich in [9].

Daneben gibt es jedoch auch technische Anwendungen, die auf der Präzision atomarer Frequenzstandards beruhen und daher von deren Verbesserung profitieren würden. Als Beispiel sei hierfür das satellitengestützte Navigationssystem GPS ("global positioning system") genannt [10, 11]. Wie schon sein erdgestützter Vorgänger Loran C basiert dieses System darauf, durch die Ermittlung der Laufzeit eines Funksignals die Entfernung zwischen einem Sender - in diesem Fall ein Satellit - und einem Empfänger zu messen. Um nun drei Koordinaten eines Empfängers (geographische Länge, Breite und Höhe) zu ermitteln, müssen die Abstände zu mindestens drei Satelliten gleichzeitig bestimmt werden. Dazu erzeugen Sender und Empfänger zunächst zeitgleich ein mit einer identischen Bitfolge moduliertes Signal einer festen Trägerfrequenz. Die Präzision, mit der diese Zeitgleichheit erreicht werden kann bestimmt letztlich die Genauigkeit der Ortsmessung. Wird nun im Empfänger das Produkt aus dem lokal erzeugten und dem zeitverzögerten Satellitensignal gebildet, so kann aus der Autokorrelationsfunktion dieses Produktsignals die Laufzeit des gesendeten Signals und damit der Abstand zum Satelliten bestimmt werden. Dispersive Einflüsse der Ionosphäre auf das Funksignal können vermieden werden, indem die Abstandsmessung mit zwei verschiedenen Trägerfrequenzen durchgeführt wird. Die Position der Satelliten wird dabei einerseits von erdgestützten Sendern ständig überwacht, andererseits werden Störeinflüsse auf die Satellitenbahn möglichst genau modelliert und in die aktuellen Koordinaten mit eingerechnet. Der Strahlungsdruck der Sonne stellt dabei außer verschiedenen Gravitationseffekten die größte Störung der Bahn dar. Ebenso werden die an Bord der Satelliten befindlichen Atomuhren von diesen Kontrollstationen aus überwacht. Da der Empfänger nur mit einer einfachen Quarz-Uhr ausgestattet ist, kann der Gangunterschied dieser Uhr zu den genaueren Atomuhren auf den Satelliten zu einer Ungenauigkeit in der Positionsbestimmung führen. Nimmt man an, dass zwischen der Uhr des Empfängers und der des Senders lediglich eine lineare Drift vorliegt, und die verschiedenen Satellitenuhren perfekt synchronisiert sind, so kann diese Ungenauigkeit durch eine Positionsbestimmung relativ zu einem vierten Satelliten ausgeglichen werden. Insgesamt stellt diese Technik, die erst in den letzten Jahren einen breiten Anwenderkreis gefunden hat, ein gutes Beispiel für die Anwendung von Techniken dar, die noch bis vor kurzem nur in der Grundlagenforschung von Interesse waren.

#### 1.2 Stabilität und Genauigkeit von Frequenznormalen

Um die Qualität eines Frequenznormals unabhängig von dessen Bauart zu quantifizieren, werden die Begriffe der Stabilität und der Genauigkeit verwendet. Die Stabilität ist dabei ein Maβ für die Fluktuationen der Ausgangsfrequenz innerhalb eines gegebenen Zeitintervalls. Die Fehlergrenzen, innerhalb derer der Absolutwert dieser Ausgangsfrequenz angegeben werden kann, bestimmen die Genauigkeit des Frequenznormals. Die Genauigkeit eines Standards wird üblicherweise durch systematische Effekte, wie etwa die Magnetfeldverschiebung eines atomaren Überganges begrenzt; die Stabilität wird dagegen auf kurzen Zeitskalen durch statistisches Rauschen begrenzt. In hochstabilen modernen Frequenzstandards sind diese Rauschquellen quantenmechanischen Ursprungs. Die Stabilität eines Frequenznormals lässt sich durch längere Mittelungszeiten solange verbessern, bis systematische Effekte zu einer unkontrollierten Drift der Ausgangsfrequenz führen.

Die Messung der Stabilität eines Frequenzstandards erfordert einen Vergleich seiner Ausgangsfrequenz mit der eines weiteren Standards über einen Zeitraum  $\tau$ . Basierend auf der Methode des Frequenzvergleichs ist die sogenannte Allan-Varianz  $\sigma_y(\tau)$  als quantitatives Ma $\beta$  für die Stabilität eines Standards eingeführt worden. Bezeichnet man die durch zwei Vergleichsmessungen der Zeitdauer  $\tau$  gewonnenen relativen Abweichungen der Ausgangsfrequenz  $\Delta \nu / \nu$  als  $\bar{y}_1$  bzw.  $\bar{y}_2$ , so bezeichnet die Allan-Varianz Varianz gerade deren quadratisches Mittel [12]. In Formeln ausgedrückt hei $\beta$ t dies:

$$\sigma_y(\tau) = \frac{1}{2} \langle (\bar{y}_1 - \bar{y}_2)^2 \rangle.$$
 (1)

Eine Diskussion der Auswirkungen verschiedenster Rauschquellen auf die Allan-Varianz findet sich in [13].

Eine konkrete Formel für die Stabilität eines Frequenznormals, das auf der Stabilisierung der Frequenz einer elektromagnetischen Welle auf einen atomaren Übergang beruht, lässt sich mit einigen einfachen Überlegungen ableiten. Abbildung 1 zeigt die Anregungswahrscheinlichkeit eines atomaren Überganges in Abhängigkeit der Frequenz der eingestrahlten Welle. Die wahre Form der Resonanz wird hier durch eine Dreiecksfunktion angenähert, um einige einfache geometrische Überlegungen anstellen zu können. Zur Stabilisierung der Strahlungsfrequenz  $\nu$  auf das Zentrum der Reso-



nanzlinie  $\nu_0$  muss ein zu der Differenz ( $\nu - \nu_0$ ) proportionales Fehlersignal gewonnen werden. Dazu wird die eingestrahlte Frequenz  $\nu$  einmal um die halbe Linienbreite der Resonanz zu höheren Frequenzen und einmal um die halbe Linienbreite zu niedrigeren Frequenzen verschoben; an beiden Positionen wird dann die Zahl der angeregten Atome  $n_-$  bzw.  $n_+$  gemessen. Ist die Breite der Resonanz durch die Dauer des Anregungspulses Fourier-limitiert, FWHM  $\approx 1/t_{Anr}$ , so ergibt sich aus der Betrachtung ähnlicher Dreiecke:

$$\nu - \nu_0 = \frac{n_- - n_+}{2n_0 t_{Anr}}.$$
(2)

Aufgrund der Quantennatur des Anregungsprozesses fluktuiert die Zahl der angeregten Atome  $n_+$  bzw.  $n_-$  gemäß der Relation  $\Delta n_{\pm} = \sqrt{n_{\pm}} \approx \sqrt{n_0/2}$  [14] und damit auch die Differenz ( $\nu - \nu_0$ ):

$$\Delta(\nu - \nu_0) = \frac{\sqrt{(\Delta n_-)^2 + (\Delta n_+)^2}}{2n_0 t_{Anr}}$$

$$\approx \frac{1}{\sqrt{n_0} t_{Anr}}.$$
(3)

Da die Differenzfrequenz als Fehlersignal zur aktiven Regelung der Ausgangsfrequenz dient, schwankt auch die Ausgangsfrequenz proportional zu den Fluktuationen des Fehlersignals. Ein Messzyklus zur Bestimmung des Fehlersignales beinhaltet notwendigerweise die Messung von  $n_-$  und  $n_+$ , und daher auch mindestens zwei Anregungspulse. Somit lässt sich sofort die Allan-Varianz, die als normierte Varianz der Ausgangsfrequenz definiert ist, für die Mittelungszeit  $\tau = 2t_{Anr}$  angeben:

$$\sigma_y(\tau = 2t_{Anr}) = \frac{\Delta(\nu - \nu_0)}{\nu_0}$$

$$= \frac{1}{\nu_0 \sqrt{n_0} t_{Anr}}.$$
(4)

Aufgrund des Poissoncharakters der Zählstatistik von  $n_-$  und  $n_+$  nehmen die Frequenzfluktuationen bei einer Mittelung über m Messzyklen mit  $m^{-1/2}$  ab. Berücksichtigt man, dass einer Mittelungszeit  $\tau$  gerade  $\tau/(2t_{Anr})$  Messzyklen entsprechen, so ergibt sich für die Allan-Varianz:

$$\sigma_y(\tau) = \frac{1}{\nu_0 \sqrt{n_0} t_{Anr}} \sqrt{\frac{2t_{Anr}}{\tau}}.$$
(5)

Man kann diesen Ausdruck noch vereinfachen, wenn man das Signal-zu-Rausch-Verhältnis (*SNR*) der Messung der Differenzfrequenz ( $\nu - \nu_0$ ) einführt, welches aufgrund der Poissonstatistik gerade

$$(SNR) = \frac{n_0}{\sqrt{n_0}} \tag{6}$$

beträgt. Man erhält dann als endgültigen Ausdruck für die Allan-Varianz eines atomaren Frequenzstandards:

$$\sigma_y(\tau) \sim \frac{1}{\nu_0(SNR)\sqrt{t_{Anr}\tau}}.$$
(7)

Der exakt abgeleitete Ausdruck unterscheidet sich davon nur durch einen Proportionalitätsfaktor der Größenordnung 1 [15]. Der Weg zu Frequenzstandards immer größerer Stabilität ist durch Gleichung (7) genau vorgezeichnet:

• Die Verwendung einer höheren Schwingungsfrequenz verbessert grundsätzlich die Stabilität des Standards. Technische Grenzen sind dabei durch die Notwendigkeit gesetzt, die Ausgangsfrequenz in einem Lokaloszillator mit der für eine Fourier-limitierte Auflösung der Resonanz erforderlichen spektralen Reinheit zu erzeugen. Derartige Quellen sind heute hochstabile Laser, deren Ausgangsfrequenz bis in den UV-Bereich ( $\nu_0 \approx 10^{15}$ ) verdoppelt werden kann. Gegenüber herkömmlichen Cäsium Standards stellt dies eine Verbesserung um 5 Größenordnungen in  $\nu_0$  dar. Mit optischen Frequenzen können daher Stabilitäten im Bereich  $10^{-15}$  schon nach wesentlich kürzerer Mittelungszeit erreicht werden als im Mikrowellenbereich.

- Die Verwendung eines atomaren Überganges mit einer kleinen natürlichen Linienbreite  $\Delta \nu_{nat}$  ist erforderlich, damit für möglichst lange Anregungszeiten  $t_{Anr}$  auch die in der Ableitung von Gleichung (7) vorausgesetzte fourierlimitierte Auflösung der Resonanz erreicht werden kann. In optischen Standards mit gespeicherten Ionen betragen die natürlichen Linienbreiten der betrachteten Übergänge typischerweise wenige Hertz, was einer Liniengüte  $\nu_0/\Delta \nu_{nat}$  von  $10^{15}$  entspricht.
- Desweiteren sollte die erreichbare Anregungsdauer  $t_{Anr}$  nicht durch den apparativen Aufbau begrenzt sein; in herkömmlichen Cäsium-Uhren ist dies durch die begrenzte Aufenthaltsdauer der Atome in der Wechselwirkungszone der Fall. Die Speicherung eines Ions in einer Falle erlaubt dagegen unbegrenzte Anregungszeiten und ist in diesem Zusammenhang als ideales System zu sehen.
- Die Allan-Varianz lässt sich durch längere Mittelungszeiten so lange verbessern, bis Wechselwirkungen der Atome mit ihrer Umgebung zu systematischen Frequenzverschiebungen führen. Auch in diesem Zusammenhang bietet die Speicherung eines Ions entscheidende Vorteile, da keine Stöße auftreten und sich das Ion dauerhaft in einem bekannten kleinen Volumen aufhält, dessen Randbedingungen leicht kontrolliert werden können. Kann das Ion in einem Volumen lokalisiert werden, das kleiner als die Wellenlänge des anregenden Lichtes ist, so tritt keine Verschiebung der Anregungsfrequenz durch den Doppler-Effekt erster Ordnung auf, und die Anregung ist wie beim Mößbauer-Effekt rückstoßfrei. [16]. Dieses sogenannte Lamb-Dicke-Regime ist im Mikrowellenbereich auch für thermische Atomstrahlen leicht zu erreichen, im optischen Bereich sind dafür jedoch Techniken der Laserkühlung erforderlich. Es besteht die begründete Hoffnung, dass auf diese Weise Genauigkeiten bis zu 10<sup>-18</sup> erreicht werden können [17].
- Um ein hohes Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu erreichen, erscheint die Verwendung einer großen Zahl von Atomen sinnvoll. Für ein einzelnes Ion kann aufgrund des Quantenrauschens beim Zustandsnachweis ein Wert von maximal 1 erreicht werden [18]. Andererseits führt die Verwendung vieler Atome durch deren gegenseitige Wechselwirkung zu systematischen Verschiebungen, die die erreichbare Genauigkeit limitieren. Insgesamt weisen auf kurzen Zeitskalen Frequenzstandards mit vielen Neutralatomen eine höhere Stabilität auf, auf langen Zeitskalen kommen dagegen die beschriebenen Vorteile eines einzelnen gespeicherten Ions zum Tragen.





Die wesentlichen Komponenten eines Frequenzstandards auf der Basis eines einzelnen gespeicherten Ions sind in Abbildung 2 dargestellt. Als Referenz dient ein verbotener optischer Übergang, der eine extrem geringe Übergangswahrscheinlichkeit besitzt. Dieser Übergang soll im folgenden als Referenzübergang bezeichnet werden, auch die saloppe Bezeichnung "Uhrenübergang" ist in der Literatur üblich. Der zur Anregung dieses Übergangs verwendete Laser soll hier als Abtastlaser oder auch als Uhrenlaser bezeichnet werden. Um den Nachweis eines solchen extrem schmalbandigen Überganges, der pro Sekunde nur wenige Photonen streut, an nur einem Teilchen zu ermöglichen, bedient man sich der Methode des "electron shelving", die bereits in den siebziger Jahren von Hans Dehmelt formuliert wurde [17]. Das Ion wird dabei über die Fluoreszenzemission eines breitbandigen Überganges kontinuierlich beobachtet. Da dieser Übergang auch zur Laserkühlung des Ions verwendet wird, wird er meist als Kühlübergang, der anregende Laser entsprechend als Kühllaser bezeichnet. Auf die Details der Laserkühlung einzelner Ionen wird in Abschnitt 3 eingegangen. Wenn sich der Kühlübergang mit dem schmalbandigen Referenzübergang einen gemeinsamen Grundzustand teilt, so führt eine Anregung des Referenzüberganges zu einem Verschwinden der Fluoreszenz auf dem Kühlübergang. Solche Quantensprünge der Fluoreszenz konnten erstmals in den Arbeitsgruppen von H. Dehmelt in Seattle, P. Toscheck in Hamburg sowie D. Wineland in Boulder nachgewiesen werden [19, 20, 21]. Über dieses Ausbleiben der Fluoreszenz kann eine Anregung auf dem Referenzübergang mit einer Detektionseffizienz von nahezu 100 % nachgewiesen werden. Um eine Verschiebung der Frequenz des Referenzüberganges durch das Licht des Kühllasers zu vermeiden, werden in der Praxis Kühl- und Abtastlaser abwechselnd eingestrahlt. Das Licht des auf die atomare Resonanz stabilisierten Lasers kann dann als Taktgeber der optischen Uhr dienen. Die Rolle des Uhrwerkes wird dabei von optischen Frequenzketten übernommen, wie sie in Abschnitt 5 beschrieben werden.

#### 1.3.1 Das Indium-Ion als Kandidat für ein optisches Frequenznormal

Ein für ein optisches Frequenznormal in Betracht kommendes Ion muss nicht nur ein vom Grundzustand ausgehendes V-förmiges 3-Niveauschema aufweisen, die Übergangsfrequenzen müssen auch in Bereichen liegen, die mit Laserlicht erreicht werden können. In den meisten Arbeitsgruppen werden die Ionen der II. Hauptgruppe mit ihren alkali-ähnlichen Spektren auf ihre Eignung als optisches Frequenznormal hin untersucht.

Exemplarisch ist in Abbildung 3 das Niveauschema des unter anderem an der PTB in Braunschweig untersuchten Ytterbium-Ions dargestellt [22]. Als schmalbandiger Referenzübergang wird hier der Quadrupolübergang zwischen den  ${}^{2}S_{1/2}$  und  ${}^{2}D_{3/2}$ Niveaus verwendet. Eine Übersicht über den Stand der Arbeiten an den verschiedenen Ionen findet sich in [24, 25]

Indium ist dagegen das einzige Ion aus der ursprünglich von Dehmelt favorisierten III. Hauptgruppe, das derzeit im Hinblick auf zukünftige Frequenzstandards untersucht wird. Neben der Arbeitsgruppe am Max-Planck-Institut für Quantenoptik in Garching arbeitet auch Prof. W. Nagourney an der University of Washington in Seattle an der Speicherung und Spektroskopie von Indium-Ionen. Das Niveauschema des Indium-Ions unterscheidet sich als zwei-Elektronen System grundsätzlich von ein-Elektronen Spektren der alkali-ähnlichen Ionen.

Als Kühlübergang wird der Interkombinationsübergang zwischen dem  $5s^2 {}^1S_0$ -Grundzustand und dem  $5s5p {}^3P_1$ -Niveau gewählt. Dieser Übergang, der bei strenger Gültigkeit der LS-Kopplung bereits dipol-verboten ist, besitzt für einen Kühlübergang nur eine verhältnismäßig kleine natürliche Linienbreite von 360 kHz. Dies führt einerseits dazu, dass an die Nachweiseffizienz der Fluoreszenz besondere Anforderungen gestellt werden, andererseits erlaubt es eine Laserkühlung zu besonders niedrigen Temperaturen, worauf in Abschnitt 3 noch gesondert eingegangen werden soll. Der  $5s^2 {}^1S_0 \rightarrow 5s5p {}^3P_0$  Referenzübergang hat die Besonderheit eines in beiden Zuständen verschwindenden elektronischen Drehimpulses J. Dieser zunächst in allen Multipol-



ordnungen des Strahlungsfeldes verbotene Übergang wird durch hyperfeininduzierte Beimischungen der  ${}^{3}P_{1}$  und  ${}^{1}P_{1}$  Niveaus zu dem  ${}^{3}P_{0}$  Niveau ermöglicht. Der verschwindende Drehimpuls der Elektronenhülle in beiden Niveaus des Referenzüberganges führt zu einer besonderen Unempfindlichkeit der Übergangsfrequenz gegenüber äuβeren Störfeldern. Insbesondere tritt keine Wechselwirkung mit Feldgradienten der Quadrupolfalle auf, ein Effekt der im Hg-Ion bereits zu messbaren Verschiebungen der Übergangsfrequenz der Größenordnung von ±10 Hz geführt hat [26].

Darüberhinaus bietet der Referenzübergang den Vorteil einer zufälligen Koinzidenz mit der vierten Harmonischen der Nd:YAG-Linie bei 946 nm, womit für dessen Anregung ein Laser mit einer hohen intrinsischen Frequenzstabilität zur Verfügung steht. Da die mit dem schmalen Kühlübergang verbundenen Schwierigkeiten bei der Fluoreszenzdetektion mittlerweile überwunden wurden, kann das Indium Ion als einer der aussichtsreichsten Kandidaten für ein zukünftiges optisches Frequenznormal betrachtet werden.



# 2 Speicherung geladener Teilchen

Die Vorteile gespeicherter Atome oder Ionen für die hochauflösende Spektroskopie sind im letzten Abschnitt deutlich geworden. Die ersten Erfolge zur Speicherung von Ionen wurden in den 50er Jahren erzielt [27]. Obwohl in den darauffolgenden Jahren auch alternative Konzepte zur Speicherung geladener Teilchen in elektrischen Wechselfeldern entwickelt wurden [28, 29], basieren auch heute noch praktisch alle verwendeten Fallen auf der ursprünglichen Paul'schen Technik. Die Speicherung basiert dabei auf einer Wechselwirkung des äußeren Freiheitsgrades der Ladung mit einem elektrischen Quadrupolfeld. Bei neutralen Atomen kann dagegen eine Speicherung nur durch Wechselwirkung mit dem magnetischen oder dem elektrischen Dipolmoment der Elektronenhülle, also einem inneren Freiheitsgrad, erreicht werden. Dies hat einerseits den Nachteil, dass die erreichbaren Potentialtiefen in Temperaturen ausgedrückt nur etwa 1 K betragen. Im Gegensatz dazu können in Ionenfallen Potentialtiefen von etwa 10<sup>4</sup> K erreicht werden, wodurch gespeicherte Ionen auch bei Raumtemperatur ohne Kühlung stabil in der Falle gehalten werden können. Andererseits, und dies ist der entscheidendere Nachteil gegenüber Ionen, basiert die Speicherung von Neutralatomen auf einer Verschiebung ihrer Energieniveaus im Speicherfeld. Dies begrenzt die erreichbare Genauigkeit eines Frequenzstandards, der ja gerade auf der Konstanz dieser Energieniveaus beruht. Ein Vorteil von Neutralatomfallen ist, dass dort 10<sup>9</sup> und mehr Atome gespeichert und gekühlt werden können, was aufgrund des erhöhten Signal-zu-Rausch Verhältnisses zu einer besseren Kurzzeitstabilität führt. In zylindersymmetrischen Fallen mit einem punktförmigen feldfreien Zentrum können aufgrund der gegenseitigen Abstoßung nur kleine Ensembles soweit lasergekühlt werden, bis ein Phasenübergang zu geordneten Strukturen, den sogenannten Coulomb-Kristallen, eintritt [30, 31]. In linearen Fallen und Miniaturspeicherringen [32, 33, 34] konnten jedoch auch bis zu 10<sup>5</sup> Ionen [35] zu Coulomb-Kristallen gekühlt werden. Dies wurde bei der Realisierung eines Mikrowellen-Frequenznormales auf Basis gespeicherter Hg<sup>+</sup> Ionen ausgenutzt [36].

## 2.1 Speicherung in Ionenfallen

Aus dem Gauβ'schen Satz der Elektrostatik folgt, dass es prinzipiell unmöglich ist, ein in drei Raumrichtungen anziehendes elektrostatisches Potential zu schaffen; lediglich ein in zwei Raumrichtungen anziehendes Potential ist möglich. In niedrigster Ordnung besitzt dieses Potential die Form eines Quadrupoles. Um dennoch eine stabile Speicherung zu erreichen, gibt es zwei mögliche Auswege. Der eine ist die Überlagerung eines Magnetfeldes in Richtung der instabilen Fallenachse. Dies führt zu der sogenannten Penning-Falle.

Die zweite Möglichkeit besteht darin, zeitabhängige Felder zu verwenden. Zu einem gegebenen Zeitpunkt ist die Falle zwar nur in zwei Richtungen stabil, durch schnelles Umpolen des Feldes lässt sich jedoch die Orientierung des Potentials im Raum periodisch ändern und sich so ein im zeitlichen Mittel in allen drei Richtungen anziehendes Potential schaffen. Die für eine stabile Speicherung nötigen Parameter (Feldamplitude und Umklappfrequenz) ergeben sich aus den Lösungen der Bewegungsgleichung eines geladenen Teilchens im oszillierenden Fallenpotential. Abbildung 5 zeigt einen Schnitt durch eine den Äquipotentialflächen des Quadrupolpotentials angepasste Elektrodenanordnung einer Paulfalle.

Zu einem Zeitpunkt t ist das Potential durch den Ausdruck

$$\Phi(r,z,t) = U(t)\frac{r^2 - 2z^2}{2r_0^2}$$
(8)

gegeben. Setzt sich U(t) aus einer Überlagerung einer Gleichspannung und einer Wechselspannung zusammen, so erhält man mit  $U(t) = V_0 + U_0 \cos(\Omega t)$  folgende Bewegungsgleichung eines geladenen Teilchens im Wechselfeld in *x*-Richtung:

$$m\ddot{x} + e[V_0 + U_0\cos(\Omega t)]\frac{x}{r_0} = 0.$$
(9)

Um diese Gleichung in Übereinstimmung mit der Mathieu'schen Differentialgleichung zu bringen, die in der mathematischen Literatur behandelt wird [37], führt man die dimensionslosen Parameter

$$\tau = \frac{\Omega}{2}t$$

$$a_r = \frac{4eV_0}{m\Omega^2 r_0^2}$$

$$q_r = \frac{2eU_0}{m\Omega^2 r_0^2}$$
(10)

ein. Die Bewegungsgleichung in z-Richtung ergibt sich durch Multiplikation der a und q Parameter mit (-2). In radialer Richtung lautet die Bewegungsgleichung dann:

$$\frac{d^2x}{d\tau^2} - [a_r + 2q_r\cos(2\tau)] = 0.$$
(11)

Nach dem Floquet-Theorem lautet die allgemeine Lösung der Mathieu'schen Differentialgleichung:

$$x(\tau) = \Gamma e^{\mu t} \Phi(\tau) + \Gamma' e^{-\mu t} \Phi(-\tau)$$
(12)

wobei  $\Phi(\tau)$  eine periodische Funktion ist;  $\Gamma$  und  $\Gamma'$  sind von den Anfangsbedingungen abhängige Konstanten. Die Konstante  $\mu = \alpha + i\beta$  hängt von den a- und q- Parametern ab und legt fest, ob die Lösung für  $\tau \to \infty$  beschränkt bleibt und eine stabile Speicherung erfolgen kann. Die Bedingung hierfür ist, dass  $\mu = i \cdot \beta$  rein imaginär ist, wobei  $\beta$ keine ganze Zahl sein darf. Der bei bislang allen Ionenfallenexperimenten verwendete erste Stabilitätsbereich ist dadurch gekennzeichnet, dass  $\beta$  zwischen 0 und 1 liegt. Die für eine stabile Speicherung notwendigen a- und q- Parameter erhält man, indem man zunächst für die periodische Funktion  $\Phi$  eine Fourier-Zerlegung vornimmt, den so erhaltenen Ausdruck



$$x(\tau) = A \sum_{-\infty}^{\infty} c_{2n} \cos(2n+\beta)\tau + B \sum_{-\infty}^{\infty} \sin(2n+\beta)\tau$$
(13)

in die Mathieu'sche Differentialgleichung einsetzt und nach  $\beta$  auflöst. Man erhält so im Grenzfall kleiner *a-* und *q-* Werte die für den ersten Stabilitätsbereich gültige Speicherbedingung:

$$-\frac{q_r^2}{2} < a < q_r^2.$$
(14)

Der Ausdruck für die Bewegung des Ions in der Falle vereinfacht sich dann zu

$$x(t) = A_0[1 - \frac{q_r}{2}\cos(\Omega t)]\cos(\omega_r t), \qquad (15)$$

wobei die sogenannte Säkularfrequenz  $\omega_r$  durch

$$\omega_r = \frac{\Omega}{2\sqrt{2}}\sqrt{q_r^2 + 2a_r} \tag{16}$$

gegeben ist. Betrachtet man die Bewegung in z-Richtung, so ist die Säkularfrequenz:

$$\omega_z = \frac{\Omega}{\sqrt{2}} \sqrt{q_r^2 - a_r}.$$
(17)

Insgesamt besteht das Bewegungsspektrum des Ions in der Falle also aus einer langsamen Oszillation entlang der geometrischen Fallenhauptachsen mit den Säkularfrequenzen  $\omega_r$  und  $\omega_z$ , der eine schnelle Oszillation mit der Fallenfrequenz  $\Omega$  überlagert ist; diese schnelle Oszillation wird auch Mikrobewegung genannt. Die langsame Oszillation wird demgegenüber oft auch als Makrobewegung bezeichnet.

Im Grenzfall kleiner *a*- und *q*- Parameter, der bei expliziter Lösung der Mathieu-Gleichung zur Separation in Mikro- und Makrobewegung führt, kann man die Bewegung des Ions in der Falle auch in einem vereinfachten Bild beschreiben. Man betrachtet ein oszillierendes Feld  $E(x,t) = E_0(x)\cos(\Omega t)$ , in welchem ein Teilchen harmonische Schwingungen  $x(t) = \bar{x}(t) + x_0\cos(\Omega t)$  um die Mittellage  $\bar{x}$  ausführt. Bei einem homogenen Feld  $E_0(x) = E_0$  ergibt sich keine Rückwirkung des Feldes auf die mittlere Teilchenposition  $\bar{x}$  und es tritt auch keine Speicherung auf. Schwingt das Teilchen dagegen in einem inhomogenen Feld, so ergibt sich gemittelt über eine Oszillationsperiode eine von  $\bar{x}$  abhängige resultierende Kraft:

$$\bar{F}(\bar{x}) = -\frac{\partial E_0}{\partial x} \bigg|_{x=\bar{x}} \frac{eE_0(\bar{x})}{2m\Omega^2}.$$
(18)

Im Falle eines elektrischen Quadrupolfeldes lässt sich diese Kraft als Ableitung eines harmonischen Pseudopotentials darstellen:

$$\Phi(\bar{r},\bar{z}) = \frac{eU_0^2}{4m\Omega^2 r_0^4} \left(\bar{r}^2 + 4\bar{z}^2\right) + \frac{V_0}{2r_0^2} \left(\bar{r}^2 - 2\bar{z}^2\right)$$

$$= \frac{m\Omega^2}{16e} \left[ \left(q_r^2 + 2a_r\right) \bar{r}^2 + 4\left(q_r^2 - a_r\right) \bar{z}^2 \right].$$
(19)

Die Eigenfrequenzen der Schwingung in diesem Potential entsprechen gerade den Säkularfrequenzen, die aus einer expliziten Lösung der Mathieu'schen Differentialgleichung hervorgegangen sind. In diesem Bild lässt sich die Speicherung so verstehen, dass die Mikrobewegung durch die Inhomogenität des Feldes quadratisch mit dem Abstand vom Fallenzentrum zunimmt. Im zeitlichen Mittel wirkt dies auf die langsame Säkularbewegung wie ein Potential, welches den Einschluss des Teilchens verursacht.

#### 2.2 Speicherung in miniaturisierten Fallen

Die hier beschriebene ideale Paulfalle mit hyperbolisch geformten Elektroden erwies sich als ideales Instrument zur Speicherung von Ionenwolken aus  $10^5$  und mehr Teilchen. Die Kühlung solcher Ionenwolken kann durch Stöße mit einem leichten Puffergas - typischerweise Helium - erfolgen, wobei Temperaturen von etwa 1000 K erreicht werden können. Für die Laserkühlung eines einzelnen Ions muss die Falle steil genug sein, um von Beginn der Laserkühlung an einen stabilen Überlapp zwischen dem Ion und einem fokussierten Laserstrahl mit einem Strahldurchmesser von etwa 50  $\mu$ m zu ermöglichen. Daneben soll ein lasergekühltes Ion die Lamb-Dicke-Bedingung erfüllen, was ebenfalls ein steiles Pseudopotential erfordert. Wie aus Gleichung (19) hervorgeht, lässt sich ein steiles Pseudopotential am leichtesten durch eine Verkleinerung der Fallendimension  $r_0$  erreichen. Mit zunehmender Verkleinerung der Falle wird jedoch die Beibehaltung der hyperbolischen Elektrodenform schwierig. Ein besonderes Problem besteht dabei darin, auch bei kleineren Fallen noch hinreichend große Öffnungswinkel



für die Fluoreszenzdetektion zu behalten. In sogenannten Drahtfallen wird die Hyperbelform durch zylindrische Elektroden angenähert, welche zumindest in der Nähe des Sattelpunktes ein harmonisches Potential gewährleisten. Noch weiter vereinfacht wurde die Fallengeometrie in Experimenten von Dehmelt, der ein einzelnes Ba<sup>+</sup>-Ion in einer sogenannten Paul-Straubel-Falle speichern konnte, welche nur aus einem einfachen Drahtring mit einem Durchmesser von 100  $\mu$ m bestand [38]. Diese Idee geht auf Straubel zurück, der makroskopische Teilchen im 50 Hz-Wechselfeld eines Drahtringes speichern konnte [39].

Ausführliche Rechnungen zu dem Potentialverlauf solcher modifizierter Paulfallen wurden von Ch. Schrama et. al. durchgeführt [40]. Dabei zeigte sich, dass neben der Paul-Straubel Falle, welche eine Paulfalle ohne Endkappen darstellt, auch deren Gegenstück, eine reine Endkappenfalle, die einer Paulfalle ohne Ringelektrode entspricht, zu



einer stabilen Speicherung verwendet werden kann. Der für die ideale Paulfalle entwickelte Formalismus kann ebenfalls auf diese modifizierten Fallentypen übertragen werden, falls die  $a_r$  und  $q_r$  Parameter noch mit einem zusätzlichen Spannungsverlustfaktor L modifiziert werden, der angibt, wie weit man die Spannung erhöhen muss, um ein Quadrupolpotential zu schaffen, welches einer idealen Paulfalle mit gleichem Radius  $r_0$  entsprechen würde. Die modifizierten  $a_r$  und  $q_r$  Parameter sind dann durch folgenden Ausdruck gegeben:

$$a_{r,L} = \frac{4eV_0}{Lm\Omega^2 r_0^2}$$

$$q_{r,L} = \frac{2eU_0}{Lm\Omega^2 r_0^2}.$$
(20)

Der Spannungsverlustfaktor kann dabei experimentell aus der Messung der Säkularfrequenzen bei verschiedenen Fallenspannungen ermittelt werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde sowohl eine Endkappenfalle als auch eine Paul-Straubel-Falle erfolgreich zur Speicherung einzelner Ionen wie auch von 2-Ionen-Kristallen eingesetzt.



## 2.3 Verwendete Fallentypen

Die in diesem Experiment verwendete Paul-Straubel-Falle ist schematisch in Abbildung 7 dargestellt. Bei einer Fallenfrequenz  $\Omega$  von etwa  $2\pi \cdot 10$  MHz werden in radialer Richtung Säkularfrequenzen von  $2\pi \cdot 0.89$  MHz und  $2\pi \cdot 0.92$  MHz erreicht, in axialer Richtung beträgt die Säkularfrequenz  $2\pi \cdot 1.4$  MHz. Die beiden Frequenzen in radialer Richtung sind nicht völlig entartet. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Elektrode nicht aus einem symmetrischen Ring, sondern aus einem ca. (15 × 2) mm großen Streifen besteht, in den ein Loch mit einem Durchmesser von 1 mm gebohrt wurde. Das Potential ist in Längsrichtung des Streifens dann etwas steiler als in Querrichtung [41]. Dieser Streifen bietet gegenüber dem von Dehmelt verwendeten Drahtring den Vorteil eines harmonischeren Potentials.

In der Endkappenfalle beträgt die Fallenfrequenz  $\Omega$  etwa  $2\pi \cdot 14$  MHz, wodurch Säkularfrequenzen von  $2\pi \cdot 1,2$  MHz in radialer und  $2\pi \cdot 1,4$  MHz in axialer Richtung erreicht werden können. Diese Parameter gelten für die Speicherung von Einzelionen, für die später beschriebenen Experimente zur Speicherung und Kühlung von 2-Ionen-Kristallen, wurden etwas niedrigere Spannungen angelegt und die Säkularfrequenzen betrugen  $2\pi \cdot 0,8$  MHz in radialer- und  $2\pi \cdot 0,95$  MHz in axialer Richtung. Durch eine genaue Justage der Fallenelektroden unter dem Mikroskop konnte die Symmetrie des Feldes soweit eingehalten werden, dass in beiden radialen Richtungen keinerlei Aufspaltung der Säkularfrequenzen beobachtet werden konnte.

## 2.3.1 Zusätzliche Kompensationselektroden

Wie im letzten Abschnitt dargestellt, beruht die Speicherung von Ionen auf der quadratisch mit dem Abstand vom Fallenzentrum zunehmenden Energie der Mikrobewegung, die auf die langsame Säkularbewegung als Potential wirkt. Die kinetische Energie des Ions ist dabei zwischen der Mikro- und der Säkularbewegung gleichverteilt und kann durch verschiedene Kühlmethoden reduziert werden. Selbst bei einer Kühlung des Ions in den Grundzustand des Fallenpotentials führt dessen Ortsunschärfe zu einer Wechselwirkung mit dem zeitabhängigen Fallenpotential und damit zu einer in jedem Fall verbleibenden Mikrobewegung. Die Mikrobewegung nimmt jedoch darüber hinaus stark zu, wenn das Teilchen durch Störfelder aus dem Fallenzentrum ausgelenkt wird. Die Störfelder können beispielsweise durch Kontaktpotentiale hervorgerufen werden, die bei der Bedampfung der Fallenelektroden mit dem Strahl der zu speichernden Atome entstehen. Besteht bei einer störungsfreien Speicherung das Bewegungsspektrum der Ionen aus den Säkularfrequenzen  $\omega$ , sowie den Mischfrequenzen  $m\Omega \pm n\omega$ , so tritt bei einer Auslenkung aus dem Fallenzentrum noch eine starke Komponente bei der reinen Mikrobewegungsfrequenz  $\Omega$  und Vielfachen davon auf. Diese zusätzliche Bewegungskomponente wird ständig vom Fallenfeld angetrieben und kann daher auch nicht gekühlt werden. Das Ideal eines ruhenden Absorbers bleibt erhalten, solange die Amplitude der zusätzlichen Bewegung kleiner als die Wellenlänge des anregenden Lichtes bleibt. Dies kann durch Gleichspannungen erreicht werden, die an zusätzlichen Elektroden in der Nähe der Falle angelegt werden und die Störfelder kompensieren. In Abbildung 8 sind 4 solcher Elektroden zu sehen. In einer derartigen Falle ist es erstmals gelungen, die Mikrobewegung in allen drei Raumrichtungen zu kompensieren [42].

## 3 Laserkühlung gespeicherter Indium-Ionen

Mit der im letzten Abschnitt beschriebenen Technik der Speicherung können einzelne Ionen beliebig lange im Zentrum der Falle gehalten werden. Nimmt man an, dass die Atome bei einer Temperatur von etwa 1000 K ionisiert werden, so entspricht dies in einer Falle mit einer Säkularfrequenz von 1 MHz einer Bewegungsamplitude von etwa 100  $\mu$ m. Nur wenn die Lamb-Dicke-Bedingung erfüllt ist, also die Bewegungsamplitude kleiner als die Wellenlänge des Lichtes ist, treten in erster Näherung keine Verschiebungen der Übergangsfrequenz durch die Bewegung auf. An dieser Stelle setzt nun die Laserkühlung ein.

Die Konzepte der Laserkühlung gespeicherter Ionen wurden bereits im Jahr 1975 von Wineland und Dehmelt vorgeschlagen [43], die Laserkühlung neutraler Atome geht auf einen Vorschlag von T. Hänsch und A. Schawlow ebenfalls aus dem Jahr 1975 zurück [44]. Bei der Laserkühlung neutraler Atome konnten in den letzten Jahren große Fortschritte erzielt werden, und der Nobelpreis des Jahres 1998 für C.Cohen-Tannoudij, S. Chu und B. Phillips gründet auf deren Verdienste in diesem Gebiet. Mit einer Kombination von Techniken der Laserkühlung und der Verdampfungskühlung konnte auch die Bose-Kondensation atomarer Gase erreicht werden [45]; der hierfür im Jahre 2001 an E. Cornell, C. Wieman und W. Ketterle vergebene Nobelpreis ist daher ebenfalls eng mit der Laserkühlung verknüpft.

Die zentrale Idee der Laserkühlung besteht darin, die Bewegungsenergie der Atome auf die gestreuten Photonen zu übertragen. Man regt daher die Atome mit einer Laserfrequenz an, die etwas unterhalb der eigentlichen Resonanzfrequenz liegt; den fehlenden Energiebetrag entnehmen die Atome dann ihrer Bewegungsenergie. Bei der Laserkühlung gespeicherter Ionen unterscheidet man zwei Fälle, die sich insbesondere im Hinblick auf die erreichbare Endtemperatur unterscheiden. Im ersten Fall ist die natürliche Linienbreite des Kühlüberganges wesentlich größer als die Säkularfrequenzen der Falle. Dieser Fall ist bei den starken  ${}^2S_{1/2} \rightarrow {}^2P_{1/2}$  Kühlübergängen der alkali-ähnlichen Ionen der zweiten Hauptgruppe gegeben. Die Dauer eines Absorption-Emissionsprozesses ist hier wesentlich kürzer als die Schwingungsperiode des Ions, und die Kühlung wird am besten im Bild der Doppler-Kühlung freier Atome beschrieben. Ein dopplergekühltes Ion, das in der niederfrequenten Flanke seines Absorptionsprofils angeregt wird, kann dabei noch so viele Fluoreszenzphotonen emittieren, dass es mit bloßem Auge sichtbar ist [46]. Die zufällige Verteilung der Fluoreszenzphotonen führt dabei zu einer Aufheizung des Ions, und im Gleichgewicht können Temperaturen unter 10 mK erreicht werden, was einer mittleren Schwingungsquantenzahl im Bereich  $5 < \langle n \rangle < 50$  entspricht.

Im zweiten, hier besonders interessanten Fall, ist die natürliche Linienbreite des Kühlüberganges kleiner als die Säkularfrequenzen der Falle; man spricht auch vom Fall der starken Bindung. Das Ion führt dann während eines Emissions-Absorptionsvorganges viele Schwingungsperioden aus, was in dessen Anregungsspektrum zu diskreten Seitenbändern im Abstand der Säkularfrequenzen um einen dopplerfreien Träger führt. Stimmt man den Kühllaser selektiv auf das erste niederfrequente Seitenband ab, so entzieht eine Anregung, gefolgt von einer spontanen Emission auf dem Träger, dem Ion gerade ein Schwingungsquant. Mit zunehmender Kühlung nimmt die Effizienz dieses Prozesses sogar noch zu, da mit Erreichen des Lamb-Dicke-Regimes die Spontanemission quasi nur noch auf dem Träger stattfindet. Da hier, anders als bei der Dopplerkühlung, keinerlei spektraler Überlapp zwischen der Anregungsfrequenz und der Emissionsfrequenz besteht, nimmt auch im Laufe des Kühlprozesses die Aufheizung des Ions durch die Fluoreszenzphotonen ab, und man kann das Ion sukzessive bis in den quantenmechanischen Grundzustand der Falle kühlen. Der Endzustand der Seitenbandkühlung ist im Grenzfall n  $\rightarrow$  0 ein reiner Dunkelzustand, weshalb im Falle der Anwendung als optische Uhr das Ion nur bis nahe an den Grundzustand gekühlt werden kann, falls der Kühlübergang auch zur Detektion verwendet werden soll.

### 3.1 Atomphysik des Indium-Kühlüberganges

Die zur Kühlung verwendete Interkombinationslinie  ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{1}$  erfüllt bei strenger Gültigkeit der LS-Kopplung nicht die Auswahlregeln für die Emission und Absorption elektrischer Dipolstrahlung. Im Fall der intermediären Kopplung, die bei In<sup>+</sup> gegeben ist, besitzt das  ${}^{3}P_{1}$ -Niveau jedoch Beimischungen des  ${}^{1}P_{1}$ -Niveaus, wodurch eine schwache Wechselwirkung mit optischer Dipolstrahlung möglich wird. Diese Beimischungen spielen auch eine große Rolle bei der Analyse des  ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{0}$  Referenzüberganges.

Das  ${}^{3}P_{1}$ -Niveau spaltet in drei Hyperfeinniveaus mit Gesamtdrehimpuls F = 7/2, 9/2 und 11/2 auf. Die Wellenlängen der einzelnen Hyperfeinkomponenten sind in Tabelle 1 wiedergegeben; in [48] ist auch die Lage der einzelnen Linien relativ zu einem Tellur-Absorptionsspektrum angegeben, was das Auffinden der Linien erleichtert. Ebenso konnte in [48, 49] gezeigt werden, dass ein effektives 2-Niveausystem präpariert werden kann, wenn die  $F = 9/2 \rightarrow F = 11/2$  Komponente des Kühlüberganges mit  $\sigma^{+}$  polarisiertem Licht in einer magnetfeldfreien Umgebung angeregt wird. Durch optisches Pumpen sind dann nur die extremalen Zeeman-Unterniveaus besetzt und es lassen sich die höchsten Fluoreszenzraten erreichen. Dieser Übergang wird auch in allen in diesem Abschnitt gezeigten Spektren verwendet. Wenn zu Beginn der Arbeiten an einer Falle noch kein Fluoreszenzsignal zur Kompensation statischer Magnetfelder vorliegt, kann stattdessen auch mit einem starken Magnetfeld in Strahlrichtung gearbeitet werden.

Übergang	Wellenlänge	
$F = 9/2 \rightarrow F = 7/2$	$230,6133\pm 0,0001~{\rm nm}$	
$F = 9/2 \rightarrow F = 9/2$	$230,6076\pm0,0001~{\rm nm}$	
$F = 9/2 \rightarrow F = 11/2$	$230,6009\pm 0,0001~{\rm nm}$	

Tabelle 1: Wellenlängen der Hyperfeinkomponenten des Indium-Kühlüberganges.

Neben dem hier verwendeten Isotop <sup>115</sup>In<sup>+</sup>, das mit mehr als 95% in dem natürlichen Isotopengemisch vorhanden ist, besitzt Indium noch das leichtere stabile Isotop <sup>113</sup>In<sup>+</sup>. Die Isotopieverschiebung des <sup>1</sup>S<sub>0</sub>  $\rightarrow$ <sup>3</sup> P<sub>1</sub> Überganges wurde in [50] eingehend untersucht und zu (696,6 ± 0,7) MHz bestimmt.

## 3.2 Kühllasersystem

In diesem Abschnitt soll zunächst kurz auf das verwendete Kühllasersystem und den Aufbau zur Spektroskopie des Kühlüberganges eingegangen werden. Um eine dauerhafte Kühlung und Detektion des Ions zu ermöglichen, sollte das dazu verwendete Lasersystem folgenden Anforderungen genügen:

- Um direkt nach dem Laden das heiße Ion herunterzukühlen, sollte eine Leistung von mindestens 50  $\mu$ W bei der Wellenlänge von 230 nm zur Verfügung stehen. Zudem sollte der Laser über mehrere GHz gegenüber der Resonanz kontinuierlich abstimmbar sein, um einerseits eine effektive Vorkühlung mit großer Verstimmung, andererseits ein Herausheizen überzähliger Ionen nach dem Ladeprozess zu ermöglichen. An die spektrale Reinheit des Lasers sind in diesem Stadium der Kühlung keine besonderen Anforderungen zu richten, eine Linienbreite im Bereich einiger MHz ist ausreichend.
- In der Endphase der Kühlung sind die Anforderungen an die Ausgangsleistung etwas geringer, etwa 20  $\mu$ W sind hier ausreichend. Dagegen muss die Linienbreite des Lasers jetzt deutlich kleiner als die Säkularfrequenzen der Falle bei etwa 1 MHz sein. Die kontinuierliche Durchstimmbarkeit sollte jetzt noch etwa 50 – 100 MHz betragen.
- Die Frequenzdrift des Lasers sollte kleiner als 1 MHz pro Stunde sein, da sonst eine kontinuierliche Detektion der Fluoreszenz während der Spektroskopie des metastabilen Niveaus nicht möglich ist. Ebenso sollte die Leistung im Zeitraum einiger Stunden stabil 20  $\mu$ W betragen, ohne dabei zeitaufwendige Justagearbeiten zu erfordern.
- Soll im Rahmen des Betriebes als optische Uhr über mehrere Tage gemittelt werden, so gelten die Anforderungen des vorherigen Punktes für den entsprechend längeren Zeitraum.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde dafür ein Farbstofflaser (Coherent CR 699) verwendet, der von einem Argon-Ionen Laser mit 4,5 W bei 350 nm gepumpt wird. Der Farbstofflaser liefert etwa 50 – 80 mW an sichtbarem Licht bei 460 nm; in einer externen Frequenzverdoppelungseinheit werden mit einem BBO-Kristall die erforderlichen 230 nm erzeugt. Der Aufbau solcher Verdoppelungseinheiten ist in [51, 52] genauer diskutiert. Im UV stehen dann kontinuierlich zwischen 50 und 100  $\mu$ W an Ausgangsleistung zur Verfügung. Durch dopplerfreie Sättigungsspektroskopie an einer Tellurzelle kann die Ausgangsfrequenz des Farbstofflasers mit einer Präzision von etwa 50 MHz



voreingestellt werden. Diese Eigenschaften reichen zur Präparation und zum Nachweis eines Einzelions in der Falle aus.

Für die Seitenbandkühlung müssen die Bewegungsseitenbänder im Spektrum aufgelöst werden können und deshalb die Linienbreite des Lasers noch weiter reduziert werden. Dies geschieht durch eine Stabilisierung des Lasers auf einen externen Referenzresonator mit einer Finesse von etwa 350 nach dem Pound-Drever-Hall Verfahren [53]. Als schnelles Stellglied wird dabei noch ein als Phasenmodulator geschalteter elektrooptischer Modulator in den Laserresonator eingebracht. Das Durchstimmen des Lasers relativ zu dem Referenzresonator geschieht mit einem akusto-optischen Modulator. Auf diese Weise kann eine Laserlinienbreite von einigen 10 kHz weit unterhalb der natürlichen Linienbreite des Kühlüberganges erzielt werden. Durch eine zweistufige Temperaturregelung des im Vakuum aufgehängten Referenzresonators kann zudem die Frequenzdrift des Lasers auf Zeitskalen von etwa einer Stunde unter einem MHz gehalten werden [54]. Trotz des teilweise erheblichen Justageaufwandes ist das beschriebene Lasersystem in der Lage, die sich aus den Bedürfnissen der höchstauflösenden Spektroskopie an einem Einzelion ergebenden Anforderungen zu erfüllen. Ein prinzipielles Problem ergibt sich mit dem Farbstofflasersystem erst, wenn man es für Mittelungszeiten von mehreren Tagen einsetzen möchte. Neben der Notwendigkeit häufiger Rejustagen begrenzt die Lebensdauer des Farbstoffes von etwa einer Woche mögliche Höchstpräzisionsexperimente. Ebenso erschwert die Größe des Systems von mehreren Quadratmetern auf dem optischen Tisch eine für etwaige Frequenzvergleiche nötige Mobilität des Systems. Aus diesen Gründen erscheint die Verwendung eines Kühllasers auf Diodenlaserbasis grundsätzlich vorteilhaft, wenn sich damit die oben erwähnten Spezifikationen erreichen lassen.

Um einerseits einen möglichst großen Teil der Laserintensität auf das Ion zu richten und andererseits Streulicht durch Bestrahlung der Fallenelektroden zu vermeiden, wird das Licht des Kühllasers mit Linsen der Brennweite f = 300 mm oder f = 250 mmauf das Ion fokussiert. Die Justage der Linse transversal zur Strahlrichtung erfolgt dabei mit Hilfe digital gesteuerter Schrittmotoren, die Justage entlang der Strahlrichtung mit einer manuellen Mikrometerschraube. Eine Vorjustage der Linsenposition auf das Fallenzentrum kann durch Beobachtung des Schattenwurfes des Laserlichtes bei teilweiser Bestrahlung der Fallenelektroden erfolgen. Die Feinjustage der transversalen wie auch der longitudinalen Linsenposition erfolgt dann am Ion selbst durch Beobachtung der Fluoreszenzintensität. Das Ion kann dabei als Mikrosonde zur Analyse des Strahlprofiles dienen. Abbildung 10 zeigt die Messung der Fokusgröße am Ort des Ions in Abhängigkeit der Linsenposition in Strahlrichtung. Die Frequenzverdoppelung in einem leicht astigmatischen doppel-Z-förmigen Resonator mit einem Brewster-geschnittenen BBO-Kristall führt zu einem astigmatischen UV-Strahl [51]. Auf ähnliche Weise konnte kürzlich erstmals das Modenprofil eines optischen Resonators hoher Finesse mit einem Einzelion ausgemessen werden. Dies stellt einen wichtigen Schritt hin zur Realisierung von Experimenten zur Resonator-Quantenelektrodynamik mit gespeicherten Ionen dar [55].

### 3.3 Kompensation der Mikrobewegung

Bevor mit den oben beschriebenen Kühltechniken das Ideal eines ruhenden Teilchens soweit verwirklicht werden kann, wie die Quantenphysik es zulässt, muss zunächst die Mikrobewegung aufgrund einer Verschiebung des Teilchens aus dem Fallenzentrum kompensiert werden. Dies geschieht durch statische Felder, die das Ion in das Fallenzentrum zurückschieben. Als eine ständig vom Fallenfeld getriebene Bewegung kann diese Form der Mikrobewegung nicht durch das Laserfeld gekühlt werden. Im Falle der breiten Kühllinien der alkali-ähnlichen Ionen wird die Mikrobewegung detektiert, indem nach einer Intensitätsmodulation des Fluoreszenzlichtes mit der Fallenfrequenz  $\Omega$  gesucht wird.

Im Falle des Indium-Ions führt die Mikrobewegung wie auch die Säkularbewegung zu diskreten Seitenbändern im Absorptionsspektrum, wodurch die Amplitude der Mikrobewegung direkt im Spektrum ablesbar ist. Abbildung 11 zeigt ein solches Spektrum; neben dem unverschobenen Träger sind auf der niederfrequenten Seite mehrere Mikrobewegungsseitenbänder im Abstand der Fallenfrequenz  $\Omega$  zu sehen. Auf der hochfrequenten Seite des Trägers bricht aufgrund der Aufheizung des Ions durch den Laser die Fluoreszenz abrupt ab.

Da sich die Amplitude der Mikrobewegung im Gegensatz zur Temperatur des Ions während der Aufnahme des Spektrums nicht ändert, kann man jedes Mikrobewe-



gungsseitenband als eine eigenständige Resonanz des atomaren Systems, oder besser des aus Ion und Falle zusammengesetzten Systems, betrachten. In diesem Sinne kann Seitenbandkühlung der Säkularbewegung bei rotverstimmter Lasereinstrahlung und entsprechend Seitenbandheizung bei blauverstimmter Lasereinstrahlung nicht nur bezüglich des Trägers, sondern auch bezüglich jedes Mikrobewegungsseitenbandes stattfinden. Vor diesem Hintergrund ist auch die Struktur der Spektren in den Abbildungen 11, 12 verständlich. Auf der niederfrequenten Seite eines Mikrobewegungsseitenbandes tritt sozusagen eine doppelte Seitenbandkühlung auf: einmal bezüglich des Trägers mit großer Verstimmung und einmal bezüglich des Mikrobewegungsseitenbandes mit kleiner Verstimmung. Das Ion wird so sehr effektiv gekühlt, und da der Endzustand der Seitenbandkühlung nahezu dunkel ist, findet kaum Emission von Fluoreszenzphotonen statt. Auf der hochfrequenten Seite des Mikrobewegungsseitenbandes herrscht nun eine Art Konkurrenzsituation zwischen Seitenbandkühlung und Seitenbandheizung vor: Die Rotverstimmung bezüglich des Trägers führt nach wie vor zu einer Kühlung, die Blauverstimmung bezüglich des Mikrobewegungsseitenbandes jedoch zu einer Aufheizung des Ions, wodurch sich die Fluoreszenzemission erhöht. Um die experimentell gemessene U-förmige Struktur der Spektren zu erklären, muss die Schwingung des Ions zu jedem Zeitpunkt durch eine feste Amplitude und damit auch eine feste Energie beschrieben werden. Der genaue Wert der Energie hängt dabei



von der Laserfrequenz ab und ist von der Größenordnung 100  $\hbar\omega$ . Die Annahme einer thermischen Verteilung in der Besetzung der einzelnen Oszillatorniveaus, wie sie nach einer Rechnung von Javaneinen et. al. zu erwarten wäre, reproduziert diese Struktur dagegen wesentlich weniger gut [56, 57, 58].

Dieses Wechselspiel von Kühlung und Heizung kann auch dazu benutzt werden, um mit einem gegenüber dem Träger blauverstimmten Laser noch Kühlung zu erreichen und zwar genau dann, wenn der Laser knapp unterhalb des ersten hochfrequenten Mikrobewegungsseitenbandes abgestimmt wird [50].

Aus Sicht der Anwendung als optischer Frequenzstandard ist bezüglich der Mikrobewegung die wichtigste Frage die der Effizienz ihrer Detektion und damit die Möglichkeit ihrer Kompensation. Hier bietet die direkte Beobachtung der Mikrobewegungsseitenbänder im Absorptionsspektrum den Vorteil, dass durch Erhöhen der Laserintensität die relative Stärke der Seitenbänder zu dem Träger stark erhöht werden kann und somit auch kleinste Mikrobewegungsamplituden nachgewiesen werden können. Zur Kompensation der Mikrobewegung stimmt man den Laser dann auf ein Seitenband ab, und justiert die Kompensationsfelder so, dass die Fluoreszenzemissi-



on verschwindet. Da immer nur die Projektion der Mikrobewegung auf die Ausbreitungsrichtung des Lasers beobachtet werden kann, muss, um eine dreidimensionale Kompensation zu erreichen, dieser Vorgang mindestens entlang zweier Richtungen durchgeführt werden, wobei ein iteratives Vorgehen notwendig ist. Abbildung 13 zeigt das Absorptionsspektrum des Ions nach Kompensation der Mikrobewegung entlang zweier Achsen. Besonderer Wert wurde dabei auf eine Veringerung des Streulichtuntergrundes der Fluoreszenzdetektion gelegt, was durch die genaue Justage einer Lochblende mit einem Durchmesser von100  $\mu$ m in der Bildebene des Abbildungsobjektives gelang. Der hier beobachtete Untergrund von weniger als 10 Ereignissen pro Sekunde entspricht etwa dem thermischen Dunkelstrom des Photomultipliers.

### 3.4 Seitenbandkühlung gespeicherter Indium-Ionen

Obwohl die ersten Vorschläge zur Laserkühlung gespeicherter Ionen bereits den Fall der Seitenbandkühlung behandelten [43], dauerte es relativ lange, bis erste Experimente das Potenzial dieser Kühlmethode ausschöpfen und ein Ion bis in den Grundzustand der Falle kühlen konnten. Dies liegt hauptsächlich daran, dass die Voraus-



setzungen der starken Bindung relativ schwer zu erreichen sind. Die Linienbreiten der typischen Kühlübergänge liegen einerseits mindestens um eine Gröβenordnung über den üblichen Säkularfrequenzen, die Streuraten auf verbotenen Übergängen, die die Voraussetzung der starken Bindung erfüllen, sind andererseits so schwach, dass eine effiziente Kühlung nur schwer möglich ist. Die ersten Experimente verwendeten daher eine Kombination beider Kühltechniken, wobei ein Ion zunächst auf einem starken Übergang vorgekühlt wurde und mit Hilfe der Seitenbandkühlung auf einem verbotenen Übergang dann nur noch wenige Schwingungsquanten bis zum Erreichen des Grundzustandes abgeführt wurden. Auf diese Weise wurde 1989 erstmals der Schwingungsgrundzustand mit einem einzelnen <sup>199</sup>Hg<sup>+</sup> Ion erreicht [59].

Indium nimmt in dieser Hinsicht eine Sonderstellung unter den untersuchten Ionen ein, da dessen Kühlübergang mit einer Linienbreite von 360 kHz einerseits in miniaturisierten Fallen mit Säkularfrequenzen von etwa 1 MHz die Voraussetzung der starken Bindung erfüllt, andererseits aber noch genug Photonen gestreut werden können, um den gesamten Kühlprozess auf diesem Übergang durchzuführen. Indium stellt daher ein Modellsystem zur Seitenbandkühlung dar, an dem prinzipielle Eigenschaften dieser Kühlmethode, wie etwa die erreichbaren Temperaturgrenzen, exemplarisch untersucht werden können. Andererseits bietet es aus Sicht der hochauflösenden Spektroskopie den praktischen Vorteil, dass die kalte Temperatur nicht nur für kurze Zeit am Ende einer komplizierten Kühlsequenz erreicht werden kann, sondern dass ein kontinuierliches Einstrahlen des Kühllasers zu Temperaturen nahe dem Fallengrundzustand führt; diese Temperaturen können dann im Prinzip beliebig lange gehalten werden.

#### 3.4.1 Temperaturbestimmung seitenbandgekühlter Ionen

Um die Effektivität der beschriebenen Seitenbandkühlung zu testen, ist eine verlässliche Methode der Messung solch tiefer kinetischer Temperaturen erforderlich. Soll das Absorptionsspektrum des Kühllasers als Temperaturmessung verwendet werden, so besteht das Problem, dass die Endtemperatur elementar von der Frequenz des Kühllasers abhängt und so jedem Messpunkt in den Abbildungen 11 und 13 eine eigene Temperatur zuzuordnen ist. Daher soll in diesem Abschnitt diskutiert werden, wie und unter welchen Voraussetzungen aus dem Absorptionsspektrum die Temperatur des Ions zuverlässig ermittelt werden kann.

Die Anregungsrate bezüglich des *j*-ten Seitenbandes mit einem Laser der Intensität *I* beträgt:

$$P_j = \frac{\Gamma^3 S_j I/I_S}{\Gamma^2 (1 + 2S_j I/I_S) + 4\delta^2}.$$
(21)

Dabei ist  $\Gamma$  die natürliche Linienbreite des Überganges,  $I_S$  die Sättigungsintensität und  $\delta$  die Verstimmung des Lasers gegenüber dem Seitenband. Die Größe  $S_j$ bezeichnet die Stärke des *j*-ten Seitenbandes und hängt von der Temperatur des Ions ab. Im Grenzfall der Resonanz und kleiner Laserleistungen  $I \ll I_S$  verkürzt sich Gleichung (21) zu:

$$P_j \approx \Gamma S_j I / I_S. \tag{22}$$

Sind die Säkularfrequenzen  $\omega$  der Falle wesentlich größer als die Linienbreite des Kühlüberganges, so lautet bei einer Verstimmung des Lasers um gerade ein Säkularseitenband der Ausdruck für die Anregungsrate:

$$P_j \approx \frac{\Gamma^3 S_j I / I_S}{4\omega^2}.$$
(23)

Um nun die Stärke der Seitenbänder  $S_j$  in Abhängigkeit der Temperatur oder der mittleren Schwingungsquantenzahl  $\langle n \rangle$  zu erhalten, muss man die quantenmechanischen Übergangsmatrixelemente zwischen Grund- und angeregtem Zustand untersuchen. Die externen Freiheitsgrade lassen sich dabei von den internen separieren und man erhält für die Übergangswahrscheinlichkeit vom Zustand  $|n\rangle$  in den Zustand  $|n'\rangle$ Matrixelemente der Form:

$$\langle n'| e^{ikx} |n\rangle = e^{-\frac{1}{2}(kx_0^2)} \sqrt{\frac{n_{<}!}{(n_{<} + \Delta n)!}} (ikx_0)^{\Delta n} L_{n_{<}}^{\Delta n} [(kx_0)^2].$$
(24)

Das Produkt aus dem Wellenvektor k und Ausdehnung der Grundzustandswellenfunktion  $x_0$  wird dabei auch als Lamb-Dicke-Parameter  $\eta$  bezeichnet. In für Einzelionen optimierten Fallen ist dabei die Bedingung  $\eta \ll 1$  erfüllt. Mit  $n_{<}$  wird die kleinere der beiden Schwingungsquantenzahlen n und n' bezeichnet,  $\Delta n = |n - n'|$  bezeichnet deren Differenz und  $L_m^n$  das generalisierte Laguerre Polynom. Im Lamb-Dicke-Regime  $\eta \ll 1$  ergibt sich daraus für die Stärke der einzelnen Seitenbänder:

$$S_{0} = 1$$

$$S_{-1} = \eta^{2} \langle n \rangle$$

$$S_{+1} = \eta^{2} (\langle n \rangle + 1).$$
(25)

Ist der Laser auf den Träger abgestimmt, so überwiegt die resonante Streuung gegenüber nichtresonanten Prozessen, und die Anregungsrate ist:

$$P_0 = \Gamma I / I_S. \tag{26}$$

Ist der Laser gerade auf das erste niederfrequente Seitenband abgestimmt, so kann neben einer resonanten Anregung des Seitenbandes auch eine nichtresonante Anregung des Trägers stattfinden. Für die Anregungsrate ergibt sich daraus:

$$P_{-1} = \Gamma \eta^2 \langle n \rangle I / I_S + \Gamma \frac{\Gamma^2}{4\omega^2} S_{-1} I / I_S.$$
<sup>(27)</sup>

Wird die Seitenbandkühlung auf einem stark verbotenen Übergang mit einer natürlichen Linienbreite von wenigen Hertz, so ist der zweite Term, der die nichtresonante Streuung auf dem Träger beschreibt, zu vernachlässigen. Dies ist bei der Seitenbandkühlung über die  $S \rightarrow D$  Quadrupolübergänge der alkali-ähnlichen Ionen Hg<sup>+</sup> und Ca<sup>+</sup> der Fall. Im Indium-Ion ist das Verhältnis  $\Gamma/\omega$  etwa 1/3, so dass beide Terme zu berücksichtigen sind. In der Praxis geschieht dies dadurch, dass man beide Beiträge trennt und dann nur der Beitrag des ersten Terms in die Temperaturbestimmung eingeht. Experimentell wird dazu an das Absorptionsspektrum über den Träger der Resonanz eine Lorentzkurve angepasst. Für eine Verstimmung des Lasers von gerade einem Seitenband drückt diese Kurve die nichtresonante Streuung auf dem Träger aus. Liegt nun die Anregungsrate bei dieser Frequenz oberhalb der Lorentzkurve, so ist dies auf den ersten Term in Gleichung (27), also die resonante Anregung des ersten Bewegungsseitenbandes zurückzuführen. Aus dem Vergleich dieser zusätzlichen Anregungsrate  $\tilde{P}_{-1}$  zu  $P_0$  lässt sich dann leicht die mittlere Besetzungszahl bestimmen:

$$\langle n \rangle = \frac{\tilde{P}_{-1}}{\eta^2 P_0} \tag{28}$$

Voraussetzung für die Gültigkeit dieser einfachen Beziehung ist jedoch, dass sowohl bei der Messung von  $\tilde{P}_{-1}$  wie auch von  $P_0$  die Lamb-Dicke-Bedingung erfüllt ist. Wird diese Bedingung verletzt, so verringert sich die Anregungsrate auf dem Träger und es

wird eine zu hohe Temperatur abgeschätzt. Da in den Spektren 11 und 13 auf dem Träger nicht gekühlt wird und damit eine Einhaltung der Lamb-Dicke-Bedingung nicht garantiert werden kann, lässt sich aus diesen Spektren nur eine obere Abschätzung der Temperatur vornehmen.



#### 3.4.2 Kühlgrenzen der Seitenbandkühlung

Mit den bisherigen Ausdrücken für die Anregungsraten lässt sich auch leicht eine Beziehung für die tiefstmögliche Gleichgewichtstemperatur ableiten. Diese wird bei einer Einstrahlung auf dem ersten niederfrequenten Seitenband mit einer Laserleistung weit unterhalb der Sättigungsintensität erreicht. Jede Absorption eines Photons auf dem Seitenband entzieht dem Ion dabei die Energie  $\hbar \omega$ , bei einer spontanen Emission auf dem Träger wird dem Ion dagegen durch den Photonenrückstoß im Mittel die Photonenrückstoßenergie  $\alpha R$  zugeführt. Der Faktor  $\alpha$  hängt von der Geometrie der Anregung und der Emissionsverteilung ab und ist von der Größenordnung 1. Die Aufheizung durch den Photonenrückstoß tritt sowohl nach einer resonanten Anregung des ersten Seitenbandes wie auch nach einer nichtresonanten Anregung des Trägers auf. Zudem wird noch die nichtresonante Absorption auf dem ersten hochfrequenten Seitenband als Heizprozess mitberücksichtigt. Dieser ist zwar aufgrund der hohen Verstimmung sehr unwahrscheinlich, jedoch wird dem Ion bereits bei der Absorption der Energiebetrag  $\hbar \omega$  zugeführt. Der Ansatz für das Gleichgewicht aus Kühlung und Heizung lautet daher:

$$\frac{I}{I_S}\Gamma\langle n\rangle\eta^2\omega = \frac{I}{I_S}\frac{\Gamma^3}{4\omega^2}\alpha R + \frac{I}{I_S}\Gamma\langle n\rangle\eta^2\alpha R + \frac{I}{I_S}\frac{\Gamma^3}{16\omega^2}(\langle n\rangle + 1)\eta^2\omega.$$
(29)

Als Gleichgewichtsbesetzungszahl ergibt sich daraus:

$$\langle n \rangle = \frac{\Gamma^2}{4\omega^2} \left( \alpha + \frac{1}{4} + \alpha^2 \frac{R}{2\omega} \right).$$
(30)

Der erste und dominierende Term steht für die Spontanemission nach einer nichtresonanten Absorption auf dem Träger und bestimmt im Wesentlichen die erreichbare Endtemperatur. Der zweite Term steht für die ebenfalls nichtresonante Absorption auf dem hochfrequenten Seitenband; der dritte Term, der die Emission nach einer resonanten Absorption auf dem niederfrequenten Seitenband beschreibt, kann demgegenüber vernachlässigt werden. Man kann den hier aus Ratengleichungen gewonnenen Ausdruck auch als Näherung einer strikt quantenmechanisch berechneten Gleichgewichtsbesetzung erhalten [58]. Dort wurde auch gezeigt, dass diese einer thermischen Verteilung der einzelnen Oszillatorniveaus entspricht, so dass der in (30) berechneten mittleren Besetzungszahl  $\langle n \rangle$  gemäß der Beziehung

$$T = \frac{\hbar\omega}{k_B \ln\left(1 + 1/\langle n \rangle\right)} \tag{31}$$

eine Temperatur zugeordnet werden kann. Für die bei diesem Experiment relevanten Parameter erhält man eine minimale Besetzungszahl von  $\langle n \rangle = 0,04$ , was einer Temperatur von etwa 15  $\mu$ K entspricht.

#### 3.4.3 Bichromatisches Kühlen einzelner Indium-Ionen

Um entsprechend der grundsätzlichen Überlegungen des vorangegangenen Kapitels eine Messung der Ionentemperatur durch einen Vergleich der Streurate auf dem Träger zur Streurate auf dem ersten niederfrequenten Seitenband durchführen zu können, müssen folgende Punkte sichergestellt sein:

 Der Kühllaser darf den Übergang nicht sättigen, da sonst die Streurate auf dem Seitenband überproportional anwächst und zu hohe Temperaturen gemessen werden. Dies ist aber in den Spektren, die in den Abbildungen 11, 12 und 13
gezeigt sind, der Fall, da bei einer geringen Laserleistung die Kühlleistung zu hohen Temperaturen hin stark abnimmt und die Aufnahme stabiler Spektren schwierig wird.

 Die Lamb-Dicke-Bedingung muss bei der Messung der Streurate auf dem Seitenband wie auch auf dem Träger erfüllt sein. Bei einer Abstimmung des Kühllasers auf den Träger findet keine Kühlung mehr statt, weshalb hier die Aufheizung der Ionen durch die gestreuten Fluoreszenzphotonen oder andere Heizeffekte schnell zu einer Verletzung der Lamb-Dicke-Bedingung führen kann.

Da das Ablesen der Temperatur aus einfachen Absorptionsspektren schwierig ist, wurde die Methode des bichromatischen Seitenbandkühlens entwickelt. Die Kühlung wird hierbei mit zwei Lasern unterschiedlicher Leistung und Frequenz durchgeführt. Ein Laser mit großer Leistung (etwa 50  $\mu$ W) wird weit rotverstimmt gegenüber dem Träger (etwa 40 MHz) eingestrahlt. Es empfiehlt sich eine Frequenz knapp unterhalb eines Mikrobewegungsseitenbandes höherer Ordnung zu wählen, um keine unerwünschten Heizprozesse zu erzeugen. Dieser Laser gewährleistet eine effiziente Kühlung bei höheren Temperaturen, auch wenn das Ion durch einen Stoß stark aufgeheizt werden sollte. Das Ion kann so dauerhaft im Lamb-Dicke Regime gehalten werden. Ein zweiter Laser mit sehr schwacher Leistung (etwa 10 nW) wird über den Träger der Resonanz gefahren. Dieser Laser bewirkt nun einerseits bei einer Rotverstimmung um ein Bewegungsseitenband die Kühlung zu den kältesten Temperaturen, andererseits kann dessen Streurate auf dem Träger als Referenz für die Temperaturmessung dienen. Aufgrund der geringen Leistung dieses Lasers tritt hierbei keine Sättigung auf, ebenso bleibt die Lamb-Dicke-Bedingung erfüllt. Der Vergleich der Streurate auf dem Seitenband zur Streurate auf dem Träger kann gemäß dem Ausdruck (28) für die Temperaturmessung verwendet werden.

In der Praxis wird die hierfür notwendige zweite Laserfrequenz durch eine Phasenmodulation des Kühllasers mit einem elektrooptischen Modulator erreicht. Dieser prägt dem Laserlicht Seitenbänder auf, deren Frequenz über die Treiberfrequenz des Modulators geregelt werden kann; die relative Intensität dieser Seitenbänder liegt im Bereich weniger Promille. Während die Frequenz des Kühllasers bei größerer Verstimmung stabil gehalten wird, übernimmt ein Seitenband die Rolle des schwachen Lasers und fährt die Resonanz ab. Abbildung 16 zeigt das bichromatische Absorptionsspektrum eines einzelnen Indium-Ions. Im unteren Teil der Abbildung wird die Abweichung der Messpunkte von einem einfachen Lorentz-Fit an die Resonanz des Trägers in zehnfacher Vergrößerung gezeigt. Der leichte Anstieg der Zählrate gegenüber dem Fit bei Verstimmungen von etwa 1 MHz macht die Bewegungsseitenbänder ansatzweise erkennbar. Man erhält aus dieser Kurve eine mittlere Besetzungszahl der Schwingungsniveaus von  $\langle n \rangle = 0.7$ . Dies besagt, dass sich das Ion mit einer Wahrscheinlichkeit von mehr als 50% im Schwingungsgrundzustand der Falle aufhält. Im Gegensatz zu anderen Experimenten, bei denen die kältesten Temperaturen am Ende einer Kühlsequenz nur für kurze Zeiten zur Verfügung stehen, ist hier der kälteste



Zustand ein Gleichgewichtszustand aus Kühl- und Heizprozessen und kann als solcher im Prinzip für beliebig lange Zeiten aufrechterhalten werden.

Betrachtet man das Gleichgewicht aus Kühl- und Heizprozessen genauer, so erkennt man, dass mit der Methode der bichromatischen Kühlung nicht ganz so tiefe Temperaturen wie mit monochromatischer Seitenbandkühlung erreicht werden. Bei den Minimaltemperaturen trägt der starke, weit verstimmte Laser praktisch nicht mehr zur Kühlung bei und die Streuung dieses Lasers auf dem Träger sowie auf dem ersten hochfrequenten Seitenband ist als Heizprozess zu berücksichtigen. Ist der starke Laser mit Intensität  $I_1$  um l Seitenbänder gegenüber der Resonanz verstimmt, so ergibt sich als neue Gleichgewichtstemperatur [56, 57]:

$$\langle n \rangle = \frac{\Gamma^2}{4\omega^2} \left( \alpha + \frac{1}{4} + \frac{I_1}{I_S} \frac{\alpha + 1}{l^2} \right).$$
(32)

Im Falle des Indium-Ions verdoppelt sich so die erreichbare minimale Besetzungszahl von 0,04 zu 0,08. Der experimentell gemessene Wert von  $\langle n \rangle \approx 0,7$  liegt deutlich über dieser theoretisch zu erwartenden Grenze. Dies liegt zum einen daran, dass der



Messwert eine obere Abschätzung der Temperatur liefert, eine genauere Messung ist aufgrund der erforderlichen Trennung von resonanter und nichtresonanter Absorption auf dem ersten Seitenband schwierig. Zudem wurde der Einfluss der Mikrobewegung in der Theorie vernachlässigt. Obwohl die Restamplitude der Mikrobewegung deutlich kleiner als die Wellenlänge des anregenden Lichtes ist, kann eine Wechselwirkung des starken, weit verstimmten Lasers mit den Seitenbändern der Mikrobewegung auftreten, was zu weiteren Heizprozessen führt.

## 3.4.4 Bichromatisches Kühlen von Coulomb-Kristallen

Der Phasenübergang mehrerer gespeicherter Ionen zu einer geordneten Struktur, einem sogenannten Coulomb-Kristall tritt ein, wenn durch Laserkühlung die kinetische Energie der Ionen auf etwa 1/150 der Coulomb-Energie (potentielle Energie) abgekühlt wird [60]. Bei den ersten Beobachtungen solcher Strukturen wurden Mg<sup>+</sup>-Ionen durch Dopplerkühlen auf die Kristallisationstemperatur von etwa 10 mK gebracht [30]. Bei diesen Temperaturen wie auch bei der durch Dopplerkühlung erreichbaren Minimaltemperatur von 1 mK kann die Bewegung der Ionen noch klassisch beschrieben werden.

Da auf der anderen Seite kristalline Ketten gespeicherter Ionen im Schwingungsgrundzustand der Falle als Register eines Quantencomputers vorgeschlagen wurden [61, 62], stellt sich die Frage, inwieweit die Methode des bichromatischen Seitenbandkühlens auch auf Ensembles mehrerer Ionen anwendbar ist. Bei den Untersuchungen zeigte sich, dass insbesondere die Endkappenfalle für die Speicherung von 2 Ionen geeignet ist. Die Speicherparameter wurden dafür in Richtung eines etwas flacheren Pseudopotentials abgeändert; die Fallenfrequenzen betragen in den beschriebenen Experimenten etwa 800 kHz in radialer und 1250 kHz in axialer Richtung. Die Kristallisationstemperatur wird dabei durch Laserkühlung mit einem um etwa 500 MHz verstimmten Kühllaser erreicht. Erste Experimente dazu wurden bereits 1994 veröffentlicht [63], ein Nachweis ultrakalter Temperaturen im Quantenbereich war damals jedoch noch nicht möglich. Zur Auflösung der Bewegungsseitenbänder und der Temperaturbestimmung muss der Kühllaser nach der Kristallisation der Ionenwolke auf den externen Resonator stabilisiert werden. Dabei ist darauf zu achten, dass während dieses Vorganges die Laserkühlung nicht unterbrochen wird, da sich der Kristall bereits innerhalb weniger Sekunden über die Schmelztemperatur aufheizen kann. Die Ursache für das schnelle Aufheizen liegt vermutlich in den Anharmonizitäten des Fallenpotentials.

Bei monochromatischer Anregung eines solchen Kristalls zeigen sich, wie in Abbildung 17 zu sehen, zahlreiche Mikrobewegungsseitenbänder. Da sich beide Ionen gegenseitig aus dem feldfreien Fallenzentrum abstoßen und ihre Ruhelage deshalb nicht mit dem Fallenzentrum übereinstimmt, kann die dadurch bedingte Mikrobewegung auch nicht durch externe Felder kompensiert werden. Durch die starke Sättigung erscheinen die Mikrobewegungsseitenbänder im Spektrum wesentlich höher, als dies aufgrund der Bewegung der Ionen zu erwarten wäre.

Um den Modulationsindex der Mikrobewegung zu bestimmen und damit zu überprüfen, ob die Bewegung der Ionen noch das Lamb-Dicke-Kriterium erfüllt, empfiehlt es sich, ein Kühlspektrum mit bichromatischer Anregung aufzunehmen, welches sowohl den Träger als auch das erste Mikrobewegungsseitenband umfasst. Da in diesem Fall eine Sättigung des Überganges ausgeschlossen werden kann, ist auch aus dem Vergleich der Absorption auf dem Träger mit der Absorption auf dem ersten Mikrobewegungsseitenband die Bewegungsamplitude der Ionen bestimmbar. Schätzt man dieses Verhältnis in Abbildung 18 auf 2:1 ab, so ergibt sich ein Modulationsindex von 0,6 und das Lamb-Dicke Kriterium kann als erfüllt betrachtet werden. Die bereits diskutierten Konzepte zur Temperaturbestimmung können daher auch auf den 2-Ionen Kristall übertragen werden. Bei einem berechneten Gleichgewichtsabstand der Ionen von 4,5  $\mu$ m ergibt sich eine Mikrobewegungsamplitude von 160 nm; dies könnte zu einem Modulationsindex von maximal 4,3 führen. Der hier gemessene kleinere



Modulationsindex deutet darauf hin, dass in Abbildung 18 die Kristallachse mit der Laserachse einen Winkel von 80° bildet.

In den darauffolgenden Experimenten konnte gezeigt werden, dass die Mikrobewegung und die Säkularbewegung hinreichend entkoppelt sind und eine Kühlung der Säkularbewegung in das Quantenregime trotz einer um vier Größenordnungen höheren Mikrobewegungsenergie möglich ist. Ähnliche Ergebnisse wurden auch bei der Kühlung zweier Be<sup>+</sup>- Ionen in einer elliptischen Paul-Falle erzielt [64]. Eine Kühlung mehrerer Ionen in den Grundzustand des Fallenpotentials konnte auch in linearen Fallen demonstriert werden, hier tritt entlang der Fallenachse keine Mikrobewegung auf [65, 66].

In Abbildung 19 ist in einer Überlagerung von 11 Einzelspektren das bichromatische Anregungsspektrum eines 2-Ionen Kristalls zu sehen. Bei der Auswertung dieses Spektrums ist zu berücksichtigen, dass bei einem räumlich ausgedehnten Kristall mehr Schwingungsmoden als bei einem punktförmigen Einzelion zu berücksichtigen sind. Neben den Schwerpunktsmoden  $\omega_x$ ,  $\omega_y$ ,  $\omega_z$  sind dies die Atmungsmode entlang



der Kristallachse mit der Frequenz  $\sqrt{3} \cdot \omega_x$  sowie zwei Moden einer Kippbewegung um den Schwerpunkt ("rocking mode") mit den Frequenzen  $\omega_{xy} = \sqrt{\omega_y^2 - \omega_x^2}$  sowie  $\omega_{xz} = \sqrt{\omega_z^2 - \omega_x^2}$ . Die Frequenz der Kipp-Mode in der Horizontalebene der Falle ist dabei kleiner als die natürliche Linienbreite des Kühlüberganges  $\Gamma$  und kann daher auch nur bis an die Dopplergrenze gekühlt werden. Die Frequenzen der anderen Freiheitsgrade erfüllen zwar die Bedingung der starken Bindung, liegen aber spektral so dicht beisammen, dass ihre individuelle spektrale Auflösung nicht möglich ist. Es kann daher nur eine über all diese Freiheitsgrade gemittelte Besetzungszahl  $\langle \bar{n} \rangle \approx 1.3$  aus diesem Spektrum ermittelt werden. Dieser Wert stellt lediglich eine obere Schranke dar, da die Bestimmung der Höhe der Seitenbänder im Anregungsspektrum durch das Rauschniveau begrenzt wird; im vorliegenden Fall reichen die Seitenbänder nicht über den Rauschpegel hinaus. Der Vorteil dieser Kühlmethode liegt erneut darin, dass die niedrigen Temperaturen als ein Gleichgewicht zwischen Kühlung und Heizung beliebig lange aufrechterhalten werden können, was bei Anwendungen gespeicherter Ionen im Bereich der Quantenlogik entscheidend sein kann. Da Indium selbst keine genügend langlebigen inneren Zustände besitzt, die für die Realisierung quantenlogischer Operationen erforderlich sind, wird am Max-Planck-Institut für Quantenoptik derzeit eine heterogene Kette aus Mg<sup>+</sup>- und In<sup>+</sup>-Ionen auf ihre Eignung als Register eines Quantencomputers untersucht. Die Indium-Ionen übernehmen dabei die Aufgabe des Kühlens und die Magnesium-Ionen die des Rechnens. Die ersten Ergebnisse sind dabei sehr vielversprechend [67].



# 4 Höchstauflösende Spektroskopie gespeicherter Indium-Ionen

Bereits in Abschnitt 1 wurde gezeigt, wie durch die Stabilisierung eines Lasers auf einen verbotenen Übergang eines einzelnen gespeicherten Ions ein Signal mit einer äußerst stabilen Ausgangsfrequenz erzeugt werden kann. Bevor ein optischer Übergang jedoch in diesem Sinne als Referenz eines Frequenzstandards eingesetzt werden kann, müssen seine spektroskopischen Eigenschaften möglichst genau untersucht werden. Ebenso muss ein Abtastlaser zur Verfügung gestellt werden, der die Auflösung der natürlichen Linienbreite des atomaren Referenzüberganges, oder zumindest für möglichst lange Anregungszeiten  $\tau$  eine fourierlimitierte Frequenzauflösung erlaubt. Dazu darf die Linienbreite dieses Lasers nicht wesentlich größer als 1 Hz sein. Die hier vorgestellten Ergebnisse sind dementsprechend unter dem Gesichtspunkt einer höchstauflösenden Spektroskopie zur Erarbeitung der Grundlagen einer neuen optischen Uhr zu sehen.

## 4.1 Atomphysik des Indium-Referenzüberganges

Die physikalischen Eigenschaften des  ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{0}$  Referenzüberganges im Indium-Ion wurden bereits in den ersten Arbeiten zu diesem Thema eingehend untersucht [48, 68]. Deshalb sollen diese hier nur kurz zusammengefasst werden.

Als  $J = 0 \rightarrow J = 0$  Übergang ist der Indium Referenzübergang zunächst in allen Multipolordnungen des Strahlungsfeldes verboten. Da das metastabile  ${}^{3}P_{0}$ -Niveau Beimischungen der  ${}^{3}P_{1}$ - und  ${}^{1}P_{1}$ -Niveaus enthält, besitzt das Dipol-Matrixelement  $\langle {}^{1}S_{0} | \vec{r} | {}^{3}P_{0} \rangle$  einen von Null verschiedenen Wert. Diese Beimischungen werden durch den magnetischen Dipolanteil der Hyperfeinwechselwirkung hervorgerufen. Will man das Übergangsmatrixelement und damit die Lebensdauer des metastabilen Niveaus berechnen, so ist zu beachten, dass im Fall des Indium-Ions die nur für leichte Atome streng gültige LS-Kopplung die Zustände nicht mehr korrekt beschreibt, sondern der Fall der intermediären Kopplung vorliegt. Auch der zur Kühlung verwendete  ${}^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{1}$ Interkombinationsübergang wird nur durch Beimischungen des  ${}^{1}P_{1}$ – Niveaus dipolerlaubt.

Mit den Kopplungskonstanten  $\alpha$  und  $\beta$  lassen sich die intermediär gekoppelten Zustände  $|{}^{3}P_{1}'\rangle$  und  $|{}^{1}P_{1}'\rangle$  durch die reinen LS-Zustände ausdrücken:

$$|{}^{3}P_{1}'\rangle = \alpha |{}^{3}P_{1}\rangle + \beta |{}^{1}P_{1}\rangle$$

$$|{}^{1}P_{1}'\rangle = -\beta |{}^{3}P_{1}\rangle + \alpha |{}^{1}P_{1}\rangle$$
(33)

Das durch die Beimischungen gestörte Niveau lässt sich über die Mischkoeffizienten  $\alpha_0$  und  $\beta_0$  dann entweder durch die intermediär gekoppelten Zustände oder die reinen LS-Zustände darstellen:

$$|{}^{3}P_{0}^{\prime}\rangle = |{}^{3}P_{0}\rangle + \alpha_{0}|{}^{3}P_{1}^{\prime}\rangle + \beta_{0}|{}^{1}P_{1}^{\prime}\rangle$$

$$= |{}^{3}P_{0}\rangle + (\alpha_{0}\alpha - \beta_{0}\beta)|{}^{3}P_{1}\rangle + (\alpha_{0}\beta + \beta_{0}\alpha)|{}^{1}P_{1}\rangle$$
(34)

Für die Kopplungs- und Mischkoeffizienten konnten folgende Werte ermittelt werden [48]:

$$\begin{array}{rcl}
\alpha &=& 0,997 & (35) \\
\beta &=& -0,079 & \\
\alpha_0 &=& -1,1 \cdot 10^{-3} & \\
\beta_0 &=& 3,5 \cdot 10^{-5} & \\
\end{array}$$

Man erhält damit folgendes Übergangsmatrixelement zwischen dem Grundzustand und dem gestörten metastabilen Niveau:

$$\langle {}^{1}S_{0}|\vec{r}|^{3}P_{0}'\rangle = \frac{(\alpha_{0}\beta + \beta_{0}\alpha)}{\beta}\langle {}^{1}S_{0}|\vec{r}|^{3}P_{1}'\rangle.$$
(36)

Damit lässt sich die Lebensdauer des metastabilen Niveaus  $\tau({}^{3}P_{0})$  leicht auf die Lebensdauer des  ${}^{3}P_{1}$ -Niveaus zurückführen und man erhält:

$$\tau({}^{3}P_{0}) = \left(\frac{\omega_{01}}{\omega_{02}}\right)^{3} \frac{\beta^{2}}{(\alpha_{0}\beta + \beta_{0}\alpha)^{2}} \cdot \tau({}^{3}P_{1}).$$

$$(37)$$

Dabei bezeichnen  $\omega_{01}$  und  $\omega_{02}$  die Übergangsfrequenzen des Kühl- und des Referenzüberganges. Die Lebensdauer des  ${}^{3}P_{1}$ -Niveaus wurde in [48] zu  $\tau({}^{3}P_{1}) = (0,44 \pm 0,04\mu s)$  bestimmt. Damit erhält man einen Wert für die Lebensdauer des  ${}^{3}P_{0}$ -Niveaus:

$$\tau({}^{3}P_{0}) = (0, 20 \pm 0, 03) \,\mathrm{s}$$
(38)

Zur experimentellen Bestimmung der Lebensdauer des  ${}^{3}P_{0}$ -Niveaus wird die Fluoreszenz auf dem Kühlübergang als Funktion der Zeit beobachtet. Nach einer Anregung des  ${}^{3}P_{0}$ -Niveaus kann erst nach dessen Zerfall wieder Fluoreszenz beobachtet werden, der zeitliche Verlauf der Fluoreszenz entspricht also einer Stufenfunktion. Fasst man viele dieser Stufenfunktionen zusammen, so ergibt sich eine exponentiell ansteigende Fluoreszenzkurve, aus der die mittlere Lebensdauer des  ${}^{3}P_{0}$ -Niveaus bestimmt werden kann. Die Abbildung 20 zeigt diesen exponentiellen Anstieg der Fluoreszenz über einen Zeitraum von 400 ms in einer Zusammenfassung von 14935 Anregungen. In den endgültigen experimentellen Wert gehen auch Anregungen ein, bei denen der Anstieg bis zu einer Sekunde verfolgt wurde. Mit über 20000 Anregungen erhält man für die Lebensdauer des metastabilen Niveaus  $\tau({}^{3}P_{0}) = (0,195 \pm 0,008)$  s [50, 69]. Dies stimmt exzellent mit der theoretischen Vorhersage überein, weicht aber von dem früher gemessenen Wert von  $\tau({}^{3}P_{0}) = (0,14 \pm 0,02)$  s ab [68]. Dieser alte Wert stützte sich jedoch nur auf die Auswertung von 150 Ereignissen und ist dementsprechend weniger genau.

Die Beimischungen zu dem metastabilen Niveau führen zu leicht unterschiedlichen *g*-Faktoren des  ${}^{1}S_{0}$  und des  ${}^{3}P_{0}$  Zustandes, was wiederum zu einem linearen Zeeman-Effekt des Referenzüberganges führt [68]:

$$g(^{3}P_{0}) = g(^{1}S_{0}) + \frac{\sqrt{8}}{\sqrt{3I(I+1)}}(\alpha_{0}\alpha - \beta_{0}\beta).$$
(39)



Der Unterschied zwischen den *g*-Faktoren des Grundzustandes und des metastabilen Niveaus beträgt nach dieser Rechnung  $\Delta g_{00} = (-3.5 \pm 0.2) \cdot 10^{-4}$ . Dieser lineare Zeeman-Effekt stellt die wichtigste systematische Verschiebung des Indium-Referenzüberganges dar, und um die angestrebte Genauigkeit von  $10^{-18}$  zu erreichen ist eine Kontrolle des Magnetfeldes bis auf wenige  $\mu G$  notwendig. Auf die experimentelle Bestimmung der Zeeman-Verschiebung des Referenzüberganges wird in Abschnitt 4.4 eingegangen.

## 4.2 Aufnahme höchstauflösender Spektren des Referenzüberganges

Die wesentlichen Komponenten der höchstauflösenden Spektroskopie wurden bereits im ersten Kapitel dieser Arbeit dargestellt. Nach den grundlegenden Vorschlägen von Dehmelt gab es in der Literatur einige Diskussionen, ob der Kühllaser und der Abtastlaser gleichzeitig oder abwechselnd eingestrahlt werden sollten. Es wurde aber bald klar, dass der Einfluss des Kühllasers auf den Referenzübergang so stark ist, dass höchstauflösende Spektren mit einer reproduzierbaren Resonanzfrequenz nur bei einer abwechselnden Einstrahlung der beiden Laser zu erreichen sind [70]. Die Anforderungen sind hierbei so hoch, dass die Extinktion bei elektronischen Schaltverfahren - etwa mit elektrooptischen Modulatoren - nicht ausreicht und die Laserstrahlen mit mechanischen Strahlunterbrechern geschaltet werden müssen.

Die zeitliche Sequenz zur Aufnahme der Spektren des Referenzüberganges ist in Abbildung 21 dargestellt.



Die Frequenz des Kühllasers bleibt dabei unverändert, als ideal erwies sich eine leicht rotverstimmte Einstrahlung mit großer Intensität [56]. Die Kühlgrenze der Seitenbandkühlung liegt zwar im Fall großer Laserintensitäten etwas höher, es kann jedoch neben einer akzeptablen Kühlung auch eine hohe Fluoreszenzemission erreicht werden. Dies ist für den Nachweis der Anregungen des metastabilen Niveaus unabdingbar. Ebenso stellte sich heraus, dass sich die Stabilität der Fluoreszenzemission noch steigern lässt, wenn man den Kühllaser auf die niederfrequente Flanke des ersten oder zweiten niederfrequenten Mikrobewegungsseitenbandes abstimmt. Die größere Verstimmung gegenüber dem Träger bewirkt eine effektivere Kühlung aus höheren Temperaturen, auf die das Ion während der Dunkelphasen aufgeheizt werden kann. Um trotzdem eine ausreichend hohe Fluoreszenzemission zu erhalten, wird das Ion minimal aus dem Fallenzentrum ausgelenkt, wodurch die Mikrobewegungsseitenbänder im Spektrum erhöht werden. Die Lamb-Dicke-Bedingung darf dabei jedoch nicht verletzt werden.

Nach einer Kühlphase wird der Kühllaser abgeschaltet und der Abtastlaser für typischerweise 10-15 ms eingestrahlt. Diese Zeitspanne muss lang genug sein, um gemäß dem Fourierlimit FWHM  $\approx 1/t_{Anr}$  die gewünschte Auflösung zu ermöglichen. Danach wird der Abtastlaser unterbrochen und für 40 ms der Kühllaser eingestrahlt. Wird in diesem Zeitintervall die übliche Fluoreszenzrate gemessen, so wird der Anregungsversuch durch den Abtastlaser als erfolglos gewertet, das Ion während der 40 ms erneut gekühlt und es wird ein erneuter Versuch der Anregung des metastabilen Niveaus unternommen. Die Frequenz des Abtastlasers kann dabei entweder variiert werden oder unverändert bleiben. Entspricht die Zählrate während dieses 40 ms-Intervalls jedoch der Dunkelzählrate, so wird der Anregungsversuch durch den Abtastlaser als erfolgreich betrachtet und ein Anregungsereignis in das Spektrum eingetragen. Vor einem erneuten Anregungsversuch mit dem Abtastlaser muss der Zerfall des metastabilen Niveaus abgewartet werden und das Ion erneut gekühlt werden. Dazu wird der Kühllaser 400 ms eingestrahlt. Tritt danach keine Fluoreszenzemission ein, so wird angenommen, dass sich das Ion zu stark aufgeheizt hat und die Aufnahme des höchstauflösenden Spektrums wird unterbrochen. Durch eine starke Rotverstimmung des Kühllasers um etwa 1 GHz kann das Ion wieder gekühlt und die Aufnahme der Spektren fortgesetzt werden.

## 4.3 Frequenzstabiler Abtastlaser

Der zur Aufnahme der Spektren verwendete frequenzstabile Abtastlaser soll an dieser Stelle nur kurz beschrieben werden. Ausführliche Beschreibungen sind in [71, 72, 73] zu finden. Die im Rahmen dieser Arbeit gezeigten Spektren wurden mit einem dreistufigen Aufbau gewonnen. Die erste Stufe besteht aus einem diodengepumpten Nd:YAG Laser bei 946 nm. Dieser wird auf einen hochstabilen Referenzresonator der Finesse 70 000 mittels des Pound-Drever-Hall-Verfahrens stabilisiert. Dabei können im Prinzip Laserlinienbreiten erreicht werden, die noch unterhalb der Schawlow-Townes Grenze für freilaufende Laser liegen. Die prinzipielle Grenze ist bei solchen aktiv geregelten Systemen durch das Photonen-Schrotrauschen des verwendeten Photodetektors gegeben. Es konnte bereits gezeigt werden, dass ein Laser relativ zu dem Referenzresonator auf Linienbreiten unter einem Hertz stabilisiert werden kann [53]. Das kritische Problem stellen jedoch durch Vibrationen des Referenzresonators hervorgerufene Längenschwankungen dar, die sich durch die Stabilisierungselektronik auf die Laserfrequenz übertragen. Erste Erfolge der Laserstabilisierung bis in den Bereich von 10 Hz nutzten daher die besondere Stabilität optischer Tische, die auf vom restlichen Gebäude getrennten Fundamenten stehen [74]. Das weltweit erste Lasersystem, dessen absolute Linienbreite im Bereich weniger Hertz liegt, wurde auf einem über mehrere Gummiseile an der Labordecke befestigten optischen Tisch realisiert [75]. Die hier vorgestellten Experimente wurden mit einem auf einem konventionellen Lasertisch montierten Aufbau durchgeführt, die Linienbreite des Lasers begrenzte deshalb auch die erreichbare spektroskopische Auflösung.



Zur Abstimmung des Lasers gegenüber dem Referenzresonator wird ein akustooptischer Modulator (AOM) in doppeltem Durchgang verwendet. Mit der zweifachen Freguenzverdoppelung im Anschluss an das Masterlasersystem bewirkt eine Frequenzänderung des Modulators um 1 Hz eine Frequenzänderung des auf das Ion eingestrahlten UV-Lichtes um 8 Hz. Es wurden zwei verschiedene Referenzresonatoren verwendet, die sich im wesentlichen hinsichtlich des Materials des Abstandhalters unterscheiden, auf den die hochreflektierenden Spiegel optisch kontaktiert sind. Dies ist einmal Zerodur, einmal ULE-Glas ("ultra low expansion"), welches bei Raumtemperatur den kleinsten thermischen Ausdehnungskoeffizienten aller bekannten Materialien aufweist. Eine aufwendige passive Isolierung sowie eine mehrstufige aktive Regelung stabilisieren die Temperatur bis auf wenige mK und minimieren so Längenänderungen während der Experimentierphase. Verbleibende Temperaturschwankungen führen dann zu einer Verschiebung der Modulatorfrequenz, die den Laser in Resonanz mit dem Indium-Übergang hält. In Abbildung 23 ist eine solche Drift der Resonanzfrequenzen mit der Zeit dargestellt. Die Richtung dieser Drift kann dabei von Messtag zu Messtag wechseln, es wurden auch Richtungswechsel während eines Messtages beobachtet.

Da der Masterlaser alle für die Stabilisierung notwendigen Elemente enthält, be-



sitzt dieser relativ hohe intrinsische Verluste und seine Ausgangsleistung ist für eine zweifache Frequenzverdoppelung nicht ausreichend. Aus diesem Grund wird das Licht des Masterlasers in einen zweiten sogenannten Slave-Laser injiziert, dessen Resonator auf das Licht des Masterlasers stabilisiert wird. Durch das sogenannte "injection locking" kann so die Linienbreite des Masterlasers auf den Slave-Laser übertragen werden [76]. Innerhalb dieses Resonators wird die erste Frequenzverdoppelung mit einem KNbO<sub>3</sub>-Kristall durchgeführt. In einem weiteren Überhöhungsresonator, der mittels des Hänsch-Couillaut Verfahrens auf die Frequenz des eingekoppelten Lichtes stabilisiert wird, findet in einem BBO-Kristall die zweite Frequenzverdoppelung statt.

Die Justage des Abtastlasers auf die Position des Ions kann nicht wie in Falle des Kühllasers durch Optimieren der Fluoreszenzemission erfolgen. Stattdessen wird das Licht des Abtastlasers über eine Strecke von mehreren Metern mit dem aus entgegengesetzter Richtung eingestrahlten Licht des Kühllasers überlagert und dann mit einer Linse der Brennweite f = 300 mm auf das Ion fokussiert. Die Größe des Fokusses kann wie auch im Falle des Kühllasers aus dem Abschneidebild des Lasers an den Fallenelektroden abgeschätzt werden und beträgt etwa  $(30 \times 40) \mu$ m. Da nach der Kühlphase

mit  $\sigma^+$ -polarisiertem Licht nur das  $m_F = 9/2$  Zeeman-Niveau des Grundzustandes besetzt ist und das  ${}^{3}P_{0}$ -Niveau ebenfalls den Gesamtdrehimpuls F = 9/2 besitzt, muss das Licht des Abtastlasers in  $\sigma^-$ -Polarisation eingestrahlt werden, um eine Anregung zu ermöglichen. Da die Orientierung des Ions durch die Ausbreitungsrichtung des Kühllasers gegeben ist, muss die Orientierung der Achsen der  $\lambda/4$ -Plättchen im Abtastlaserstrahl und Kühllaserstrahl gleich sein.

## 4.4 Auffinden des schmalen Referenzüberganges

Die Schwierigkeit des Auffindens eines Überganges mit einer Frequenzbreite von etwa 1 Hz wird deutlich, wenn man sich vergegenwärtigt, dass die Auflösung kommerzieller Wellenlängenmessgeräte im Bereich von etwa 100 MHz liegt. Eine genauere Vorabbestimmung der Wellenlänge des Abtastlasers kann wie schon beim Kühllaser im blauen Spektralbereich durch die Aufnahme von dopplerfreien Resonanzlinien des Tellur-Moleküls erfolgen. In Abbildung 24 ist die dopplerfreie Tellurlinie 4020 zu sehen [77]. Da die Eigenfrequenz der Tellurlinie jedoch nicht mit der halben Frequenz des Indium-Referenzüberganges übereinstimmt, ist nach der Bestimmung einer Tellurresonanz eine Neujustage des Abtastlasers notwendig, was einige Stunden in Anspruch nehmen kann. Die Frequenz des Abtastlasers kann so im UV auf etwa 10 MHz genau bestimmt werden.



Nimmt man an, dass die Frequenzbreite des Abtastlasers etwa 100 Hz beträgt, so kann dieser in Schritten von maximal 100 Hz abgestimmt werden ohne die Resonanz zu überspringen. In der Praxis wurden hier Frequenzschritte von 96 Hz gewählt, dies entspricht gerade 12 Hz Schritten mit dem doppelt durchlaufenen AOM bei 946 nm. Bei jeder Frequenz wird für den Anregungsversuch des Referenzüberganges und die darauffolgende Detektion einer möglichen Anregung ein Zeitintervall von etwa 50 ms benötigt. Diese Zeitspanne setzt sich aus einer Anregungszeit von 10 ms, einer Totzeit von 1 – 2 ms zwischen Abtastlaser- und Kühllasereinstrahlung, sowie einer Zeitspanne von 40 ms für die Detektion zusammen. Diese Zeitspanne ist nötig, um bei einer Fluoreszenzzählrate von etwa 500 Hz auf dem Kühlübergang und einer Dunkelzählrate von etwa 10 Hz sicher zwischen einem Hell- und einem Dunkelzustand des Ions unterscheiden zu können. In einer Sekunde kann so ein Frequenzintervall von 2 kHz abgefahren werden, für ein Frequenzintervall von 10 MHz sind dann mindestens 5000 Sekunden zu veranschlagen. Durch Instabilitäten des Abtastlasers oder des gespeicherten Ions kann sich diese Zeitspanne noch beliebig verlängern. Zusätzlich ist zu beachten, dass bei dieser relativ schnellen linearen Frequenzvariation von der Resonanzlinie nicht wesentlich mehr als ein Anregungsereignis zu erwarten ist. In der Praxis wurde daher nach jeder detektierten Anregung die Frequenz des Abtastlasers um 288 Hz zurückgestellt und ein weiterer Anregungsversuch bei derselben Frequenz unternommen. Nur wenn erneut Anregungen auftraten, wurde dieser Frequenzbereich genauer auf mögliche Resonanzlinien untersucht.

Das Spektrum des Referenzüberganges besteht nicht nur aus dem gesuchten Träger der Resonanz, sondern auch aus verschiedenen Bewegungsseitenbändern. Wie auch bei dem Kühlübergang treten dabei die Mikrobewegungsfrequenz  $\Omega$ , die Säkularfrequenzen  $\omega_{x,y,z}$  sowie die Kombinationsfrequenzen  $\Omega \pm \omega_{x,y,z}$  auf. Um trotz der relativ großen Frequenzschritte ein detektierbares Signal von dem Referenzübergang zu erhalten, wird die Intensität des Abtastlasers weit über die Sättigungsintensität erhöht. Dies führt andererseits dazu, dass neben den bereits genannten Fallenfrequenzen auch verschiedene Linearkombinationen der Fallenfrequenzen als Seitenbänder im Spektrum des Referenzüberganges auftreten. In Abbildung 25 sind alle während einer mehrstündigen Messung detektierten Resonanzlinien aufgetragen; bei einer Ausdehnung des untersuchten Frequenzbereiches ließen sich noch wesentlich mehr Linien finden. Man erkennt dabei, dass die Abstände der Linien nicht nur den einfachen Fallenfrequenzen, sondern auch Subharmonischen und verschiedenen Differenzfrequenzen zuzuordnen sind.

Um herauszufinden, ob es sich bei einer Linie tatsächlich um den Träger der Resonanz handelt, untersucht man, wie sich die Frequenz dieser Linie bei einer Variation der Fallenparameter verschiebt. Die Frequenz des Trägers ist selbstverständlich unabhängig von den Fallenparametern, die Frequenzen der Seitenbänder hängen jedoch von den  $a_r$  und  $q_r$  Parametern sowie der Fallenfrequenz  $\Omega$  ab. In Abbildung 26 ist die Verschiebung einer Linie bei einer Variation der Fallengleichspannung V von 30 V



auf 28 V bzw. 26 V sowie einer Variation der Fallenfrequenz  $\Omega$  von 10,02 MHz auf 10,03 MHz zu sehen. Da die Frequenz relativ zu dem Referenzresonator gemessen wird, beobachtet man zunächst eine zeitliche Verschiebung der Resonanzen, die auf eine Drift des Referenzresonators zurückzuführen ist. Dies ist in Abbildung 23 zu sehen. Diese Drift lässt sich jedoch üblicherweise durch ein Polynom 2. Ordnung modellieren, und man erkennt deutlich die Abweichung der durch veränderte Fallenparameter verschobenen Linien von der linearen Drift des Referenzresonators. Die beobachteten Linienverschiebungen deuten darauf hin, dass es sich bei dieser Linie um das Seitenband  $\Omega + 3\omega_r + 2\omega_z$  handelt.

Trotz der Möglichkeit, die einzelnen Seitenbänder durch ihre Frequenzverschiebung bei einer Variation der Fallenparameter zu identifizieren, bleibt diese Methode zeitlich sehr aufwendig und zudem sind die Resultate aufgrund der großen Zahl der Seitenbänder nicht immer eindeutig. Als wesentlich effizienter erwies sich stattdessen die Auswertung von Spektren, die unter gleichzeitiger Einstrahlung des Kühl- und des Abtastlasers gewonnen wurden.

Die Fluoreszenzemission eines V-förmigen drei-Niveau-Systems unter kontinuier-



licher Einstrahlung zweier Laser wurde in der Literatur ausgiebig auf die Frage hin diskutiert, ob auch in diesem System Sprünge der Fluoreszenzintensität auftreten. Cohen-Tannoudij konnte zeigen, dass auch hier Dunkelphasen der Fluoreszenz auftreten, wenn der zweite Laser in Resonanz mit dem schwachen Übergang ist [78]. Im Zeitmittel über viele Lebensdauern - in diesem Experiment zwei Sekunden - führt dies zu einem deutlichen Absinken der Fluoreszenzintensität. Entscheidend für die Nützlichkeit dieser Methode zum Auffinden des Referenzüberganges ist nun, dass die Anregungswahrscheinlichkeit auf dem schwachen Referenzübergang bei gleichzeitiger Einstrahlung des Kühllasers wesentlich geringer ist als bei abwechselnder Einstrahlung. Bei einer Laserleistung des Abtastlasers von 10  $\mu$ W, was etwa der 10<sup>7</sup>-fachen Sättigungsleistung entspricht, kann demnach nur der dopplerfreie Träger der Resonanz, der die stärkste Komponente im Spektrum bildet, angeregt werden. Die Linienbreite des Referenzüberganges ist in diesem Fall durch die um fünf Größenord-



nungen größere Linienbreite des Kühllasers gegeben, weshalb die Resonanzfrequenz in wesentlich größeren Frequenzschritten gesucht werden kann. In Abbildung 27 ist die Fluoreszenzemission bei gleichzeitiger Einstrahlung beider Laser in Abhängigkeit der Frequenz des Abtastlasers dargestellt.

Der Nachteil der Methode besteht nun darin, dass die in Abbildung 27 gemessene Resonanz nicht die ungestörte Resonanz des Referenzüberganges darstellt, sondern durch das Licht des Kühllasers in der Frequenz verschoben ist. Im sogenannten "dressed atom"-Bild führt die Wechselwirkung mit dem Kühllaser zu einer Aufspaltung des Grundzustandes in zwei Niveaus mit dem Abstand der effektiven Rabi-Frequenz  $\Omega_{eff} = \sqrt{\Omega^2 + \delta^2}$ . Dabei ist  $\Omega$  die resonante Rabi-Frequenz und  $\delta$  die Verstimmung des Kühllasers. Im Falle einer Verstimmung  $\delta$  ist die Besetzung dieser Niveaus nicht mehr gleich und man erhält nur eine frequenzverschobene Linie im Absorptionsspektrum des Abtastlasers. Da die Rabi-Frequenz proportional zum elektrischen Feld des eingestrahlten Lasers ist, hängt die Resonanzfrequenz des Referenzüberganges linear von der der Wurzel der Kühllaserleistung ab. Nimmt man mehrere Spektren mit unterschiedlicher Kühllaserleistung auf und trägt anschließend die Resonanzfrequenzen in Abhängigkeit der Wurzel der Kühllaserintensität auf, so kann man , wie in Abbildung 28 gezeigt, auf die ungestörte Resonanz des Referenzüberganges extrapolieren. Bei der



Extrapolation ist noch zu beachten, dass auch die Verstimmung des Kühllasers  $\delta$  zu einer Verschiebung der Resonanz des Referenzüberganges führt. Da diese Verstimmung nur mit einer Genauigkeit einiger 10 kHz bekannt ist, kann der Frequenzbereich für die Suche des ungestörten Referenzüberganges auch nicht weiter als dieser Wert eingegrenzt werden. Bei noch weiter erhöhten Intensitäten des Abtastlasers sind für dieses System interessante Quanten-Interferenzphänomene vorhergesagt worden [79].

Dennoch kann nach dieser Messung zügig mit der oben beschriebenen gepulsten Doppelresonanz der Träger des Referenzüberganges gefunden werden. Abbildung 29 zeigt die Kontrollmessung einer so gefundenen Resonanz auf etwaige Frequenzverschiebungen in Abhängigkeit der Fallenparameter.

## 4.5 Höchstauflösende Spektroskopie des Referenzüberganges

Um nun den Referenzübergang mit möglichst hoher Auflösung zu spektroskopieren, wird die Frequenz des Abtastlasers linear variiert, d.h. die Frequenz wird nicht mehr wie im Suchmodus nach einer Anregung zurückgestellt um diese zu überprüfen. Typische Schrittweiten reichen dabei im UV von 8 Hz mit einer Wiederholung pro Frequenz bis zu 8 Hz mit 4 Wiederholungen. Die exakte Bestimmug einer Scangeschwindigkeit



ist dennoch schwierig, da nach einer erfolgten Anregung eine längere Periode der Kühllasereinstrahlung folgt (400 ms) als nach einem erfolglosen Anregungsversuch (40 ms). Die Scangeschwindigkeit in der Linienmitte ist daher etwas geringer als in den Linienflügeln. Bei geringen Laserleistungen liegt die Anregungswahrscheinlichkeit jedoch unter 10% und man kann eine näherungsweise Scangeschwindigkeit aus den kurzen Wartezeiten ermitteln. Man erhält Geschwindigkeiten von etwa 130 Hz pro Sekunde bei schnellerer Scanweise; bei langsameren Scans entsprechend etwa 32 Hz pro Sekunde. Diese Geschwindigkeiten sind nun relativ zu dem Referenzresonator berechnet worden; zur Bestimmung der wahren Scangeschwindigkeit, die für die Ermittlung einer Linienbreite der Resonanzen notwendig ist, muss noch die Frequenzdrift des Referenzresonators berücksichtigt werden. Diese beträgt, wie in Abbildung 23 zu sehen ist im UV typischerweise 8 Hz pro Sekunde.

In Abbildung 30 ist ein hochauflösendes Spektrum des Referenzüberganges zu sehen. Die angelegte Scangeschwindigkeit beträgt in diesem Bild 32 Hz pro Sekunde bei einer linearen Resonatordrift von etwa -8 Hz pro Sekunde. Diese Drift ist in der Abbildung 30 noch nicht berücksichtigt. Da die Drift der Scanrichtung entgegengesetzt ist, ist die wahre Scangeschwindigkeit um diesen Betrag größer, die wahre Linienbreite



erhöht sich dann um das Verhältnis von Drift- zu angelegter Scangeschwindigkeit.

Theoretisch beträgt die Sättigungsintensität des Referenzüberganges für typische Fokusgrößen von  $(50 \times 50) \mu m^2$  und der Annahme eines monochromatischen Lasers nur etwa 1 pW. Für Laserleistungen im Bereich einiger Milliwatt, wie in Abbildung 30, erwartet man daher eine starke Sättigungsverbreiterung des Referenzüberganges. In Abbildung 31 ist die Zahl der Anregungen in einer Resonanz in Abhängigkeit von der Laserleistungen hin. Um Spektren ohne Sättigungsverbreiterung zu erhalten, muss die Leistung des Abtastlasers im Bereich einiger 10 nW liegen. Die endliche Laserlinienbreite im Bereich von etwa 100 Hz führt zu einer deutlich höheren Sättigungsintensität als der theoretische Wert von 1 pW.

Eine bestmögliche Auflösung des Referenzüberganges erreicht man bei kohärenter Anregung mit sogenannten  $\pi$ -Pulsen, die in der Resonanz eine Anregungswahrscheinlichkeit von 100% erzielen. Dafür muss die Dauer der Anregungspulse kürzer als die Kohärenzzeit des Lasers sein. Mit dem hier beschriebenen Laseraufbau ist eine kohärente Anregung nur bei Pulsdauern unter 1 ms zu erwarten; bei dieser Pulsdauer konnten jedoch keine Anregungen mehr nachgewiesen werden.

Bei einer Laserleistung von 35 nW, wie in Abbildung 32, sind pro Spektrum nur



noch etwa 10 Anregungen zu erwarten, was die Bestimmung einer Linienbreite schwierig macht. Deshalb wurden bei gleichen Parametern 20 Spektren aufgenommen und anschließend überlagert, um so eine genügend hohe Zahl an Anregungen zu erhalten. Bei dieser Überlagerung ist darauf zu achten, dass die Drift des Referenzresonators korrekt berücksichtigt wird, da sonst das resultierende Spektrum künstlich verbreitert wird. Dafür wird zunächst die Resonanzfrequenz jedes einzelnen Spektrums durch Anpassung einer Lorentz-Kurve ermittelt und danach werden die einzelnen Kurven überlagert. Die Form der einzelnen Spektren ist dabei nicht zwingend lorentzförmig, sondern reflektiert die Frequenzfluktuationen des Abtastlasers. Eine Anpassung an eine Gauß-Funktion liefert dabei keine signifikant anderen Werte. Die gesamte Messzeit für die 20 Spektren betrug etwa 20 Minuten. Das überlagerte Spektrum wird dann um den linearen Anteil der Resonatordrift bereinigt und an eine Lorentzkurve angepasst. Die volle Breite bei halber Höhe dieser Lorentzkurve beträgt 170 Hz, was einer spektralen Auflösung  $\delta \nu / \nu$  von 1,3 × 10<sup>-13</sup> entspricht. Als weitere Bestätigung für die erreichte spektrale Auflösung kann die Beobachtung dienen, dass 50 % der Anregungen innerhalb eines spektralen Fensters von 200 Hz liegen.

#### 4.5.1 Allan-Varianz des Indium-Frequenznormals

Im vorangegangenen Abschnitt wurde der Indium-Referenzübergang mit den Begriffen der optischen Spektroskopie diskutiert. In diesem Abschnitt soll nun kurz erörtert



werden, wie sich die erzielten Ergebnisse in das Begriffsgerüst der Frequenznormale, wie es im ersten Kapitel eingeführt wurde, übersetzen. Von besonderem Interesse ist dabei die Allan-Varianz  $\sigma_y(\tau = 1 \text{ sec})$ , die das beschriebene System aufweisen würde, wenn man es als Frequenznormal, d.h. mit einem auf den Referenzübergang stabilisierten Laser betreiben würde. Dabei sind folgende Punkte zu beachten:

- Die Gleichung (7) wurde unter der Annahme einer fourierlimitierten Anregung gewonnen. Dies ist in dem in Abbildung 32 gezeigten Spektrum nicht der Fall. Nimmt man an, dass die beobachtete Auflösung etwa der Laserlinienbreite entspricht, so müsste die Anregungszeit unter einer Millisekunde liegen, um die Bedingungen einer fourierlimitierten Anregung zu erfüllen.
- Mit einer Linienbreite von 170 Hz kann die Allan-Varianz des Abtastlasers auf  $\sigma_y(\tau = 1 \text{ sec}) = 10^{-13}$  abgeschätzt werden. An dem Indium Ion war jedoch eine Mittelungszeit von einigen Minuten erforderlich, um eine vergleichbar hohe spektroskopische Auflösung zu erhalten, aus der ein Fehlersignal zur aktiven Frequenzregelung des Lasers gewonnen werden kann. Dies ist etwa die Zeit, die benötigt wird, um ein einzelnes Spektrum mit etwa 10 Anregungen aufzunehmen, die dann in das überlagerte Spektrum von Abbildung 32 eingehen. Auf diesen Zeitskalen zeigt der Laser jedoch bereits eine deutliche Frequenzdrift, so

dass seine Allan-Varianz zunimmt, falls keine Driftkompensation vorgenommen wird.

• In den Erläuterungen zu Gleichung (7) wird darauf hingewiesen, dass das Signalzu-Rausch-Verhältnis bei der Abfrage eines Referenzüberganges in einem Einzelion nicht größer als 1 sein kann. Das Erreichen des Wertes 1 setzt aber voraus, dass auf der Resonanz mit fourierlimitierten Anregungspulsen über einen  $\pi$ -Puls mit einer Wahrscheinlichkeit von 100% das metastabile Niveau angeregt werden kann. In unserem Fall beträgt die maximale Anregungswahrscheinlichkeit jedoch nur etwa 10%, wodurch die Kurzzeitstabilität entsprechend herabgesetzt wird.

Die Angabe eines Wertes für  $\sigma_y(\tau = 1 \text{ sec})$  ist schwierig, da einerseits bestimmt werden muss, ab welchem Zeitpunkt die Stabilisierung des Lasers auf den Referenzübergang die aktive Frequenzregelung übernehmen kann, andererseits der Einfluss der relativ geringen Anregungswahrscheinlichkeit abgeschätzt werden muss; insgesamt erscheint aber ein Wert  $\sigma_y(\tau = 1 \text{ sec}) > 10^{-12}$  realistisch. In künftigen Messungen muss nun versucht werden, mit einer erhöhten Laserintensität und kleinerer Laserlinienbreite fourierlimitierte Anregungspulse zu erzeugen und auf dem Referenzübergang  $\pi$ -Pulse mit einer hohen Anregungswahrscheinlichkeit zu beobachten.

## 4.6 Systematische Verschiebungen des In<sup>+</sup> Referenzüberganges

Neben der Stabilität, die in der Allan-Varianz zum Ausdruck kommt, ist die Genauigkeit die zweite entscheidende Größe zur Charakterisierung der Qualität eines Frequenznormals. Die Genauigkeit bezeichnet dabei die Fehlergrenzen, innerhalb derer die gemessene Frequenz mit der ungestörten atomaren Übergangsfrequenz übereinstimmt. Die Genauigkeit wird dabei von den durch externe Störeffekte hervorgerufenen Frequenzverschiebungen bestimmt, daher ist die Empfindlichkeit des Referenzüberganges auf solche Störeffekte von entscheidender Bedeutung. In Abschnitt 4.1 wurde bereits der Einfluss des linearen Zeeman-Effektes diskutiert, der den größten Beitrag zu den möglichen Frequenzverschiebungen eines Indium-Frequenznormals liefert.

#### 4.6.1 Transversale Magnetfeldkompensation

Bevor die Magnetfeldabhängigkeit des Referenzüberganges genau untersucht werden kann, müssen zunächst definierte Bedingungen geschaffen werden, das heißt, vorhandene Magnetfelder müssen so gut wie möglich kompensiert werden. Die Kompensation der transversalen Felder kann auf dem Kühlübergang durch Beobachtung des Hanle-Effektes [80] des Grundzustandes [81] erfolgen. Man regt dabei wie in den in Abschnitt 3 gezeigten Kühlspektren die  ${}^{1}S_{0}$ ,  $F = 9/2 \rightarrow {}^{3}P_{1}$ , F = 11/2 Komponente mit  $\sigma^{+}$  polarisiertem Licht an und induziert dabei  $\Delta m_{F} = +1$ -Übergänge. Falls keine magnetischen Felder am Ort der Ionen vorhanden sind, kann dieser Prozess fortgesetzt werden, bis die gesamte Population in das  $m_{F} = 9/2$ -Unterniveau des Grundzustandes gepumpt ist. Der  $m_{F} = 9/2 \rightarrow m_{F} = 11/2$  Übergang ist innerhalb der Zeeman-Mannigfaltigkeit der stärkste Übergang [48], weshalb bei vollständigem optischen Pumpen auch die stärkste Fluoreszenzemission beobachtet werden kann. Im Falle eines Magnetfeldes wird dieser Prozess des optischen Pumpens nun gestört. Die durch das optische Pumpen erzeugten magnetischen Dipole präzedieren mit der Larmor-Frequenz  $\omega_L$  um die Feldachse. Stimmt diese nicht mit der Richtung des Laserstrahls überein, so erscheinen die Atome in Richtung des Laserstrahles in einer Superposition der verschiedenen  $m_F$ -Niveaus. Ist die Zeit zwischen den Anregungen wesentlich länger als eine Periode der Larmor-Frequenz, so geht die magnetische Ausrichtung völlig verloren, und es findet kein optisches Pumpen statt. Die Fluoreszenzemission ist in diesem Fall um den Faktor 2,5 geringer. Dieser Anstieg der Fluoreszenz bei verschwindendem Magnetfeld lässt sich als Nullfeldresonanz an gespeicherten Ionen beobachten.

Da die Empfindlichkeit einer Hanle-Resonanz von der Lebensdauer des betrachteten Zustandes abhängt, können mit dem Hanle-Effekt des Grundzustandes sehr schmale Nullfeldresonanzen gewonnen werden. Dies wurde bereits für die Realisierung extrem empfindlicher Magnetometer im Nanogauss-Bereich ausgenutzt [82]. Mit zunehmender Sättigung des Überganges nimmt die Zeit zwischen den Anregungen und damit die Lebensdauer des Grundzustandes ab, weshalb es sich empfiehlt, den Hanle-Effekt an einer puffergasgekühlten Ionenwolke durchzuführen. So können trotz geringer Sättigung relativ hohe Zählraten erzielt werden. Eine gute Kompensation der statischen Felder kann nur durch eine mehrfache iterative Durchführung des Kompensationsvorganges erreicht werden, da die Breite der Nullfeldresonanz in einer Richtung zunimmt, wenn senkrecht dazu noch Felder vorhanden sind.

#### 4.6.2 Eichung der Spulen in Laserstrahlrichtung

Nach der Kompensation des Magnetfeldes transversal zur Ausbreitung des Laserstrahles muss noch das Magnetfeld der Spulen in Laserstrahlrichtung geeicht werden. An diese soll ein definiertes Feld angelegt werden und so die Magnetfeldabhängigkeit des Referenzüberganges untersucht werden. Dies kann mit der Methode der radiofrequenz-optischen Doppelresonanz erfolgen, die in Abbildung 34 schematisch erläutert ist. Die Methode ist ähnlich den ersten Doppelresonanzexperimenten von Brossel und Bitter, in denen eine Veränderung der Besetzung der  $m_F$ -Unterniveaus des angeregten Zustandes durch ein RF-Feld anhand einer Änderung der Polarisation der Resonanzfluoreszenz nachgewiesen wurde [83]. Die Experimente hier folgen einem Vorschlag von Dehmelt zur Änderung der Absorption polarisierten Lichtes in einer Gaszelle durch Manipulation der Besetzung der  $m_J$  Niveaus des Grundzustandes eines  $J = 1/2 \rightarrow J = 1/2$  Überganges [84].

Im Indium-Ion verwendet man die  $F = 9/2 \rightarrow F = 9/2$  Komponente des Kühlüberganges in einer puffergasgekühlten Ionenwolke. Bei Einstrahlung von  $\sigma^+$ -polarisiertem Licht wird die gesamte Besetzung des Grundzustandes in das  $m_F = 9/2$ -Unterniveau gepumpt. Da im angeregten Zustand kein Niveau mit  $m_F = 11/2$  zur Verfügung



steht, kann keine Fluoreszenz mehr emittiert werden. Eine Detektion des Überganges mit linear polarisiertem Licht ist aber möglich und kann dazu benutzt werden, die Laserfrequenz auf die Resonanz abzustimmen. Legt man ein Magnetfeld  $B_z$  in Laserstrahlrichtung an, so spalten die  $m_F$ -Unterniveaus des Grundzustandes um den Betrag  $\Delta E = g\mu_B B$  auf. Der g-Faktor des Indium-Kerns ist aus einer NMR-Messung sehr genau bekannt [85], die Aufspaltung des Grundzustandes kann daher zu 930 Hz/G berechnet werden.

Man kann diese Aufspaltung nun messen, indem man mit den Kompensationsspulen senkrecht zur Laserstrahlrichtung ein magnetisches Wechselfeld einstrahlt. Mit diesem können direkte Übergänge zwischen den  $m_F$ -Unterniveaus des Grundzustandes induziert werden, falls die Frequenz des Wechselfeldes gerade in Resonanz mit der Aufspaltung des Grundzustandes ist. Die Übergänge zwischen den  $m_F$  Unterniveaus führen dazu, dass auch für das eingestrahlte Lichtfeld Übergänge mit  $\Delta m_F = 1$ wieder möglich werden, was zu einem Anstieg der Fluoreszenzemission führt.

In Abbildung 35 sind Messungen zur RF-optischen Doppelresonanz bei vier verschiedenen Frequenzen des magnetischen Wechselfeldes zu sehen. Die Variation des Magnetfeldes  $B_z$  führt dann zu dem beschriebenen Anstieg der Fluoreszenz, wenn die Bedingung  $\hbar\omega_{RF} = g\mu_B|B|$  erfüllt ist. Zusätzlich zu den radiofrequenz-optischen Doppelresonanzen tritt eine Nullfeldresonanz auf. Da die Spule, an die das Radiofrequenzfeld angelegt wird, nicht mehr zur Kompensation des Erdmagnetfeldes zur Verfügung steht, ist in diesen Experimenten eine zusätzliche transversale Feldkom-



ponente vorhanden. Bei einem starken angelegten Feld in Laserstrahlrichtung kann dieses transversale Feld vernachlässigt werden. Verschwindet dagegen das Feld in Strahlrichtung, so präzediert das magnetische Moment der ausgerichteten Ionen um das transversale Feld. Analog zu dem im vorherigen Abschnitt beschriebenen Hanle-Effekt des Grundzustandes führt dies zu einer Depolarisation des Grundzustandes und optische Übergänge mit  $\Delta m_F = +1$  werden wieder möglich.

Trägt man nun, wie in Abbildung 36, die gemessene Aufspaltung der  $m_F$ -Niveaus in Abhängigkeit des angelegten Spulenstromes auf, so kann der Spulenstrom in ein Magnetfeld umgerechnet und so die verwendete Spule geeicht werden. In diesem Fall beträgt der Eichfaktor (200 ± 2) mA/G. In [48] wird beschrieben, wie auch auf der  $F = 9/2 \rightarrow F = 11/2$  Komponente des Kühlüberganges RF-optische Doppelresonanzmessungen durchgeführt werden können.

#### 4.6.3 Zeemanverschiebung des Referenzüberganges

In Abschnitt 4.1 wurde bereits das Zustandekommen eines linearen Zeeman-Effektes zwischen zwei Zuständen mit gleichem Gesamtdrehimpuls J = 0 erklärt. Für die Messung des Zeeman-Effektes der  $m_F = 9/2 \rightarrow m_F = 7/2$  Komponente wird über die zuvor geeichten Spulen ein definiertes Magnetfeld in Laserstrahlrichtung angelegt. Um die Verschiebung des Referenzüberganges durch das Magnetfeld von der Drift des Referenzresonators unterscheiden zu können, muss zunächst über mehrere Spektren hinweg die Drift des Referenzresonators verfolgt werden. Danach werden ein oder mehrere Spektren mit angelegtem Magnetfeld aufgenommen; anschließend wird wieder ein Spektrum ohne Magnetfeld zur Kotrolle der Resonatordrift aufgenommen.



Die Drift des Referenzresonators kann so zwischen den unverschobenen Spektren interpoliert werden und man kann die Verschiebung gegenüber der Interpolationskurve bestimmen.

Die in Abbildung 37 gezeigten Messpunkte wurden über einen Zeitraum von 18 Monaten gewonnen. Innerhalb dieses Zeitraumes wurden bei einer Öffnung der Vakuumkammer die Feldspulen einmal komplett ab- und wieder aufgebaut und anschließend neu geeicht. Dennoch liegen alle Messpunkte auf einer Geraden, was die Genauigkeit der oben beschriebenen Eichmessung bestätigt. Die gemessene lineare Verschiebung von  $(-636 \pm 27)$  Hz/G führt zu einem *g*-Faktor von  $g(^{3}P_{0}) = (-9.87 \pm 0.05) \cdot 10^{-4}$ für das metastabile Niveau oder zu einem Unterschied zwischen den *g*-Faktoren von  $\Delta g_{00} = (-3.2 \pm 0.05) \cdot 10^{-4}$ , was in guter Übereinstimmung mit dem berechneten Wert liegt [68].

Um die Magnetfeldabhängigkeit des Referenzüberganges zu reduzieren, kann daran gedacht werden, die  $|m_F = \pm 1/2\rangle \rightarrow |m_F = \pm 1/2\rangle$  Komponenten des Refe-



renzüberganges zu benützen, die eine kleinere Verschiebung von  $\pm 224$  Hz/G zeigen und symmetrisch um eine unverschobene Mittelfrequenz aufspalten. Es ist aber noch zu klären, ob auch auf diesem Übergang eine genügend hohe Anregungsrate für die optisch-optische Doppelresonanz erreicht werden kann. In jedem Fall wird ein Frequenzstandard auf der Basis eines einzelnen Indium-Ions eine mehrstufige  $\mu$ -Metall Abschirmung zur Kontrolle des Magnetfeldes auf wenige  $\mu$ G beinhalten müssen.

## 4.6.4 Weitere systematische Linienverschiebungen

Über weitere Linienverschiebungen, die die erreichbare Genauigkeit eines Indium-Frequenznormals begrenzen, können zum gegenwärtigen Zeitpunkt nur Abschätzungen vorgenommen werden, da die Verschiebungen wesentlich kleiner als die momentane spektroskopische Auflösung sind. Detailliertere Rechnungen zu den einzelnen Verschiebungen sind in [57, 86] zu finden:

• Doppler-Effekt:

Im Lamb-Dicke Bereich führt der Dopplereffekt erster Ordnung im Spektrum zu diskreten Seitenbändern im Abstand der Oszillationsfrequenzen. Diese können aber spektroskopisch aufgelöst und der in erster Ordnung dopplerfreie Träger



kann eindeutig identifiziert werden. Der Dopplereffekt zweiter Ordnung führt zu einer Verschiebung der Resonanz und skaliert im Falle der Säkularbewegung mit der Temperatur des Ions, im Falle der Mikrobewegung mit der verbleibenden nicht kompensierten Bewegungsamplitude. Mit den in Abschnitt 3 erreichten Werten liegt die relative Verschiebung für beide Bewegungstypen unter 10<sup>-18</sup>.

• Elektrische Felder:

Bei der Verschiebung durch elektrische Felder ist vor allem die Wechselwirkung des Referenzüberganges mit dem Fallenfeld zu berücksichtigen. Im Zeitmittel verschwindet das elektrische Feld der Falle an jedem Ort, das Zeitmittel des Quadrates des Feldes verschwindet jedoch nicht und skaliert mit dem Quadrat der Entfernung vom Fallenzentrum. Dies führt zu einem quadratischen Stark-Effekt in Abhängigkeit der kinetischen Restenergie des Ions. Durch Vergleich mit dem isoelektrischen neutralen Cd-Atom kann die elektrische Polarisierbarkeit des Indium-Ions abgeschätzt werden, wobei im Falle des positiv geladenen Indium Ions die Elektronen fester an den Kern gebunden sind und die Polarisierbarkeit damit kleiner ist. Bei den erreichbaren Temperaturen und Mikrobewegungsamplituden beträgt die relative Frequenzverschiebung weniger als 10<sup>-20</sup>.

Bei den in anderen Arbeitsgruppen ebenfalls untersuchten alkali-ähnlichen Ionen tritt eine Wechselwirkung des Quadrupolmomentes der *D*-Niveaus mit dem stati-

schen Feldgradienten der Falle auf. Im Quecksilber Ion konnten so bereits in einer linearen Falle Verschiebungen von +12 Hz und -27 Hz gemessen werden, wenn der Referenzübergang in verschiedenen Richtungen spektroskopiert wurde [26]. In sphärischen Fallen kann zwar ohne statische Feldanteile gearbeitet werden, es können jedoch Probleme mit Feldern auftreten, die zur Kompensation der Mikrobewegung verwendet werden. Im Falle des Indium-Ions ist dieser Effekt aufgrund des verschwindenden Drehimpulses der Elektronenhülle in dem  ${}^{3}P_{0}$ -Niveau nur vom Kerndrehimpuls bestimmt und damit um viele Größenordnungen kleiner. Dies könnte sich als der entscheidende Vorteil eines Indium-Frequenznormals gegenüber den auf alkali-ähnlichen Ionen basierenden Varianten erweisen. In letzter Zeit wurde vorgeschlagen, durch Verwendung eines Isotops mit Gesamtdrehimpuls F = 0 die Quadrupolverschiebung des metastabilen *D*-Niveaus in alkali-ähnlichen Ionen zu umgehen [87]. Die Konsequenzen, die sich aus dem notwendigen Wechsel der Feinstrukturkomponente des Referenzüberganges ergeben, sind aber bisher nicht eingehend diskutiert worden.

• Lichtverschiebungen:

Die Verschiebung des Referenzüberganges mit dem eingestrahlten Kühllaserlicht wurde in den vergangenen Abschnitten bereits untersucht. Um jedwede Verschiebung zu vermeiden, muss der Kühllaser während der Abfrage des Referenzüberganges mechanisch unterbrohen und die Falle möglichst vollständig von Streulicht abgeschirmt werden. Die thermische Strahlung bei einer Fallentemperatur von 300 K führt zu einer Linienverschiebung im Bereich  $5 \cdot 10^{-17}$ . Diese Verschiebung kann jedoch durch eine Kontrolle der Fallentemperatur konstant gehalten werden und eine Temperaturregelung der Falle auf  $\pm 1$  K reduziert die Unsicherheit dieser Verschiebung unter  $10^{-18}$ .

Insgesamt sind die erwarteten Verschiebungen so klein, dass ein Frequenzstandard mit einer Genauigkeit von  $10^{-18}$  auf Basis eines einzelnen gespeicherten Indium-Ions möglich erscheint.

## 5 Absolutfrequenzmessung des Indium-Referenzüberganges

In den bisher vorgestellten Messungen zur höchstauflösenden Spektroskopie wurden die Resonanzfrequenzen entweder bezüglich des Referenzresonators angegeben oder um die Linienmitte zentriert. Die Messung der Absolutfrequenz erfordert einen hohen experimentellen Aufwand, da sie den Vergleich einer Frequenz im optischen Spektralbereich (etwa 10<sup>15</sup> Hz) mit der um viele Größenordnungen kleineren Frequenz der Cäsium-Uhr (9,2 GHz) erfordert. Anstelle einer Cäsium-Uhr können auch andere, zuvor mit Hilfe der Cäsium-Uhr geeichte Transferstandards verwendet werden. Dennoch muss für die Verwendung als Frequenznormal die Absolutfrequenz des Indium-Referenzüberganges möglichst genau bekannt sein. Der Betrieb einer optischen Uhr erfordert darüber hinaus eine kontinuierliche Anzeige der Zeit, also das Herunterteilen der optischen Frequenz in einen elektronisch zähl- und verarbeitbaren Bereich.

Die experimentellen Techniken des Messens und Herunterteilens optischer Frequenzen konnten in den letzten Jahren zum Teil erheblich vereinfacht werden. In den ersten Messungen optischer Frequenzen wurden sogenannte harmonische Frequenzketten eingesetzt, die auf der fortgesetzten Frequenzverdoppelung einer Mikrowellenfrequenz bis in den optischen Frequenzbereich basieren. Dafür sind eine Reihe von Transferoszillatoren erforderlich, die gleichzeitig aktiv aufeinander stabilisiert werden müssen, was einen erheblichen experimentellen Aufwand bedeutet [88, 89]. Darüber hinaus sind Aufbauten harmonischer Frequenzketten für die Messung lediglich einer optischen Frequenz geeignet, die Messung benachbarter optischer Frequenzen erfordert in der Regel komplett neue Aufbauten.

Eine deutliche Vereinfachung dieser Methode konnte durch die Verwendung sogenannter optischer Frequenzteilerstufen erreicht werden. Dabei wird das Konzept der harmonischen Ketten sozusagen umgekehrt und große, optische Frequenzintervalle werden sukzessive bis in den elektronisch zählbaren Bereich heruntergeteilt. Typischerweise werden die Frequenzintervalle dabei schrittweise halbiert [90, 91], es wurden aber auch Teilerstufen entwickelt, die Frequenzintervalle in drei gleiche Teile dividieren [92].

Der größte Fortschritt ergab sich aber durch die Verwendung optischer Frequenzkämme, die eine kontinuierliche Folge optischer Frequenzen in jeweils festem Abstand zueinander erzeugen. Dieser Frequenzkamm kann dann als Lineal im Frequenzraum zur Abmessung großer Frequenzintervalle verwendet werden. Die ersten Frequenzkämme basierten noch auf der Phasenmodulation in elektrooptischen Modulatoren, wobei die aufmodulierten Seitenbänder in einem externen Resonator überhöht wurden. Entspricht der freie Spektralbereich dieses Resonators gerade der Modulationsfrequenz des Phasenmodulators, so kann auf diese Weise ein breiter Frequenzkamm erzeugt werden [93, 94]. Noch weiterreichende Frequenzkämme können durch modengekoppelte Femtosekundenlaser erzeugt werden, die eine kontinuierliche Folge kurzer Pulse mit konstantem zeitlichen Abstand erzeugen [95, 97]. Im Frequenzraum führt dies zu einer kontinuierlichen Folge diskreter Frequenzen im Abstand des inversen Pulsabstandes, wobei der Frequenzabstand  $\omega_r$  der einzelnen Kamm-Moden auf ein Cäsium-Frequenznormal stabilisiert werden kann. Extrapoliert man diesen Frequenzkamm bis zum Nullpunkt der Frequenzachse, so ist die Frequenz der dem Nullpunkt nächsten Mode  $\omega_0$  durch die Dispersion der Gruppengeschwindigkeit im Laserresonator bestimmt. Die Frequenz  $\omega_n$  einer beliebigen Mode ist dann  $\omega_n = n\omega_r + \omega_0$ , wobei  $\omega_0$  immer noch durch Vergleich einer Kamm-Mode mit einer bekannten optischen Frequenz gemessen werden muss [96].

Durch die Verwendung mikrostrukturierter Fasern ist es kürzlich gelungen, Frequenzkämme auf eine Breite von über einer Oktave auszudehnen. Auf diese Weise kann auch  $\omega_0$  auf einfache Weise bestimmt werden, indem die Schwebungsfrequenz zwischen der zweiten Harmonischen einer niederfrequenten Kamm-Mode ( $2 \cdot (n\omega_r + \omega_0)$ ) und der nächstgelegenen hochfrequenten Kamm-Mode ( $2n\omega_r + \omega_0$ ) gemessen wird. Der Frequenzkamm kann so zur Messung beliebiger Frequenzen im gesamten optischen Spektrum eingesetzt werden [97, 98, 99].

In dieser Arbeit wurden die Fortschritte auf dem Gebiet der optischen Frequenzmessung durch zwei Messungen der Absolutfrequenz des Indium-Referenzüberganges mit fortschreitender Genauigkeit ausgenutzt. Dabei konnte mit der Institut für Laserphysik in Novosibirsk sowie der Gruppe für Laserspektroskopie am Max-Planck-Institut für Quantenoptik in Garching sehr erfolgreich zusammengearbeitet werden.

#### 5.1 Absolutfrequenzmessung mit Hilfe einer Iodzelle

### 5.1.1 Messaufbau

Diese erste Absolutfrequenzmessung des Indium Referenzüberganges beinhaltet alle oben vorgestellten Techniken der optischen Frequenzmessung [100]. Am niederfrequenten Ende der Frequenzkette steht ein methanstabilisierter HeNe-Laser [101], dessen Frequenz mehrfach an der PTB in Braunschweig gegenüber einer Cäsium-Uhr geeicht worden war. Dieser Laser emittiert bei einer Wellenlänge von 3,39  $\mu$ m und wird zunächst zweimal in seiner Frequenz verdoppelt. Dabei kommen ein Farbzentrenlaser bei 1,69  $\mu$ m und ein Diodenlaser bei 848 nm als Transferoszillatoren zum Einsatz.

Diese Frequenz soll nun mit der Fundamentalfrequenz des Abtastlasers bei 946 nm, dessen vierte Harmonische den Indium-Referenzübergang anregt, verglichen werden. Zur Überbrückung dieses Frequenzintervalles wird zunächst eine optische Frequenzteilerstufe eingesetzt. Dabei wird die Schwebungsfrequenz zwischen der zweiten Harmonischen des Indium-Abtastlasers (2 $f_3$ )und der Summenfrequenz eines Nd:YAG-Lasers bei 1064 nm ( $f_1$ ) mit einem Diodenlaser bei 852 nm ( $f_2$ ) auf einen Lokaloszillator ( $f_{LO}$ ) stabilisiert.

Insgesamt ist zwischen diesen Frequenzen stets die Bedingung  $2f_3 = f_1 + f_2 + f_{LO}$ erfüllt. Der Nd:YAG-Laser bei 1064 nm ist dabei über seine zweite Harmonische mittels dopplerfreier Sättigungsspektroskopie auf die  $a_{10}$  Hyperfeinkomponente des R(56)32-0 Überganges in molekularem Iod stabilisiert. Die verbleibende Frequenzlücke von 1,433 THz zwischen den Diodenlasern bei 852 nm und 848 nm wird zuletzt mit einem



$f_{HeNe}$	88 376 182 599 937 Hz
$f_{LO}$	831 500 000 Hz
$f_{mod}$	6 341 800 000 Hz
$f_{Iod}$	563 260 223 471 000 Hz

Tabelle 2: Numerische Werte der zur Auswertung der Frequenzkette erforderlichen Frequenzen.

Frequenzkammgenerator überbrückt, der auf der Phasenmodulation in einem elektrooptischen Modulator beruht. Dieses Intervall entspricht bei einer Modulationsfrequenz  $f_{mod}$  von 6341,8 MHz gerade 226 Moden. In Abbildung 38 ist der Aufbau dieser Frequenzkette nochmals schematisch zusammengefasst. Insgesamt besteht zwischen der Frequenz des Indium-Referenzüberganges  $f_{In}$ , der Frequenz des HeNe-Lasers  $f_{HeNe}$ , der Schwebungsfrequenz  $f_B$  und der Iodfrequenz  $f_{Iod}$  folgender Zusammenhang:

$$f_{In} = 8 \cdot f_{HeNe} + f_{Iod} + 2 \cdot (f_B - 226 \cdot f_{mod}) - f_{LO}.$$
 (40)

Dabei bezeichnet  $f_{LO}$  die Summe aller in der Kette verwendeten Radiofrequenzoszillatoren. In Tabelle 2 werden die in der Auswertung verwendeten numerischen Werte dieser Frequenzen zusammengefasst.

#### 5.1.2 Diskussion der Ergebnisse

Bei der Messung wurde der AOM, der den Abtastlaser gegenüber dem Referenzresonator verstimmt, in Schritten von 1 Hz über die Resonanz gefahren. Im UV entspricht dies einer Schrittweite von 8 Hz. Der Zähler zur Messung der Schwebungsfrequenz bei 852 nm wurde bei jeder achten eingestellten AOM-Frequenz ausgelesen; die Zuordnung der einzelnen Anregungen des Referenzüberganges zu einer Schwebungsfrequenz erfolgt daher nachträglich in der Datenauswertung.

Abbildung 39 zeigt die Struktur eines typischen einzelnen Anregungsspektrums; die Zahl der Anregungen ist dabei in 80 Hz<sub>AOM</sub> Intervallen zusammengefasst und es ist für jede AOM Frequenz die gemessene Schwebungsfrequenz dargestellt. Die Streuung dieser Messwerte spiegelt die Kurzzeitinstabilität des Nd:YAG-Lasers bei 1064 nm wider.

Insgesamt wurden 40 solcher Spektren aufgenommen, dabei wurden 1002 Anregungen des Referenzüberganges registriert. Während der Messung wurde die Geschlossenheit der Kette nicht kontinuierlich überprüft. Es können jedoch nachträglich Schwebungsfrequenzen, die mehr als 150 kHz über oder unter dem Mittelwert liegen ausgeschlossen werden, da bei diesen Messungen die Kette mit Sicherheit nicht geschlossen war.

In einer einfachen Auswertung kann zunächst jeder Anregung des Referenzüberganges die nächstgelegene Schwebungsfrequenz zugeordnet werden und so die An-


regungswahrscheinlichkeit als Funktion der Schwebungsfrequenz und damit auch der Absolutfrequenz aufgetragen werden. Abbildung 40 zeigt das Ergebnis dieser Auswertungsmethode. Der Nachteil dieser Methode besteht darin, dass ein Großteil der Messpunkte, nämlich diejenigen AOM-Frequenzen, bei denen keine Anregung des Referenzüberganges stattfand, nicht in die Auswertung eingeht, was eine unnötige Verkleinerung der zur Verfügung stehenden Datenbasis darstellt. Außerdem führen die Kurzzeitschwankungen des 1064 nm-Lasers zu einer relativ breiten Verteilung.

Für die endgültige Auswertung wurde daher ein anderes Verfahren gewählt: Für jedes der 40 Spektren wird an die gemessenen Schwebungsfrequenzen eine Gerade angepasst. Den registrierten Anregungen des Referenzüberganges wird dann als Schwebungsfrequenz der entsprechende Wert auf dieser Geraden zugeordnet, die Koordination erfolgt dabei über die AOM-Frequenzen. Physikalisch bedeutet dies, dass der Referenzresonator als Schwungrad betrachtet wird, das auf kurzen Zeitskalen wesentlich weniger schwankt als der 1064 nm-Laser. Nach dieser Zuordnung können erneut die Anregungen als Funktion der Absolutfrequenz aufgetragen werden, Abbildung 41 zeigt das Ergebnis dieser Auswertung. Anregungen, die zu einem Zeitpunkt



aufgenommen wurden, an dem die Kette kurzzeitig nicht geschlossen war, müssen bei dieser Methode nicht mehr vernachlässigt werden, da mit der Anpassung einer Geraden an die Schwebungsfrequenzen diese Zeiträume interpoliert werden können.

Da die genaue Linienform der Anregungskurve nicht bekannt ist, wurde zur Bestimmung der Linienmitte und damit der Absolutfrequenz des Indium-Referenzüberganges in Abbildung 41 keine Anpassung einer Glockenkurve an die Messdaten vorgenommen. Stattdessen wurde einfach der Mittelwert sämtlicher Anregungsfrequenzen gebildet. Dies ist gerechtfertigt, da links und rechts von der Resonanz die kompletten Linienflügel aufgezeichnet wurden. Als Ergebnis für die Absolutfrequenz des Referenzüberganges erhält man so:

$$f_{\text{In}} = 1\,267\,402\,452\,914\,(41)\,\text{kHz}. \tag{41}$$

Der Fehler wird hauptsächlich von der Frequenzunsicherheit der verwendeten Iodlinie bestimmt[102]. Da die Geschlossenheit der Kette nicht kontinuierlich überwacht wurde, werden zusätzliche systematische Unsicherheiten der Messung auf weniger als 10 kHz abgeschätzt. Wie im vorherigen Abschnitt gezeigt, können Verschiebungen des



Indium-Referenzüberganges bei der erreichten Genauigkeit vollständig vernachlässigt werden.

Um systematische Effekte bei der dopplerfreien Spektroskopie an Iod auszuschließen, wurden bei der Messung zwei verschiedene Iodzellen verwendet. In Abbildung 42 sind die Messdaten aus Abbildung 40 auf die beiden Iodzellen aufgeteilt. Es sind keine signifikanten Abweichungen zwischen beiden Zellen feststellbar.

#### 5.2 Frequenzmessung mit einem modengekoppelten Kurzpulslaser

#### 5.2.1 Messaufbau

Bei der im vorherigen Abschnitt beschriebenen Frequenzmessung war die Unsicherheit durch den zur Überbrückung des Frequenzintervalls von 946 nm bis 852 nm erforderlichen Iodstandard gegeben. Um eine höhere Genauigkeit der Messung zu erreichen, muss die Fundamentalfrequenz des Abtastlasers (946 nm) direkt an die vierte Harmonische des HeNe-Lasers (848 nm) angebunden werden [103].

Die hierfür notwendigen weitreichenden Frequenzkämme wurden in letzter Zeit mit Hilfe von modengekoppelten Femtosekunden-Lasern, deren Spektrum in Quarzfasern



noch weiter verbreitert wird, erzeugt. In dieser Messung wurde noch kein über eine Oktave verbreiterter Frequenzkamm eingesetzt, mit dessen Hilfe optische Frequenzen direkt vermessen werden können. Stattdessen wurde das niederfrequente Ende der Frequenzkette an den auch in der vorherigen Messung benutzten methanstabilisierten HeNe-Laser angebunden, dessen Frequenz seit der letzten Messung mit Hilfe einer Cäsium-Fontänen-Uhr neu geeicht worden war. Es ist daher zu erwarten, dass die Genauigkeit der Messung von der Reproduzierbarkeit dieses Standards bestimmt ist, was durch die Auswertung der Messergebnisse auch bestätigt werden konnte. Um systematische Fehler der Frequenzmessung weiter zu reduzieren, wurde die Geschlossenheit der Frequenzkette kontinuierlich überwacht [104, 105]. Gleichung (43) beschreibt den Zusammenhang zwischen der Frequenz des HeNe-Lasers ( $f_{HeNe}$ ) und der Frequenz des Indium-Referenzüberganges  $f_{In}$ :

$$f_{In} = 16 \cdot f_{HeNe} - 4(f_B + n \cdot f_r) - f_{LO}.$$
(42)

Dabei bezeichnet  $f_B$  die Schwebungsfrequenz bei 946 nm und  $f_r$  die Repetitionsrate des Femtosekundenlasers und damit den Frequenzabstand der einzelnen Kamm-Moden,  $f_{LO}$  bezeichnet die Zusammenfassung aller in den Phasenlocks verwendeten Lokaloszillatoren. Tabelle 3 fasst die numerischen Werte der wichtigen Frequenzen zusammen.



$f_{HeNe}$	88 376 182 599 976 Hz
$f_{LO}$	1 632 000 000 Hz
$f_r$	76 000 000 Hz
n	482285

Tabelle 3: Numerische Werte der zur Auswertung der Frequenzkette erforderlichen Frequenzen.

#### 5.2.2 Auswertung und Diskussion der Ergebnisse

Bei dieser Messung wurde die Aufnahme von Anregungen des Indium-Referenzüberganges und die Bestimmung der Schwebungsfrequenz bei 946 nm zeitlich exakt koordiniert. Zu jeder eingestellten AOM-Frequenz des Abtastlasersystems wird die Schwebungsfrequenz gemessen und es werden typischerweise 16 Anregungsversuche des Indium-Referenzüberganges durchgeführt; die Schrittweite des Modulators beträgt 10 Hz.

In Abbildung 44 ist die Aufnahme eines Einzelspektrums gezeigt. Die Streuung der Schwebungsfrequenzen um eine Gerade spiegelt wie in der vorherigen Messung die Kurzzeitschwankungen der Frequenzkette sowie des Indium-Abtastlasers wider. Diese sind hier jedoch um etwa zwei Größenordnungen kleiner als in der vorhergehenden Messung. Es stellt sich die Frage, ob es sinnvoll ist, auch hier den Referenzresonator des Abtastlasers als Schwungrad zu betrachten und eine Gerade an die Schwebungsfrequenzen anzupassen. Da die hier beobachtete Streuung jedoch in etwa von der gleichen Größenordnung wie die in Abschnitt 4 aus der höchstauflösenden Spektroskopie ermittelte Linienbreite des Abtastlasers ist, trägt vermutlich auch der Abtastlaser selbst signifikant zu dieser Streuung bei. Der Referenzresonator kann daher nicht mehr als stabiles Schwungrad betrachtet werden und es wurde auf eine Linearisierung der Schwebungsfrequenzen verzichtet. Ebenso ist die Streuung der Schwebungsfrequenzen klein gegenüber der Reproduzierbarkeit der Frequenz des HeNe-Lasers zwischen einzelnen Füllungen der Methanzelle. Von einer Linearisierung der Schwebungsfrequenzen wäre daher keine Steigerung der Genauigkeit der Frequenzmessung zu erwarten.

Statt nach Einzelspektren wurden die Messpunkte nun nach den Füllungen der Methanzelle des HeNe-Lasers sortiert. Dies hat den Vorteil, dass dessen Reproduzierbarkeit von Füllung zu Füllung direkt sichtbar wird. Jeder gemessenen Schwebungsfrequenz wird dabei aus allen Spektren der jeweiligen Füllung eine Anregungswahrscheinlichkeit des Referenzüberganges zugeordnet. So kann ein Spektrum der Anregungswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit der Absolutfrequenz gewonnen werden. Da die Lage des Anfangs- und Endpunktes der Einzelspektren gegenüber der Resonanz nicht konstant war, treten so in den Linienflügeln Schwebungsfrequenzen auf, bei denen nur sehr wenige Anregungsversuche durchgeführt wurden. Dies führt zu großen



Fehlerbalken der Anregungswahrscheinlichkeit bei diesen Frequenzen. Bei der Anpassung einer Gauβ-Kurve an die Spektren, werden die einzelnen Messpunkte mit dem inversen ihres Fehlers gewichtet. In Abbildung 45 ist ein solches Spektrum für die sechste Füllung des Methanstandards gezeigt, dort sind 674 Anregungen des Referenzüberganges zusammengefasst.

Abbildung 46 zeigt die bei allen 11 Füllungen der Methanzelle gemessenen Absolutfrequenzen des Indium-Referenzüberganges. Wie zu erwarten war, ist die Streuung der Messwerte von Füllung zu Füllung wesentlich größer als die statistische Unsicherheit einer Einzelmessung. Der Fehlerbalken der Einzelmessung ist dann auch nicht von der Mess-Statistik, sondern von der Unsicherheit des Methanstandards bestimmt. Als Frequenz des Indium-Referenzüberganges ergibt sich aus dieser Messung:

$$f_{In} = 1\,267\,402\,452\,899,\,92\,(0,23)\,\text{kHz}$$
(43)

Der Fehler setzt sich dabei aus der Streuung der Messwerte für die einzelnen Füllungen 4 · $\Delta f_B$  sowie der Unsicherheit der Kalibrierung des Methanstandards 16 · $\Delta f_{HeNe}$ 



zusammen. Auch bei dieser Messung sind Verschiebungen des Indium-Referenzüberganges vernachlässigbar, bei Messungen mit noch weitergehender Genauigkeit muss aber viel Sorgfalt auf die Magnetfeldkompensation in der Ionenfalle verwendet werden, am besten durch wiederholte Kompensation während der Messperiode. Dieses Ergebnis stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit der ersten Messung überein und verbessert die Genauigkeit um zwei Größenordnungen. Mit einer relativen Unsicherheit von 1,8  $\cdot$  10<sup>-13</sup> stellte diese Messung zum Zeitpunkt der Veröffentlichung die genaueste Messung eines optischen Überganges eines gespeicherten Ions dar.

Als alternative Auswertung kann versucht werden, die Messperiode nicht nach den verschiedenen Füllungen des Methanstandards aufzuteilen, sondern alle Anregungen gemeinsam auszuwerten. Das so erhaltene Spektrum der Anregungswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit der Absolutfrequenz ist in Abbildung 47 dargestellt. Die Mittenfrequenz dieses Spektrums lässt sich zwar mit größerer Genauigkeit festlegen als der Mittelwert in Abbildung 46, da die begrenzte Reproduzierbarkeit des Methanstandards dabei aber nicht zum Ausdruck kommt, wurde dieses Spektrum nicht zur Bestimmung der Frequenz des Referenzüberganges herangezogen. Beide Methoden liefern aber innerhalb der Fehlergrenzen übereinstimmende Ergebnisse.





## 6 Ausblick

Sowohl in Bezug auf die Kühlung als auch auf die höchstauflösende Spektroskopie besitzt Indium ein großes Potenzial für weitergehende Arbeiten. Indium ist sicherlich das einfachste System, das Seitenbandkühlung ermöglicht, darüber hinaus ist es das einzige System, das eine kontinuierliche Seitenbandkühlung und damit das Erreichen einer Gleichgewichtstemperatur aus Kühlung und Heizung ermöglicht. Deshalb können fundamentale Fragen der erreichbaren Kühlgrenzen oder technischere Fragen der Heizmechanismen in der Falle am Indium exemplarisch untersucht werden. Erste Arbeiten zu einer exakteren Temperaturbestimmung auf dem Referenzübergang wurden bereits parallel zu dieser Arbeit durchgeführt und ergeben konsistente Werte [50].

Die zukünftige Richtung der Arbeiten zur Realisierung eines optischen Frequenznormals ist durch die hier vorgestellten Ergebnisse – und deren Beschränkungen – klar vorgezeichnet. Die erreichte spektroskopische Auflösung stellte mit dem bestehenden Lasersystem die Grenze des Machbaren dar. Entscheidend für die Linienbreite des Lasers ist dabei die Schwingungsisolierung des Referenzresonators. Um diese zu verbessern, wurden verschiedene Ansätze wie das Aufhängen eines optischen Tisches an Gummiseilen ausprobiert. Die überzeugendsten Ergebnisse konnten bislang mit aktiv schwingungsgedämpften Plattformen erzielt werden, wobei Laserlinienbreiten von 4 Hz für Mittelungszeiten bis zu 26 Sekunden erreicht werden konnten [106].

Auch die Techniken für eine verbesserte Absolutfrequenzmessung sind in Form von oktavbreiten Frequenzkämmen bereits im Prinzip verfügbar. Die Frequenz des Indium-Referenzüberganges wird dann direkt messbar, ohne auf Sekundärstandards wie das Methan zurückgreifen zu müssen. An dieser Stelle kann dann auch die spannende Frage der Systematiken des Indium-Überganges, die in den hier vorgestellten Messungen noch vernachlässigbar waren, angegangen werden. Hier muss sich zeigen, ob sich die erwarteten Vorteile des Indiums gegenüber anderen Ionen auch im Experiment umsetzen lassen. Der Vergleich hochstabiler Übergänge verschiedener Systeme verspricht für sich ein auβerordentlich spannendes Thema zu werden, da so zum Beispiel die zeitliche Konstanz von Naturkonstanten untersucht werden kann. Auch präzise Messungen der Gravitations-Rotverschiebung innerhalb eines Labors erscheinen möglich.

Sicherlich ist der Weg bis zu einer Definition der Sekunde auf Basis des Indium-Referenzüberganges noch weit, insbesondere die quantitative Untersuchung der Systematiken erfordert noch viel langwierige experimentelle Arbeit. Aufgrund der hier vorgestellten Arbeiten wurde der Indium-Referenzübergang bereits in die Liste der empfohlenen Wellenlängen zur Realisierung des Meters aufgenommen [107]. Der Nachteil der gegenüber Standards auf Basis gespeicherter Neutralatome schlechteren Kurzzeitstabilität kann durch die Verwendung eines entsprechend stabilen Abtastlasersystems ausgeglichen werden. Es sind aber auch kombinierte Systeme denkbar, die mehrere Standards verschiedenen Typs vereinigen. Auf der anderen Seite sind die ständigen und immer wieder überraschenden Verbesserungen der konventionellen Cäsiumuhr, zuletzt durch Einführung der Fontänen-Technik, eine konstante Herausforderung für diejenigen, die die Überlegenheit eines prinzipiell neuartigen Systems beweisen wollen. Insgesamt verspricht die weitere Forschung an gespeicherten Ionen auf vielen Gebieten noch große Fortschritte und Indium Ionen können sicher einen wichtigen Beitrag dazu leisten.

### Literatur

- [1] V. A. Dzuba, V. V. Flambaum, J. K. Webb, Phys. Rev. Lett. 82, 888 (1999);
- [2] V. A. Dzuba, V. V. Flambaum, Phys. Rev. A 61, 034502 (2000);
- [3] S. G. Karshenboim, Can. J. Phys. 78, 639 (2000);
- [4] Y. Sortais, S. Bize, C. Nicolas, C. Mandache, G. Santarelli, A. Clairon, C. Salomon in Proceedings of the 2001 IEEE International Frequency Control Symposium, IEEE Catalog No. 01CH37218, (2001);
- [5] J. C. Hafele, R. Keating, Sience, 177, 166 (1972);
- [6] R. F. C. Vessot, M. W. Levine, E. M. Mattison, E. L. Blomberg, T. E. Hoffmann, G. U. Nystrom, B. F. Farrel, R. Decher, P. B. Eby, C. R. Baugher, J. W. Watts, D. L. Reuber, E. D. Wills, Phys. Rev. Lett. 45, 2081, (1980),
- [7] J. P. Turneaure, C. M. Will, B. F. Farrell, E. M. Mattison, R. F. C. Vessot, Phys. Rev. D 27, 1705 (1983);
- [8] M. Niering, R. Holzwarth, J. Reichert, P. Pokasov, Th. Udem, M. Weiz, T. W. Hänsch, P. Lemonde, G. Santelli, M. Abgrall, P. Laurent, C. Salomon, A. Clairon, Phys. Rev. Lett. 84, 5496 (2000);
- [9] N. Ramsey in Proceedings of the XXXth Rencontre de Moriond, B. Guideroni, G. Greene, D. Hinds, J. Tran Tranh Van, eds. (Editiones Frontieres, Gif sur Yvette, France 1995);
- [10] F. G. Major The Quantum Beat, Springer, New York, Berlin, Heidelberg, (1998);
- [11] B. Hoffmann-Wellenhof, H. Lichtenegger, J. Collins, GPS, Theory and Practice, Springer, Berlin, Heidelberg (1994);
- [12] D. W. Allan, Proceedings of the IEEE 54, 221 (1966);
- [13] J. Rutman, Rroceedings of the IEEE 66, 1048 (1978);
- [14] Eine gute Darstellung der Licht-Materie- Wechselwirkung findet sich z. B. in: R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, Oxford University Press, Oxford (2000);
- [15] J. Vanier, C. Audoin, The Quantum Physics of Atomic Frequency Standards, Hilger, Bristol, (1989);
- [16] R. H. Dicke, Phys. Rev. 93, 99 (1954);
- [17] H. Dehmelt, IEEE Trans. Instrum. Meas. 31, 83 (1982);
- [18] W. M. Itano, J. C. Bergquist, J. J. Bollinger, J. M. Gilligan, D. J. Heinzen, F. L. Moore, M. G. Raizen, D. J. Wineland, Phys. Rev. A 4 47, 3544 (1993);

- [19] W. Nagourney, J. Sandberg, H. Dehmelt, Phys. Rev. Lett. 56, 2797, (1986);
- [20] Th. Sauter, W. Neuhauser, R. Blatt, P. E. Toscheck, Phys. Rev. Lett. 57, 1696, (1986);
- [21] J. C. Bergquist, R. G. Hulet, W. M. Itano, D. J. Wineland, Phys. Rev. Lett. 57, 1699, (1986);
- [22] Chr. Tamm, D. Engelke, V. Bühner, Phys. Rev. A 61, 053405 (2000);
- [23] M. Roberts, P. Taylor, G. P. Barwood, W. R. C. Rowley, P. Gill, Phys. Rev. A 62, 020501 (2000);
- [24] P. T. Fisk, Rep. Prog. Phys. 60, 761 (1997);
- [25] A. A. Madej, J. E. Bernard in Frequency Measurment and Control: Advanced Techniques and Future Trends A. Luiten ed. Springer Topics in Applied Physics, vol. 79 (2000);
- [26] R. J. Rafac, B. C. Young, J. A. Beall, W. M. Itano, D. J. Wineland and J. C. Bergquist: Phys.Rev.Lett 85, 2462, (2000);
- [27] W. Paul, O. Osberghaus, E. Fischer, Ein Ionenkäfig, Forschungsberichte des Wirtschafts- und Verkehrsministeriums Nordrhein-Westfalen 415, (1958)
- [28] J. Walz, I. Siemers, M. Schubert, W. Neuhauser, R. Blatt, Europhys. Lett. 21, 183, (1993);
- [29] E. Peik, J. Fletcher, J. Appl. Phys. 82, 5283, (1997);
- [30] F. Diedrich, E. Peik, J. M. Chen, W. Quint, H. Walther, Phys. Rev. Lett. 59, 2931, (1987);
- [31] D. J. Wineland, J. C. Bergquist, W. M. Itano, J. J. Bollinger, C. H. Manney, Phys. Rev. Lett. 59, 2935, (1987);
- [32] I. Waki, S. Kassner, G. Birkl, H. Walther, Phys. Rev. Lett. 68, 2007, (1992);
- [33] M. Raizen, J. M. Gilligan, J. C. Bergquist, W. M. Itano, D. J. Wineland, Phys. Rev. A 45, 6493, (1992);
- [34] T. Schätz, U. Schramm, D. Habs, Nature, 412, 717, (2001);
- [35] M. Drewsen, C. Brodersen, L. Hornekaer, J. S. Hangst, Phys. Rev. Lett. 81, 2878, (1998);
- [36] D. J. Berkeland, J. D. Miller, J. C. Bergquist, W. M. Itano, D. J. Wineland, Phys. Rev. Lett. 80, 2089, (1998);

- [37] J. Meixner, F. W. Schäfke, Mathieusche Funktionen und Sphäroidfunktionen in: Die Grundlehren der mathematischen Wissenschaften, Band LXXI, Springer Verlag, Berlin (1954);
- [38] N. Yu, W. Nagourney, H. Dehmelt, J. Appl. Phys 69, 3779 (1991);
- [39] H. Straubel, Die Naturwissenschaften 42, 506 (1955)
- [40] C. Schrama, E. Peik, W. W. Smith and H. Walther: Opt Commun. 101, 32 (1993);
- [41] E. Peik, private Mitteilung;
- [42] J. Höffges, Dissertation, LMU-München (1998);
- [43] D. Wineland, H. Dehmelt, Bull. Am. Phys. Soc. 20, 637 (1975);
- [44] T. W. Hänsch, A. L. Schawlow, Opt. Commun. 13, 68 (1975);
- [45] Einen guten Überblick über die grundlegenden Arbeiten gibt: Bose-Einstein Condensation in Atomic Gases, Proceedings of the International School of Physics Enrico Fermi", Course CXL, eds: M. Inguscio, S. Stringari, C. Wieman (IOS Press, Amsterdam, 1999);
- [46] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. Toschek, H. Dehmelt, Phys. Rev. Lett. 41, 233, (1978);
- [47] D. J. Wineland, W. M. Itano, Phys. Rev. A 20, 1521 (1979);
- [48] E. Peik, Dissertation, LMU-München (1993);
- [49] E. Peik, G. Hollemann, and H. Walther: Phys. Rev. A 49, 402 (1994);
- [50] Ch. Schwedes, Diplomarbeit, LMU-München (2000);
- [51] G. Hollemann, Diplomarbeit, LMU-München (1989);
- [52] M. Welling, Diplomarbeit, LMU-München (1990);
- [53] C. Salomon, D. Hils, J. L. Hall, J. Opt. Soc. Am. B 5, 1576 (1988);
- [54] J. Abel, Dissertation, LMU-München (1998);
- [55] G. Guthörlein, M. Keller, K. Hayasaka, W. Lange, H. Walther, Nature 414, 49 (2001);
- [56] E. Peik, J. Abel, Th. Becker, J. v. Zanthier, H. Walther: Phys. Rev. A. 60, 439 (1999);
- [57] E. Peik, Habilitationsschrift, LMU-München (1999);
- [58] J. Javaneinen, M. Lindberg, S. Stenholm, J. Opt. Soc. Am. 1, 111 (1984);

- [59] F. Diedrich, J. C. Bergquist, W. M. Itano, D. J. Wineland, Phys. Rev. Lett. 62, 403 (1989);
- [60] W. L. Slattey, D. G. Doolen, H. E. DeWitt, Phys. Rev. A 26, 2255, (1982);
- [61] J. I. Cirac, P. Zoller, Phys. Rev. Lett. 74, 4091 (1995);
- [62] C. Monroe, D. M. Meekhof, B. E. King, W. M. Itano, D. J. Wineland, Phys. Rev. Lett. 75, 4714, (1995);
- [63] E. Peik, G. Hollemann, C. Schrama, H. Walther, Laser Physics 4, 376 (1994);
- [64] B. E. King, C. S. Wood, C. J. Myatt, Q. A. Turchette, D. Leibfried, W. M. Itano, C. Monroe, D, . Wineland, Phys. Rev. Lett. 81, 1525 (1998);
- [65] C. A. Sackett, D. Kielpinski, B. E. King, C. E. Langer, V. Meyer, C. Y. Myatt, M. Rowe, Q. A. Turchette, W. M. Itano, D. J. Wineland, C. M. Monroe, Nature, 404, 256, (2000);
- [66] F. Schmidt-Kaler, Ch. Roos, H. C. Nägerl, H. Rohde, S. Gulde, A. Mundt, M. Lederbauer, G. Thalhammer, Th. Zeiger, P. Barton, L. Hornekaer, G. Reymond, D. Leibfried, J. Eschner, R. Blatt, J. Mod. Opt. 47, 2573, (2000);
- [67] S. Köhler, Dissertation, LMU-München (2002);
- [68] E. Peik, G. Hollemann, H. Walther, Phys. Rev. A 49, 402 (1994);
- [69] Th. Becker, J. v. Zanthier, A. Yu. Nevsky, Ch. Schwedes, M. N. Skvortsov, H. Walther and E. Peik: Phys. Rev. A 63, 051802 (2001);
- [70] F. T. Arecchi, A. Schenzle, R. G. DeVoe, K. Jungmann, R. G. Brewer, Phys. Rev. A 33, 2124 (1986);
- [71] G. Hollemann, E. Peik and H. Walther: Opt. Lett. 19, 192 (1994);
- [72] G. Hollemann, E. Peik, A. Rusch and H. Walther: Opt. Lett. 20, 1871 (1995);
- [73] J. von Zanthier, Habilitationsschrift, LMU-München (2002);
- [74] J. Dirscherl, B. Neizert, T. Wegener, H. Walther, Opt. Commun. 91, 131 (1992);
- [75] B. Young, F. C. Cruz, W. M. Itano, J. C. Bergquist, Phys. Rev. Lett. 82, 3799 (1999);
- [76] H. L. Stover, W. H. Steier, Appl. Phys. Lett. 8, 91 (1966);
- [77] J. Cariou, P. Luc Atlas du Spectre d'Absorption de la Molecule de Tellure Lab. Aime-Cotton CNRS (1980);
- [78] C. Cohen-Tannoudij, J. Dalibard, Europhys. Lett. 1, 441 (1986);

- [79] J. von Zanthier, C. Skornia, G. S. Agarwal, H. Walther, Phys. Rev. A 63, 013816 (2000);
- [80] W. Hanle, Z. Phys 30, 93 (1924), nachgedruckt in Z. Phys. D 18, 5 (1991);
- [81] J. C. Lehmann, C. Cohen-Tannoudij, C. R. Acad. Sc. Paris 258, 4463, (1964);
- [82] J. Dupont-Roc, S. Haroche, C. Cohen-Tannoudij, Phys. Lett. 28A, 638 (1969);
- [83] J. Brossel, F. Bitter, Phys. Rev. 86, 308 (1952);
- [84] H. G. Dehmelt, Phys. Rev. 105 1924 (1957), ein Nachdruck der wichtigsten Arbeiten über optisches Pumpen findet sich in: R. Bernheim, Optical Pumping, W. A. Benjamin Inc., New York (1965);
- [85] Y. Ting, D. Williams, Phys. Rev. 89, 595, (1953);
- [86] Th. Becker, M. Eichenseer, A. Yu. Nevsky, E. Peik, Ch. Schwedes, M. N. Skvortsov,J. von Zanthier, in: Proceedings of the Hydrogen Atom, Eds: S. G. Karshenboim,F. S. Pavone, Springer (2001);
- [87] J. C. Bergquist, R. J. Rafac, B. C. Young, J. A. Beall, W. M. Itano, D. J. Wineland, Proc. SPIE **4269**, in press;
- [88] H. Schnatz, B. Lipphardt, J. Helmcke, F. Riehle, G. Zinner, Phys. Rev. Lett. 76, 18 (1996);
- [89] J. E. Bernard, A. . Madej, L. Marmet, B. G. Withford, K. J. Siemsen, S. Cundy, Phys. Rev. Lett. 82, 3228 (1999);
- [90] T. W. Hänsch in The Hydrogen Atom, eds: G. F. Bassani, M. Inguscio, T. W. Hänsch (Springer, Heidelberg 1989), pp 93 102;
- [91] H. R. Telle, D. Meschede, T. W. Hänsch, Opt. Lett. 15, 532 (1990);
- [92] J. E. Bernard, B. G. Withford, L. Marmet, Opt. Lett. 24, 98 (1999);
- [93] M. Kourogi, B. Widiyatomoko, Y. Takeuchi, M. Ohtsu, IEEE J. Quantum. Electron. 31, 2120 (1995);
- [94] K. Imai, M. Kourogi, M. Ohtsu, IEEE J. Quantum Electron. 34, 54 (1998);
- [95] J. N. Eckstein, A. I. Fergusson, T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 40, 847 (1978);
- [96] J. Reichert, M. Niering, R. Holzwarth, M. Weitz, Th. Udem, T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 84, 3232 (2000);
- [97] R. Holzwarth, Th. Udem, T. W. Hänsch, J. C. Knight, W. J. Wadsworth, P. St. J. Russel, Phys. Rev. Lett. 85, 2264 (2000);

- [98] S. A. Diddams, D. J. Jones, J. Ye, S. T. Cundiff, J. L. Hall, J. K. Ranka, R. S. Windeler, R. Holzwarth, Th. Udem, T. W. Hänsch; Phys. Rev. Lett. 84, 5102 (2000);
- [99] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, S. T. Cundiff, Sience, 288, 635 (2000);
- [100] J. von Zanthier, J. Abel, Th. Becker, M. Fries, E. Peik, H. Walther, R. Holzwarth, J. Reichert, Th. Udem, T. W. Hänsch, A. Yu. Nevsky, M. N. Skvortsov and S. N. Bagaev: Opt. Commun. 166, 57 (1999);
- [101] S. N. Bagaev, A. K. Dimitriyev, P. V. Pokassov: Laser Phys. 7, 989 (1997);
- [102] P. A. Jungner, M. L. Eikhoff, S. D. Swartz, J. Ye, J. L. Hall, S. Waltmann, Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng. 2378, 22, (1995); P. A. Jungner, S. Swatz, M. Eikhoff, J. Ye, J. L. Hall, S. Waltmann, IEEE Trans. Instr. Meas. 44, 151, (1995); M. L. Eikhoff, J. L. Hall, IEEE Trans. Instr. Meas. 44, 155, (1995);
- [103] J. von Zanthier, Th. Becker, M. Eichenseer, A. Yu. Nevsky, Ch. Schwedes, E. Peik,
  H. Walther, R. Holzwarth, J. Reichert, Th. Udem, T. W. Hänsch, P. V. Pokassov,
  M. N. Skvortsov, S. N. Bagaev: Opt. Lett. 25, 1729 (2000);
- [104] J. Reichert, Dissertetion, LMU-München, (2001);
- [105] T. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, Opt. Lett. 24, 881 (1999);
- [106] A. Yu. Nevsky, M. Eichenseer, J. von Zanthier, H. Walther, submitted to Opt. Commun.;
- [107] Empfehlung des Consultive Committee for Length, 20. 09. 2001 (unveröffentlicht)

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen Personen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben:

- An erster Stelle möchte ich mich bei Herrn Professor Walther für die Möglichkeit bedanken, nun schon über viele Jahre an verschiedenen Stellen in seiner Arbeitsgruppe mitarbeiten zu können. Die lebendige wissenschaftliche Atmosphäre hat viel zu meiner Begeisterung für experimentelle Grundlagenforschung beigetragen.
- Von Herrn E. Peik konnte ich im gesamten Verlauf der Arbeit enorm viel profitieren: seine direkte Herangehensweise an physikalische Probleme, wie auch sein breites Wissen über alle Facetten dieses Experimentes und darüberhinaus haben mich stets beeindruckt.
- Herrn J. von Zanthier danke ich f
  ür sein stetes Hinterfragen von vermeintlich Bekanntem und den damit verbundenen Erkenntnisgewinn. Ebenso war unsere, wie ich denke, gute Zusammenarbeit in vielen langen Labor-Nächten die Voraussetzung f
  ür einen Gro
  ßteil der hier dargestellten Ergebnisse.
- Herrn M. Welling danke ich dafür, dass er während eines Ferienpraktikums meine Begeisterung für die Quantenoptik wecken konnte.
- Den Mitarbeitern J. Abel, M. Eichenseer, M. Fries, D. Landhuis, A. Yu. Nevsky, T. Schneider, Ch. Schwedes und M. Valentin danke ich für die stets angenehme Atmosphäre im Labor und die gemeinsame Freude am Experimentieren.
- Allen weitere Mitarbeitern der Arbeitsgruppe möchte ich danken, dass sie zu der lebendigen Atmosphäre im Institut beigetragen haben.
- Dem Frequenzketten-Team, J. Reichert, R. Holzwarth und Th. Udem, unter Leitung von Prof. Th. W. Hänsch danke ich für die effiziente Zusammenarbeit bei den Absolutfrequenzmessungen. Von Th. Udem konnte ich dabei lernen, was es heißt, große Datenmengen sorgfältig auszuwerten.
- Herrn H. P. Schönauer sowie allen Mitarbeitern der mechanischen Werkstatt danke ich für ihr stetes Engagement bei der Lösung mechanischer Probleme.
- Meiner Freundin Annette danke ich für die Geduld, die die Fertigstellung dieser Arbeit gerade über die letzten Wochen auch von ihr erforderte. Nicht zuletzt hat ihre engagierte Durchsicht der Arbeit einige Fehler verhindert.
- Meinen Eltern danke ich für die stete Unterstützung während des gesamten Studiums. Meiner Mutter danke ich darüberhinaus für die überaus sorgfältige und kritische Durchsicht dieser Arbeit, und den an einigen Stellen nötigen Hinweis, dass Physiker-Jargon nicht zwangsläufig gutes Deutsch ist.

# Lebenslauf

Name:Thomas Alfred BeckerGeburtsdatum:13. 03. 1970Geburtsort:IngolstadtFamilienstand:ledigStaatsangehörigkeit:deutsch

## Ausbildung

1976 – 1980	Grundschule Ingolstadt-Haunwöhr
1980 - 1989	Christoph-Scheiner Gymnasium Ingolstadt
1989 – 1990	Grundwehrdienst
1990 - 1996	Physikstudium an der Ludwig-Maximilians-Universität, München
1996	Promotion an der Ludwig-Maximilians-Universität, München
	und Dissertationsarbeit am Max-Planck-Institut für
	Quantenoptik, Garching