Experimente zur Realisierung eines optischen Frequenznormals auf der Basis eines einzelnen Indium-Ions

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

vorgelegt von Christian Schwedes aus Bruchsal

Referent: Prof. Dr. Herbert Walther Koreferent: Prof. Dr. Dietrich Habs

Tag der mündlichen Prüfung: 22. Juli 2004

Inhaltsverzeichnis

1	Ein	leitung	S	1		
2	Indium als optische Uhr					
	2.1	Niveau	uschema von In ⁺	5		
	2.2	Hocha	uflösende Spektroskopie	7		
	2.3	System	natische Frequenzverschiebungen	g		
	2.4	Der W	Veg zur Uhr - Frequenzvergleiche	12		
3	Speicherung von Indium-Ionen 1					
	3.1	Theor	ie der dynamischen Speicherung	14		
	3.2	Realis	ierung: Paul-Straubel-Falle	18		
		3.2.1	Aufbau	20		
		3.2.2	Elektronentoßionisation	20		
		3.2.3	Detektion des Fluoreszenzlichts	22		
		3.2.4	Langzeit-Speicherung	24		
4	Pho	otoioni	sation	26		
	4.1	Ionisierungsschemata von Indium		26		
	4.2	2 Experimente		29		
		4.2.1	Spektroskopie des $5p \rightarrow 6s$ Übergangs	29		
		4.2.2	Zweiphotonen-Ionisation	31		
		4.2.3	Effizienz der Methode	34		
		4.2.4	Ergebnis	35		

5	Auf	ıfbau eines neuen Kühllasersystems 3					
	5.1	Übers	icht des Aufbaus	38			
	5.2	2 Gitterstabilisierter Diodenlaser					
		5.2.1	Frequenzstabilität	42			
	5.3	Aktive	e Frequenzstabilisierung	46			
		5.3.1	Referenzersonator	46			
		5.3.2	Stabilisierungsverfahren	48			
		5.3.3	Resultat	50			
	5.4	Trape	zverstärker	52			
		5.4.1	Charakterisierung des Systems	53			
	5.5	Freque	enzverdopplungen	57			
		5.5.1	Überhöhungsresonatoren	59			
		5.5.2	PPKTP-Frequenzverdopplung	60			
		5.5.3	BBO-Frequenzverdopplung	64			
	5.6	Spekt	roskopische Anwendungen	65			
6	Laserkühlung einzelner Ionen						
	6.1	1 Theorie der Seitenbandkühlung im harmonischen Potential .					
		6.1.1	Grenzfall hoher Schwingungsanregung	71			
		6.1.2	Grenzfall niedriger Schwingungsenergien	72			
	6.2	Kühlu	$nng von In^+ \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots$	73			
	6.3	Tempe	eraturbestimmung	75			
	6.4	Seiten	bandkühlung unter Einfluss der Mikrobewegung	77			
		6.4.1	Semiklassisches Modell	78			
		6.4.2	Experimentelle Kontrolle der Mikrobewegung	83			
		6.4.3	Kühlung bei positiver Verstimmung	85			
7	Aus	sblick		90			
Г.i	Literaturverzeichnis						

Kapitel 1

Einleitung

Die Mittel der Spektroskopie zählen zu den präzisesten experimentellen Methoden der Physik, ihre Anwendung erlaubt tiefen Zugang zum grundlegenden Verständnis der Natur. Die spektroskopische Betrachtung atomarer Übergangsfrequenzen waren so eine wesentliche Triebfeder bei der Entwicklung der Quantenmechanik, durchgeführt insbesondere an Wasserstoff als einfachstem Atom: Von der Einführung der Quantisierung in die Physik durch die Interpretation der Regelmäßigkeit der Übergangs-Spektren [1], über die Erweiterung der Theorie durch die Quantenelektrodynamik, gefordert durch die experimentell gefundene Lamb-Verschiebung [2], bis hin zu einem der derzeit präzisesten Tests der Quantenelektrodynamik anhand der Spektroskopie der $1S \rightarrow 2S$ Linie [3]. Frequenzen stellen gegenwärtig die am genauesten messbaren physikalischen Größen dar das bietet auch für die Zukunft das Potential, mit jeder weiteren experimentellen Verbesserung die Grundlagen der Physik neu überprüfen zu können.

Die Energiedifferenzen zwischen verschiedenen Eigenzuständen eines Atoms und damit die atomaren Übergangsfrequenzen hängen prinzipiell nur von fundamentalen physikalischen Konstanten ab, und sind so zunächst feste Konstanten in Raum und Zeit. Aus dieser Idee heraus wurden Frequenznormale mit Hilfe einer Anbindung an atomare Übergänge entwickelt. Während bei aktiven Systemen wie dem Laser oder dem Maser die atomare Übergangsfrequenz direkt als Strahlung verwendet wird, kann bei einem passiven atomaren Frequenzstandard eine präzise definierte Wechselwirkung zwischen der elektromagnetischen Strahlung und dem atomaren System zu einer höheren Genauigkeit führen. Einzelne oder Ensemble präparierter Atome werden elektromagnetischer Strahlung ausgesetzt und die resultierenden Übergänge werden detektiert. Daraus ergibt sich der Aufbau eines passiven atomaren Frequenznormals in drei Teile: Einem unabhängigen atomaren Absorber, einem anregenden Lokaloszillator und einer Detektions- und

1. Einleitung

Rückkopplungselektronik, die den Lokaloszillator in Resonanz mit dem atomaren Übergang hält. Als Ausgangssignal des Frequenzstandards dient dann die Lokaloszillatorfrequenz, die eine Zeiteinheit über eine feste Anzahl von Nulldurchgängen festlegt. Später wird von diesem Bild ausgehend eine Einführung in die Charakterisierung der Qualität eines passiven atomaren Frequenznormals gegeben.

Die Sekunde als genaueste SI-Einheit ist seit 1967 auf diese Art in Anwendung von Mikrowellen-Spektroskopie auf einen Hyperfein-Übergang bei etwa 9,19 GHz in 133 Cs-Atomen definiert. Die derzeit besten primären Frequenznormale sind atomare Fontänen, also Atomstrahl-Apparaturen, die Genauigkeiten bis in den Bereich von 10^{-15} erreichen [4]. Ein Übergang von Mikrowellenstrahlung zu um 5 Größenordnungen höheren optischen Referenzfrequenzen bietet, bei ähnlich großem absolutem Fehler in der Frequenzbestimmung, das Potential einer immensen Steigerung der Genauigkeit. Mit der Entwicklung des Lasers und einer kontinuierlichen Verbesserung der Frequenzstabilität optischer Lokaloszillatoren ist dieser Übergang gegenwärtig möglich. So werden derzeit verschiedene atomare Systeme im Hinblick auf einen optischen Frequenzstandard experimentell untersucht [4,5]. Die Entwicklung der Techniken zur Speicherung einzelner Ionen in Quadrupolfallen [6] und ihrer Laserkühlung [7,8] erlauben dauerhafte optische Spektroskopie nahezu unabhängig von Bewegungseinflüssen des einzelnen Atoms: Innerhalb des Lamb-Dicke-Bereichs erfolgt die Spektroskopie rückstoßfrei und frei vom Dopplereffekt erster Ordnung [9].

Das spektroskopische Ideal ist ein punktförmiger Absorber in Ruhe und isoliert von äußeren Einflüssen, der für eine beliebig lange Zeit beobachtet werden kann. Einzelne Ionen, in einer Quadrupolfalle innerhalb des Lamb-Dicke-Bereichs eingefangen und durch Laserkühlung in den quantenmechanischen Grundzustand des Fallenpotentials gekühlt, stellen eine sehr gute Realisierung dieses spektroskopischen Ideals dar. Weitestgehend entkoppelt von äußeren Einflüssen kann ein verbotener optischer Übergang mit extrem geringen systematischen Frequenzverschiebungen die Referenz eines Frequenznormals mit einer Unsicherheit im Bereich von 10^{-18} sein [10-12].

Diese Bereiche der Genauigkeit lassen sich mit gespeicherten Einzelionen erwarten, da einerseits mögliche systematische Linienverschiebungen bei den dafür vorgesehenen Referenzübergängen extrem gering sind, und andererseits dieses Limit durch die praktisch unbegrenzte Beobachtungszeit in der Falle erreicht werden kann. Die Möglichkeit eines dauerhaften Betriebs des Einzelionen-Frequenznormals ist dabei eine wesentliche Voraussetzung zur experimentellen Steigerung der Genauigkeit in bisher unerreichte Größenordnungen.

Eine alternative Möglichkeit zur Realisierung optischer Frequenznormale stellt ein gekühltes Ensemble neutraler Atome mit schmalbandigem optischem Übergang dar. Die Vorteile solcher Systeme liegen im hohen Signal-zu-Rausch-Verhältnis bei der Spektroskopie des optischen Übergangs, was auf kurzen Zeitskalen eine hohe Stabilität ermöglicht [13,14]. Die Restbewegung der Atome beschränkt dabei jedoch die erreichbare Langzeit-Genauigkeit. Da in den bisher mit neutralen Atomen realisierten Uhren [4] der Lamb-Dicke-Bereich für die optische Spektroskopie grundsätzlich unerreichbar ist, sind die sich aus der Bewegung der Atome ergebenden, letztlich limitierenden, systematischen Frequenzverschiebungen prinzipiell höher als die eines einzelnen, gespeicherten Ions [13]. Eine Kombination beider Vorteile, hohes Signal-zu-Rausch-Verhältnis und optische Spektroskopie im Lamb-Dicke-Bereich, könnte möglicherweise mit einer sogenannten 'Lattice-Clock' erreicht werden [15]. In einem optischen Gitter werden dabei viele neutrale Atome jeweils einzeln in einem Potentialtopf innerhalb des Lamb-Dicke-Bereichs festgehalten und dann gemeinsam ihr schmalbandiger, optischer Referenzübergang spektroskopiert. Es bleibt allerdings zunächst noch zu zeigen, inwieweit sich systematische Frequenzverschiebungen aufgrund des optische Gitters kontrollieren lassen.

Die in Einzelionen-Experimenten erreichbare Genauigkeit von optischen Frequenzmessungen erlaubt die Untersuchung der fundamentalen Frage der tatsächlichen Konstanz der Naturkonstanten. Aus vereinheitlichten Theorien der Physik ergibt sich die Möglichkeit einer langsamen zeitlichen Veränderung der fundamentalen Wechselwirkungskonstanten [16,17]. Da für die atomaren Referenzfrequenzen der untersuchten einzelnen Ionen Genauigkeiten bis in die Größenordnung von 10^{-18} erwartet werden, bieten sie ein ideales System, um nach einer möglichen Änderung etwa der Feinstrukturkonstante mit höchster experimenteller Präzision zu suchen [18,19].

Im Rahmen dieser Dissertation werden Experimente im Hinblick auf die Realisierung eines der aussichtsreichsten Kandidaten für ein optisches Frequenznormal, einem einzelnen Indium-Ion, vorgestellt. Kapitel 2 führt in die physikalische Idee, Motivation und konkrete Realisierung eines In⁺-Frequenzstandards ein. Dabei wird der experimentell erreichte Stand der hochauflösenden Spektroskopie neben der prinzipiell erreichbaren Genauigkeit dargelegt. In Kapitel 3 wird das Konzept und die experimentelle Umsetzung der Speicherung einzelner Ionen erläutert. Es wird auf Probleme eingegangen, die eine kontinuierliche Speicherung und Spektroskopie von In⁺ bisher behinderten. Als eine wesentliche Problemquelle stellt sich die Art der Ionisierung der Indium-Atome durch einen Elektronenstrahl in der Falle dar. Kapitel 4 beschreibt die daher neu im Experiment implementier-

1. Einleitung

te Methode der Photoionisation, ihre konzeptionellen Vorteile und deren direkte Auswirkungen im Experiment.

In Kapitel 5 werden der Aufbau und die Charakteristika eines neuen Kühllasersystems für In⁺ vorgestellt. Auf Basis von Dioden und Festkörpersystemen realisiert, ermöglicht es den Dauerbetrieb des Frequenznormals, der für die angestrebte Erhöhung der Genauigkeit unerlässlich ist. Darüberhinaus bietet sich dieses äußerst vielseitige Lasersystem für viele Anwendungen in der Quantenoptik und Atomphysik und für kommerzielle Einsätze an. Die erreichte Frequenzstabilität eröffnet den Bereich hochauflösender Spektroskopie, die hohe Leistung im blauen Spektralbereich könnte beispielsweise im Bereich Laser-TV Verwendung finden.

Die seit den siebziger Jahren entwickelten Methoden der Laserkühlung von Atomen und gespeicherten Ionen [7,8] legten den Grundstein für hochauflösende spektroskopische Experimente an einzelnen Teilchen. Die im Bezug auf niedrigste Temperaturen gespeicherter Ionen effizienteste und konzeptionell einfachste Methode ist dabei die Seitenbandkühlung [7, 20]. Das In⁺-Experiment stellt ein einzigartiges Modellsystem der Seitenbandkühlung dar und eignet sich daher vorzüglich zu ihrer experimentellen Demonstration und Analyse. Kapitel 6 widmet sich der Seitenbandkühlung in der Ionenfalle. Nach einer Einführung in die bestehende Theorie wird eine experimentelle Bestimmung der Temperatur des Einzelions anhand von optisch-optischer Doppelresonanz, der konzeptionell überzeugendsten Methode, präsentiert. Es folgt eine Erweiterung der Standardtheorie der Seitenbandkühlung, bei der in einem semiklassischen Modell der Einfluss von Mikrobewegung auf die Kühldynamik berücksichtigt wird. Dazu werden Simulationen vorgestellt, die eine deutliche Veränderung der Kühldynamik mit der im Experiment präzise einstellbaren Mikrobewegung zeigen. Speziell ergibt sich, dass eine Kühlung des Ions bei positiver Laserverstimmung erreicht werden kann. Der experimentelle Nachweis dieser Vorhersagen wird anhand der Spektroskopie des Kühlübergangs geliefert.

Kapitel 2

Indium als optische Uhr

Aufgrund ihres überragenden Potentials zur Realisierung eines optischen Frequenzstandards werden gegenwärtig verschiedene gespeicherte Einzelionen experimentell untersucht [5]. Einige dieser Experimente befinden sich derzeit bereits im Wandel von der Demonstration ihrer prinzipiellen spektroskopischen Möglichkeiten hin zu deren Nutzung. In kontinuierlich betriebenen Systemen kann dabei die spektroskopische Genauigkeit so weit gesteigert werden, dass dadurch einerseits fundamentale physikalische Fragen, wie eine mögliche zeitliche Veränderung der Wechselwirkungskonstanten, experimentell untersucht werden können. Anderseits rückt dadurch die Realisierung eines optischen Frequenzstandards auf Basis eines einzelnen Ions näher. Im Hinblick darauf wurden vom Comité International de Poids et Mesures bereits vier der untersuchten Einzelionen Referenzübergänge in die Liste der empfohlenen Wellenlängen zur Realisierung des Meters und allgemein einer optischen Referenzfrequenz aufgenommen [21]. Neben ¹⁹⁹Hg⁺, ¹⁷¹Yb⁺ und ⁸⁸Sr⁺ gehört dazu das im Rahmen dieser Arbeit untersuchte

2.1 Niveauschema von In⁺

Zwei wesentliche Vorteile von In⁺ im Vergleich zu anderen hinsichtlich eines optischen Frequenznormals untersuchten Ionen ergeben sich aus dem Erdalkalie-ähnlichen Niveauschema seiner energetisch niedrigsten Zustände, das in Abbildung 2.1 dargestellt ist.

Der erste Vorteil liegt in der Möglichkeit einer einfachen und effektiven Kühlung allein durch die Anregung der Interkombinationslinie zwischen dem Grundzustand $5s^2$ 1S_0 und dem 5s5p 3P_1 Niveau bei 230,6 nm. Mit der natürlichen Linienbreite von $\Gamma/2\pi=360$ kHz dieses Übergangs kann das Regime der starken

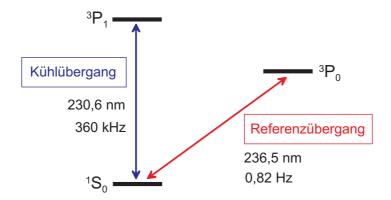


Abbildung 2.1: Schema der energetisch niedrigsten Niveaus von In⁺. Die Vorzüge gegenüber anderen im Hinblick auf einen optischen Frequenzstandard untersuchten Ionen ergeben sich aus der Einfachheit der Kühlung und der hohen Unabhängigkeit der Referenzfrequenz gegenüber systematischen Verschiebungen.

Bindung in der Ionenfalle erreicht und dadurch die effiziente Seitenbandkühlung angewendet werden (siehe Kapitel 6). Die vom Ion dabei ausgesendete Fluoreszenz ist bei sorgfältiger Detektion ausreichend für eine zuverlässige Spektroskopie [22]. Durch optisches Pumpen in die extremalen Zeemann-Unterniveaus bei einer Anregung mit zirkular polarisiertem Licht kann effektiv ein 2-Niveau-System präpariert werden. Dies erlaubt eine Kühlung bis nahe an den Grundzustand der Falle [23] durch einfaches Einstrahlen nur eines Lasers. Im Gegensatz dazu stehen die komplizierten, mehrstufigen Kühlschemata mit zusätzlichen Rückpumplasern bei allen anderen Ionen-Experimenten.

Als Referenz eines In⁺-Frequenznormals dient die Übergangsfrequenz zwischen den Zuständen $5s^2\,^1S_0$ und $5s5p\,^3P_0$ bei 236,5 nm, mit einer natürlichen Linienbreite des Übergangs von $\Gamma/2\pi=0,82$ Hz [22]. Dieser Übergang zwischen zwei Zuständen mit jeweils verschwindendem elektronischen Gesamtdrehimpuls ist zunächst in allen Multipolordnungen verboten und nur durch hyperfeininduzierte Beimischungen der Niveaus 3P_1 und 1P_1 als elektrischer Dipolübergang möglich. Daraus resultieren extrem geringe systematische Verschiebungen der Referenzfrequenz durch mögliche äußere Störfelder. In Kapitel 2.3 wird eine Abschätzung der im Einzelnen zu erwartenden Frequenzverschiebungen gegeben. Insbesondere, und dies stellt den zweiten Vorteil von In⁺ dar, ist dieser Übergang frei von einer Quadrupolverschiebung, da das Quadrupolmoment von Anfangs- und Endzustand jeweils verschwindend ist. Im Vergleich dazu besitzen alle anderen bisher hinsichtlich eines optischen Frequenznormals untersuchten Einzelionen ein Alkali-

ähnliches Niveauschema, bei dem jeweils ein schmalbandiger Übergang zwischen einem Grudzustand mit J=1/2 und einem energetisch höherliegenden Zustand mit J>1/2 angeregt wird. Das Quadrupolmoment der oberen Zustände macht diese Übergänge jedoch empfindlich gegenüber Frequenzverschiebungen durch äußere elektrische Feldgradienten, was die erreichbare Genauigkeit so realisierter Frequenzstandards substanziell beschränken könnte [24,25].

2.2 Hochauflösende Spektroskopie

Zur Spektroskopie des äußerst schmalbandigen ${}^1S_0 \rightarrow {}^3P_0$ Referenzübergangs wird in optisch-optischer Doppelresonanz die von Dehmelt vorgeschlagene Methode des 'electron-shelving' [12] realisiert. Beobachtet wird das Ion dabei anhand des Fluoreszenzsignals des Kühlübergangs. Aufgrund des V-förmigen Niveauschemas, bei dem Kühl- und Referenzübergang vom gleichen Grundzustand ausgehen, kann eine Anregung in das metastabile 3P_0 -Niveau bis zum spontanen Zerfall als ein Dunkelzustand in der Fluoreszenz des Ions nachgewiesen werden. So verhindert die Absorption eines Photons zur Anregung des Referenzübergangs eine Streuung von 10^5 - 10^6 Photonen auf dem Kühlübergang. Diese Art der Verstärkung erlaubt die Detektion auch sehr schmalbandiger Übergänge mit einer Nachweiswahrscheinlichkeit von praktisch 100 %. Experimentell wurde 'electron-shelving' erstmals in den achtziger Jahren demonstriert [26–28]. Abbildung 2.2 zeigt schematisch den für diese Spektroskopie verwendeten Aufbau des In⁺-Experiments.

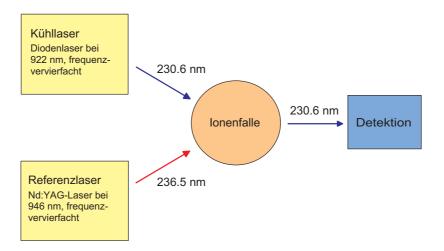


Abbildung 2.2: Schematischer Aufbau des Indium-Experiments.

Die zufällige Koinzidenz der vierten Subharmonischen der Referenzfrequenz von

In⁺ mit der Nd:YAG Linie bei 946 nm erlaubt die Nutzung eines Festkörperlasersystems mit hoher intrinsischer Frequenzstabilität als Referenzlaser [29]. Aufbau und Eigenschaften des im Rahmen dieser Arbeit entwickeltes Kühllasersystems sind in Kapitel 5 detailliert beschrieben.

Zur Vermeidung möglicher Lichtverschiebungen und Linienverbreiterungen des Referenzübergangs durch das Licht des Kühllasers werden zur Doppelresonanz-Spektroskopie beide Laser mit Hilfe von mechanischen Shuttern nur abwechselnd eingestrahlt. Die Pulslänge des Referenzlasers beträgt dabei typischerweise 20 ms, die sich anschließende Nachweiszeit unter Einstrahlung des Kühllasers 40 ms. Detektiert man in letzterer Phase Fluoreszenzphotonen, erfolgte keine Anregung des Referenzübergangs. Werden während der Nachweiszeit jedoch keine Fluoreszenzphotonen detektiert, wird dies als eine erfolgreiche Anregung des Referenzübergangs gewertet. Der Kühllaser wird dann weiter eingestrahlt, bis die Besetzung des metastabilen Niveaus spontan zerfällt, und die Fluoreszenz wieder ansteigt. Die Frequenz des Referenzlasers wird in Schritten von einigen Hertz verändert, und für jede Frequenz erfolgen mehrere Anregungsversuche. Durch ein Summieren der Anzahl der Anregungen in festen Frequenz-Intervallen entsteht dann das Spektrum. Abbildung 2.3 zeigt ein so gewonnenes hochaufgelöstes Spektrum des Referenzübergangs [22].

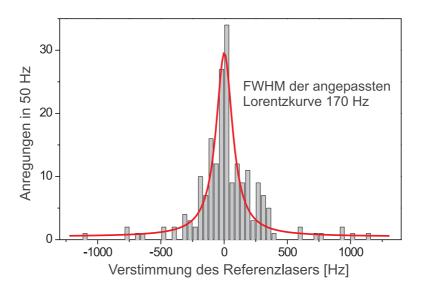


Abbildung 2.3: Hochaufgelöstes Spektrum des In⁺-Referenzübergangs. Die gemessene Linienbreite von 170 Hz stellt eine relative Auflösung von $1,3\cdot 10^{-13}$ dar

Die Leistung des Referenzlasers wurde zur Vermeidung von Sättigungsverbreite-

rung auf etwa 30 nW reduziert. Abbildung 2.3 stellt eine Überlagerung von 20 nacheinander aufgenommenen Spektren nach der Korrektur einer linearen Drift der Frequenz des Referenzlasers dar. Die Aufnahme eines Spektrums nimmt 2 bis 3 Minuten in Anspruch. Die angepasste Lorentz-Kurve zeigt eine Linienbreite (FWHM) von 170 Hz, was einer relativen Auflösung von $\Delta\nu/\nu=1, 3\cdot 10^{-13}$ entspricht. Höhere optische Auflösungen in Einteilchen-Experimenten konnte bisher nur bei den gespeicherten Ionen ¹⁹⁹Hg⁺ mit $\Delta\nu/\nu=6, 3\cdot 10^{-15}$ [30] und ¹⁷¹Yb⁺ mit $\Delta\nu/\nu=4, 4\cdot 10^{-14}$ [31] erzielt werden.

Die erreichte spektroskopische Auflösung ist nahezu vollständig durch die Linienbreite des anregendes Lasersystems bestimmt [22,32]. Bei einer Spektroskopie mit einem neu entwickelten Referenzlasersystem, das eine deutlich geringere Linienbreite besitzt [32,33], lässt sich für die Zukunft eine weitere Verbesserung der Auflösung erwarten.

2.3 Systematische Frequenzverschiebungen

Die erreichbare Genauigkeit eines Einzelionen-Frequenzstandards kann weitaus höher sein als die Liniengüte des Referenzübergangs. Die Stabilität des Standards ist durch die Allan-Varianz $\sigma(\tau)$ gegeben, in die folgende Größen eingehen:

$$\sigma(\tau) \sim \frac{\Delta \nu}{\nu \cdot S/N \cdot \sqrt{\tau}}$$
 (2.1)

 ν ist dabei die Referenzfrequenz; ihr Auftreten im Nenner motiviert den Übergang von Mirowellenstandards zu optischen Frequenzen. S/N bezeichnet das Signal-zu-Rausch-Verhältnis bei der Messung der Referenzfrequenz, das bei einem einzelnen Ion aufgrund von Quantenrauschen beim Zustandsnachweis maximal den Wert 1 erreichen kann [34]. τ ist die Mittelungszeit, die bei der Spektroskopie gespeicherter Ionen praktisch unbegrenzt ist. Mit der Liniengüte $\Delta\nu/\nu=6,5\cdot 10^{-16}$ des In⁺-Referenzübergangs scheint prinzipiell eine Stabilität von $\sigma(1s)=10^{-15}$ erreichbar. Durch eine Verlängerung der Mittelungszeit τ kann die Allan-Varianz jedoch weiter verringert werden. Eine Erhöhung der Stabilität durch längeres Mitteln kann solange fortgesetzt werden, bis die prinzipielle Genauigkeitsgrenze des Standards durch systematische Frequenzverschiebungen der Referenzfrequenz aufgrund von äußeren Einflüssen erreicht ist. Die relevanten zu erwarteten systematischen Linienverschiebungen des $^1S_0 \rightarrow ^3P_0$ Übergangs von In⁺ werden nun im Einzelnen aufgeführt [35].

1. Doppler-Effekt:

Bei einer Lokalisierung des Absorbers innerhalb des Lamb-Dicke-Bereichs (d.h., wenn sich das gespeicherte Ion in einem Raumbereich aufhält, der kleiner ist als die Wellenlänge des anregenden Laserlichts) führt der Dopplereffekt erster Ordnung zu diskreten Seitenbändern, die spektroskopisch aufgelöst werden. Die Spektroskopie des Trägers erfolgt daher rückstoßfrei [9] und frei von einem Dopplereffekt erster Ordnung.

Der relativistische Doppler-Effekt zweiter Ordnung führt dagegen abhängig von der Bewegung des Ions zu einer Linienverschiebung von $\delta\nu/\nu=\langle v^2\rangle/2c^2$, wobei $\langle v^2\rangle$ die mittlere quadratische Geschwindigkeit mit $\langle v^2\rangle=3k_BT/m$ ist. Im Experiment ist bei der Spektroskopie eine Temperatur des Ions von $T<300~\mu{\rm K}$ realisiert (siehe Kapitel 6.3), woraus sich eine Verschiebung von $\delta\nu/\nu<2.5\cdot10^{-19}$ ergibt. Ein weiterer Beitrag aufgrund von zusätzlicher Mikrobewegung in der Falle (siehe Kapitel 3) ist von der Größe $\Delta x^2\Omega^2/4c^2$, wobei Ω die Fallenantriebsfrequenz ist. Die Amplitude der zusätzlichen Mikrobewegung liegt im In⁺-Experiment routinemäßig bei $\Delta x<\lambda/20$ (siehe Kapitel 6.4.2). daraus ergibt sich eine relativistische Doppler-Verschiebung von $\delta\nu/\nu=1,5\cdot10^{-18}$. Die präzise experimentelle Kontrolle der zusätzlichen Mikrobewegung ist daher von relevanter Bedeutung.

2. Magnetische Felder:

Die Hyperfein-Mischungen der drei 5s5p-Niveaus 3P_0 , 1P_1 und 3P_1 ermöglichen den In⁺-Referenzübergang $^1S_0 \rightarrow {}^3P_0$ als elektrischen Dipolübergang. Aus dem gleichen Grund sind die g-Faktoren der beiden Niveaus 1S_0 und 3P_0 leicht verschieden [36]. Dies führt zu einer symmetrischen Zeemann-Aufspaltung des Referenzübergangs, der potentiell den größten Beitrag der systematischen Verschiebungen der In⁺-Referenzfrequenz darstellt. Die Zeemann-Aufspaltung wurde bereits im Experiment vermessen [22], und für die beiden Komponenten $m_F = \pm 1/2 \rightarrow m_F = \pm 1/2$ ergibt sich 224 Hz/G.

Zur Minimierung dieser Verschiebung kann ein Magnetfeld von einigen 10 mG angelegt werden, das beide Linien trennt. Eine Spektroskopie beider Komponenten erlaubt dann die Interpolation auf ein verschwindendes Magnetfeld als Mittelwert der zwei Linien. Bei dieser Methode liegt eine Unsicherheit in möglichen Driften des angelegten Magnetfelds oder der Laserfrequenz zwischen beiden Messungen. Alternativ kann bei verschwindendem Magnetfeld gearbeitet werden, um eine Überlagerung beider

Zeeman-Komponenten zu spektroskopieren. Ungenauigkeiten des magnetischen Felds führen dabei zu einer Verbreiterung der Resonanz und sind so direkt messbar. Eine Kontrolle des Magnetfelds auf $B=0\pm 10~\mu\mathrm{G}$, was mit Hilfe einer μ -Metall Abschirmung möglich sein sollte, würde dabei zu einer Unsicherheit der Referenzfrequenz von $1,8\cdot 10^{-18}$ führen.

3. Elektrische Felder:

Die Speicherung des Ions im elektrischen Quadrupolpotential der Falle kann zu Verschiebungen der Referenzfrequenz führen. Im zeitlichen Mittel ist das elektrische Feld $\langle E \rangle$ der Falle an jedem Ort verschwindend, nicht jedoch das zeitgemittelte Quadrat $\langle E^2 \rangle$. Damit tritt ein von der Restbewegung des Ions abhängiger quadratischer Stark-Effekt auf. Eine Abschätzung der Polarisierbarkeit von In⁺ durch den Vergleich mit dem isoelektrischen, neutralen Cd [35] liefert eine obere Grenze für die zu erwartende Verschiebung. Bei den Temperaturen des Ions unter 300 μ K ergibt sich $\delta\nu/\nu < 1 \cdot 10^{-20}$. Mit dem Abstand vom Fallenzentrum nimmt $\langle E^2 \rangle$ jedoch quadratisch zu und eine zusätzliche Mikrobewegung muss daher ebenfalls berücksichtigt werden. Die gewährleistete Kontrolle der zusätzlichen Mikrobewegung unterhalb einer Amplitude von $\lambda/20$ führt zu einer Verschiebung $\delta\nu/\nu < 4 \cdot 10^{-20}$.

4. Lichtverschiebungen:

Durch das mechanische Verschließen des Kühllasers während der Abfrage des Referenzübergangs und der sorgfältigen Streulichtabschirmung der Vakuumkammer ist eine Lichtverschiebung aufgrund des Kühllasers ausgeschlossen. Für eine Lichtverschiebung durch den Referenzlaser muss dadurch, dass beide Niveaus des Referenzübergangs mit jeweils J=0 keine Hyperfeinaufspaltung besitzen, nur eine Kopplung mit dem etwa 37 THz entfernten 3P_1 -Niveau berücksichtigt werden. Bei der verwendeten Leistung des Referenzlasers von unter 100 nW liegt diese Verschiebung bei $\delta\nu/\nu < 4\cdot 10^{-20}$. Da sich Falle und Vakuumtank jedoch bei Raumtemperatur befinden, ist der Referenzübergang des Ions durch die Schwarzkörperstrahlung einer quadratischen Stark-Verschiebung ausgesetzt. Die Abschätzung dieses Effekts über die statische Polarisierbarkeit von In⁺ [35] ergibt eine relative Verschiebung bei 300 K im Bereich von $5\cdot 10^{-17}$. Eine Stabilisierung der Umgebungstemperatur auf 300 ± 1 K ließe die Unsicherheit dieser Verschiebung jedoch auf $\delta\nu/\nu=7\cdot 10^{-19}$ reduzieren.

Zusammenfassend ergibt sich, dass die zu erwartenden systematischen Linienverschiebungen des In⁺-Referenzübergangs einen optischen Frequenzstandard mit

einer Genauigkeit im Bereich von 10^{-18} ermöglichen sollten. Damit eröffnet sich zusätzlich die Möglichkeit, mit hoher Präzision experimentell nach einer zeitlichen Variation der Feinstrukturkonstante α zu suchen.

2.4 Der Weg zur Uhr - Frequenzvergleiche

Eine Erhöhung der Stabilität in den Bereich der letztlich limitierenden systematischen Frequenzverschiebungen erfordert den Übergang von der reinen Spektroskopie des Referenzübergangs zu einer aktiven Stabilisierung der Laserfrequenz auf den atomaren Übergang. Durch das im Einzelionen-Experiment prinzipiell auf 1 beschränkte Signal-zu-Rausch-Verhältnis der 'electron-shelving'-Spektroskopie und die geringe natürliche Linienbreite des Übergangs muss eine solche Rückkopplung auf der Zeitskala von Sekunden erfolgen. Unterhalb dieser Zeitdauer sind damit höchste Anforderungen an die Frequenzstabilität des Referenzlasers verbunden, die durch dessen Anbindung an einen passiven Resonator hoher Güte gewährleistet sein müssen.

Im optimalen Fall von $\sigma(1s)=10^{-15}$ erreicht man Stabilitäten im Bereich der durch systematische Linienverschiebungen bestimmten Genauigkeitsgrenze von 10^{-18} nach einer Mittelungszeit von etwa 12 Tagen. Jede Abweichung vom optimalen Wert für $\sigma(1s)$, hervorgerufen etwa durch eine nicht vernachlässigbare Linienbreite des anregenden Referenzlasers, verlängert die dazu notwendige Mittelungszeit τ zusätzlich stark, da τ wurzelförmig in die Allan-Varianz eingeht. Daher stellt die Möglichkeit eines kontinuierlichen Betriebs aller im Experiment verwendeten Komponenten eine notwendige Voraussetzung für das Erreichen der angestrebten Genauigkeit dar.

Die Messung von systematischen Verschiebungen ist nur durch einen Vergleich der Referenzfrequenz mit einer zweiten Frequenz mindestens gleicher Genauigkeit möglich. Die Überlegenheit eines neuen Frequenzstandards kann daher nur eindeutig durch einen Vergleich der Referenzfrequenzen zweier identischer aber unabhängiger Systeme demonstriert werden. In ersten Experimenten an der Physikalisch-Technischen-Bundesanstalt in Braunschweig wurde dazu bereits mit einem Vergleich der Referenzfrequenzen zweier gespeicherter ¹⁷¹Yb⁺-Ionen im sub-Hertz-Bereich begonnen [37].

Ein Vergleich verschiedener optischer Frequenzen, oder optische Frequenzen mit Mikrowellenstrahlung, stellte vor einigen Jahren noch einen immensen technischen Aufwand dar. Die Entwicklung oktavenbreiter optischer Frequenzkämme [38], die durch Moden-stabilisierte Femptosekunden-Laser erzeugt und durch ei-

ne optischen Faser mit photonischen Kristall-Eigenschaften verbreitert werden, hat dies jedoch revolutionär erleichtert [39]. Im Hinblick auf eine optische Uhr stellt dies einen wesentlichen Vorteil dar, da für eine technische Anwendung jede hochstabile optische Laserfrequenz zuerst in ein Mikrowellen- oder Radiofrequenzsignal umgewandelt werden muss.

Zur Demonstration der Genauigkeit bietet sich der Vergleich einer hochstabilen Referenzfrequenz mit einem der derzeitigen primären Frequenzstandards, der 9,19 GHz Referenzfrequenz einer $^{133}\text{Cs-Fontäne}$, an. Die vierte Subharmonische der In⁺-Referenzfrequenz bei 946 nm wurde dazu mit Hilfe eines optischen Frequenzkamms [40] gegenüber einem Methan-stabilisierten He-Ne-Laser bei 3,39 μm verglichen [41]. Da dieser zuvor gegenüber einem primären $^{133}\text{Cs-Frequenzstandard kalibriert wurde}$, stellt dies einen Frequenzvergleich gegenüber Cs und damit eine Messung der Absolutfrequenz des In⁺-Referenzübergangs dar, im Ergebnis zu 1 267 402 452 899, 92±(0, 23) kHz. Die erreichte Genauigkeit von 1, 8·10 $^{-13}$ der Messung war dabei nur durch die Ungenauigkeit des Sekundärstandards limitiert.

Die erreichbare Genauigkeit der In⁺-Referenzfrequenz kann durch einen Vergleich gegenüber anderen hochstabilen optischen Übergängen die Suche nach einer langsamen zeitlichen Veränderung der Feinstrukturkonstante α ermöglichen [17–19,42]. Für eine relative Veränderung $\delta\alpha/\alpha=10^{-15}$ pro Jahr beispielsweise wurde eine Verschiebung der $^1S_0 \to {}^3P_0$ Referenzfrequenz von 260 mHz pro Jahr vorhergesagt [43]. Selbst weitaus geringere Veränderungen von α kämen bei der erwarteten Genauigkeit des In⁺-Frequenzstandards für eine experimentellen Untersuchung in Betracht. Zum Nachweis dieser Verschiebung könnte der $^1S_0 \to {}^3P_0$ Übergang mit der $1S \to 2S$ Linie von Wasserstoff bei 122 nm verglichen werden, die von α nur über die Rydbergkonstante abhängt [43], und damit in der relativen Frequenzmessung einen Fixpunkt darstellen würde.

Kapitel 3

Speicherung von Indium-Ionen

Die Speicherung einzelner geladener Atome durch elektromagnetische Wechselfelder oder einer Kombination aus elektrischen und magnetischen Felder [44, 45] eröffnete die Möglichkeit, fundamentale Quanteneffekte an definierten Einzelsystemen, weitgehend entkoppelt von der klassischen Außenwelt, experimentell zu demonstrieren. Dazu zählen beispielsweise der Nachweis von einzelnen Quantensprüngen [26–28], von nicht-klassischem Licht [46] und von nicht-klassischen Bewegungszuständen [47], die Interferenz [48] und die Verschränkung [49, 50] einzelner Atome, die Untersuchung des Übergangs zwischen klassischer Physik und Quantenmechanik [51, 52] sowie ein experimenteller Beweis der Verletzung der Bellschen Ungleichung [53].

Im Hinblick auf die Spektroskopie höchster Präzision steht jedoch neben der fundamentalen Einfachheit des Absorbers die praktisch unbegrenzte Beobachtungsund damit Mittelungszeit im Vordergrund. Ein Übergang von Demonstrationsexperimenten mit Ionenfallen hin zu ihrer Nutzung als zuverlässigen, dauerhaft
betriebenen Werkzeugen der Spektroskopie vollzieht sich dazu gegenwärtig. Die
Eliminierung aller eine kontinuierliche Spektroskopie störender Effekte bei der
Speicherung stellt dabei eine notwendige Vorraussetzung zur Realisierung eines
Frequenzstandards auf der Basis eines gespeicherten Ions dar.

3.1 Theorie der dynamischen Speicherung

Zur Speicherung eines geladenen Teilchens allein durch ein elektrisches Feld bedarf es eines Potentials, das in alle drei Raumrichtungen anziehend ist. Ein statisches Potential beliebiger Ladungsverteilung kann nach der Poissongleichung aber im freien Raum maximal in zwei Richtungen anziehend sein, was in niedrigster

Ordnung durch ein Quadrupolpotential erfüllt wird. Eine zeitliche Oszillation dieses Potentials kann den geforderten dreidimensionalen Einschluss gewährleisten. Das zeitabhängige Quadrupolpotential der Form

$$\Phi(r, z, t) = (U_0 - V_0 \cos \Omega t) \frac{r^2 - 2z^2}{2\rho^2},$$
(3.1)

ist zu einem festen Zeitpunkt zwar nur entweder in radialer oder z-Richtung anziehend, bei geeigneter Wahl der Gleichspannung U_0 , der Amplitude der Wechselspannung V_0 und der Fallenantriebsfrequenz Ω erfolgt aber durch den Vorzeichenwechsel der erzeugten Kräfte eine dynamische Speicherung des geladenen Teilchens. Abbildung 3.1 zeigt die Form der Elektroden einer solchen Paulfalle [6]. Sie entspricht den Äquipotentialflächen $r^2 - 2z^2 = \pm \rho^2$, also einer Ringelektrode mit Radius ρ und zwei symmetrischen Endkappen im Abstand $\sqrt{2}\rho$.

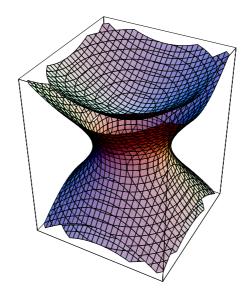


Abbildung 3.1: Hyperbolische Elektrodenform der idealen Paulfalle.

Die radiale Bewegung eines einfach geladenen Ions der Masse m in diesem Potential beschreibt die Mathieusche Differentialgleichung

$$\frac{d^2r}{d\tau^2} + (a_r - 2q_r\cos 2\tau)r = 0 {(3.2)}$$

mit den dimensionslosen Parametern

$$a_r = \frac{4eU_0}{m\Omega^2\rho^2} \qquad q_r = \frac{2eV_0}{m\Omega^2\rho^2} \qquad \tau = \frac{\Omega}{2}t \tag{3.3}$$

Eine analoge Bewegungsgleichung in z-Richtung erhält man durch Multiplikation der Fallenparameter a und q mit -2. Die allgemeine Lösung dieser Bewegungsgleichungen kann durch einen Floquet-Ansatz gefunden werden, beschränkte Lösungen und damit stabile Speicherung sind jedoch nur für bestimmte Wertepaare (a,q) möglich [54]. Der erste Stabilitätsbereich ist experimentell am Einfachsten zugänglich und wurde deshalb in sämtlichen bisherigen Ionenfallen-Experimenten benutzt. Für $a,q \ll 1$ ist eine stabile Speicherung unter der Bedingung

$$-q_r^2/2 < a_r < q_r^2 (3.4)$$

möglich. Abbildung 3.2 zeigt das Stabilitätsdiagramm a_r über q_r in dem für das Experiment relevanten Bereich kleiner a_r, q_r .

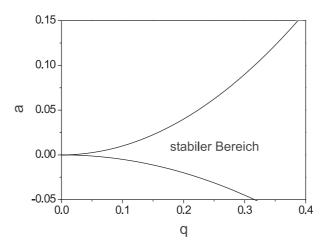


Abbildung 3.2: Ausschnitt aus dem ersten Stabiltätsbereich kleiner (a_r, q_r) der Mathieuschen Differentialgleichung, dem Operationsbereich der Falle. Die Speicherung erwies sich in allen Ionenfallenexperimenten bei etwa $q_r = 0, 2$ am stabilsten.

Im ersten Stabilitätsbereich vereinfacht sich für $a_r, q_r \ll 1$ die allgemeine Floquet-Lösung zur folgenden Bewegungsgleichung:

$$r(t) = r_0 \cos(\frac{\beta_r}{2}\Omega t)(1 + \frac{q_r}{2}\cos\Omega t) = r_0 \cos\omega_r t(1 + \frac{q_r}{2}\cos\Omega t)$$
 (3.5)

 β ist dabei in der mathematischen Beschreibung der Stabilitätsparameter [54] mit $0 < \beta < 1$ im ersten Stabilitätsbereich und $\beta_r = \sqrt{q_r/2 + a_r}$ (für $a, q \ll 1$). Die Säkularfrequenzen $\omega_{r,z}$ ergeben sich als folgende Ausdrücke:

$$\omega_r = \frac{\Omega}{2\sqrt{2}}\sqrt{q_r^2 + 2a_r} \qquad \omega_z = \frac{\Omega}{\sqrt{2}}\sqrt{q_z^2 - a_z}$$
 (3.6)

Die Bewegung des gespeicherten Ions setzt sich folglich aus zwei gekoppelten Teilbewegungen zusammen: Einer langsamen Oszillation, der Säkularbewegung, entlang der Hauptachsen der Falle mit den Säkularfrequenzen ω_r und ω_z überlagert sich eine schnelle Oszillation mit der Fallenantriebsfrequenz Ω , die (gewöhnliche) Mikrobewegung. Im Bewegungsspektrum existieren dabei keine ganzzahligen Vielfachen von Ω , sondern lediglich Summen oder Differenzen mit den Säkularfrequenzen ω .

Verschiebt ein zusätzliches statisches Potential das Ion aus der feldfreien Fallenmitte heraus, was im Experiment durch die Anwesenheit eines zweiten Ions in der Falle oder durch ein Störpotential (siehe Kapitel 3.2.2) der Fall ist, verändert sich die Bewegungsgleichung zu:

$$r(t) = (r_1 + r_0 \cos \omega_r)(1 + \frac{q_r}{2} \cos \Omega t)$$
(3.7)

Im Bewegungsspektrum treten nun zusätzlich Resonanzen direkt bei der Fallenantriebsfrequenz Ω und ganzzahligen Vielfachen davon auf, die zusätzliche Mikrobewegung. Diese Bewegung entzieht sich einer möglichen Laserkühlung, da sie im Gegensatz zur gewöhnlichen Mikrobewegung nicht an die kühlbare Säkularbewegung gekoppelt ist.

Im betrachteten Bereich kleiner Fallenparameter $(a, q \ll 1)$ bietet das Konzept der adiabatischen Näherung [55,56] einen anschaulichen Einblick in die Dynamik des gespeicherten Ions. Hier separiert man von Beginn an Mikro- und Säkularbewegung zeitlich, eine zusätzliche Mikrobewegung wird zunächst nicht berücksichtigt. Das Ion in der Falle ist einem räumlich inhomogenen und zeitlich mit der Fallenantriebsfrequenz oszillierenden elektrischen Feld $E(r,z,t) = E_0(r,z)\cos\Omega t$ ausgesetzt. Das Ion oszilliert dadurch harmonisch mit der schnellen Fallenantriebsfrequenz Ω , auf einer langsamen Zeitskala verändert die zusätzliche Kraft durch die räumliche Inhomogenität des Felds die mittlere Position des Ions. Im Fall des Quadrupolfelds ist diese Kraft linear rücktreibend und lässt sich so als Ableitung eines harmonischen Pseudopotentials schreiben:

$$\Phi(r,z) = \frac{m\Omega^2}{16e} [(q_r^2 + 2a_r)r^2 + 4(q_r^2 - a_r)z^2] = \frac{m}{2e} (\omega_r^2 r^2 + \omega_z^2 z^2)$$
(3.8)

Im zeitlichen Mittel wirkt die quadratisch mit dem Abstand vom Fallenzentrum zunehmende schnelle Mikrobewegung demnach auf die langsame Säkularbewegung wie ein harmonisches Potential, das die Speicherung des Ions gewährleistet. Die Energie der Säkularbewegung ist dabei gleich der Energie der Mikrobewegung im zeitlichen Mittel [56]. Die Beschreibung der Säkularbewegung als eine Oszillation im harmonischen Pseudopotential der Falle liefert den Ausgangspunkt für die übliche Theorie der Laserkühlung gespeicherter Ionen (siehe Kapitel 6.1).

3.2 Realisierung: Paul-Straubel-Falle

Zur Speicherung einzelner Ionen eignet sich die hyperbolische Geometrie der idealen Paulfalle nur bedingt. Für eine möglichst gute Lokalisierung des Ions ist ein möglichst steiles Pseudopotential erforderlich, das sich durch eine Miniaturisierung der Falle am Einfachsten erreichen lässt. Ziel ist dabei, den für Kühlung und Spektroskopie optimalen Lamb-Dicke-Bereich zu erreichen, bei dem sich das gespeicherte Ion in einem Raumbereich aufhält, der kleiner als die Wellenlänge des anregenden Laserlichts ist. Die hyperbolische Form kann jedoch nur aufwändig in den notwenigen Dimensionen im mm-Bereich und darunter hergestellt werden. Außerdem bietet diese geschlossene Form keinen guten optischen Zugriff auf das Ion, weder zur Laser-Adressierung noch zur Detektion der Resonanzfluoreszenz. Verschiedene offene Modifikationen der Fallengeometrie, die in guter Näherung ebenfalls ein Quadrupolpotential erzeugen, haben sich deshalb durchgesetzt. Ein mögliches Design stellt dabei die Endkappenfalle [57] dar, die sich aus der Paulfalle durch Weglassen der Ringelektrode ergibt, und sich damit u.a. zur Speicherung einer linearen Kette von Ionen eignet.

Eine andere Modifikation der Paulschen Geometrie, die Paul-Straubel-Falle, entsteht durch Weglassen der Endkappen und der Vereinfachung der Elektrode zu einem Ring. Die in diesem Experiment verwendete Falle besteht aus einem zylindrischen Loch (Radius $\rho=0,5$ mm) in einem Elektrodenstreifen, der das Potential eines Rings erzeugt. In relativ großem Abstand zur Fallenelektrode definieren zwei ringförmige Endkappen den Potentialnullpunkt. Die Idee geht auf Straubel zurück, dem es in den fünfziger Jahren gelang, makroskopische, geladene Teilchen in einem einfachen Drahtring zu speichern [58]. Später konnten selbst einzelne 138 Ba $^+$ -Ionen in einem Drahtring gespeichert werden [59]. Abbildung 3.3 zeigt eine Photographie der im Indium-Experiment verwendeten Paul-Straubel-Falle.

Der Formalismus der idealen Paulfalle kann komplett auf die modifizierten Fallengeometrien übertragen werden, indem man die ursprünglichen Fallenparameter a und q durch den Spannungsverlustfaktor L dividiert. Dieser gibt an, um welchen Faktor man die an die modifizierte Falle angelegte Spannung erhöhen muss, um

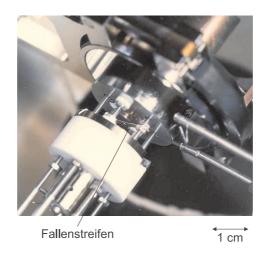


Abbildung 3.3: Photographie der Paul-Straubel-Falle. Rechts neben dem markierten Fallenstreifen ist der Indium-Ofen zu erkennen (Die Falle ist nicht in Nominalposition).

ein Quadrupolpotential gleicher Tiefe wie in einer idealen Paulfalle mit gleichem Radius zu erzeugen. Die so modifizierten Fallenparameter lauten:

$$a_r(L) = \frac{4eU_0}{Lm\Omega^2\rho^2}$$
 $q_r(L) = \frac{2eV_0}{Lm\Omega^2\rho^2}$ (3.9)

Der Spannungsverlustfaktor der verwendeten Falle wurde experimentell im üblichen Verfahren [60] durch Messung der Säkularfrequenzen bei verschiedenen Speicherparametern (a,q) zu $L=9\pm1$ bestimmt. Die Falle wird typischerweise bei $V_0=1000$ V, $U_0=30$ V und $\Omega/2\pi=9,825$ MHz betrieben, damit sind die Speicherparameter $q_r=0,18$ und $a_r=0,010$. Die experimentell bestimmten Säkularfrequenzen sind dabei $\omega_x/2\pi=880$ kHz, $\omega_y/2\pi=940$ kHz, $\omega_z/2\pi=1360$ kHz. Vorraussetzung einer stabilen Speicherung und der Anwendbarkeit des Formalismus ist, dass die modifizierten Fallengeometrien in guter Näherung ein Quadrupolpotential erzeugen und damit ihr Pseudopotential nur geringe Anharmonizitäten aufweist. Für das Design der Paul-Straubel-Falle wie auch der Endkappenfalle wurde dies in ausführlichen Rechnungen im Prinzip bestätigt [57], detailreiche Variationen wurden in [61] untersucht. In Kapitel 3.2.4 wird dies nochmals aufgegriffen.

3.2.1 **Aufbau**

Abbildung 3.4 zeigt detailliert den modularen Aufbau der Falle auf CF-35 im Vakuumtank mit Halterungen, Nachweisoptik und Elektronenkanone.

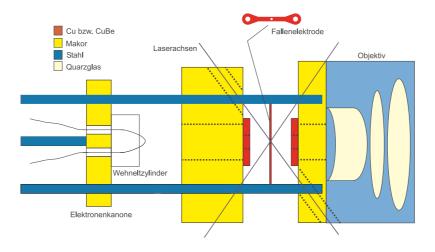


Abbildung 3.4: Detaillierter Aufbau der Fallenregion im Querschnitt von oben. Links ist die Elektronenkanone dargestellt, in der Mitte der Fallenstreifen und die Endkappen, rechts das dreilinsige Objektiv. Alle Macorteile bis auf die Streulichtabschirmung sind eingezeichnet.

Die elektronische Ansteuerung der Fallenelektrode mit Gleich- und Wechselspannung und der Sekundärelemente wie Kompensationselektroden, Ofen und Elektronenkanone ist in [62,63] ausführlich dargestellt. Der Ofen besteht aus Indiumdraht in einem Tantalröhrchen, das über den Stromfluss durch dünne Tantalzuleitungen aufgeheizt wird (siehe Abbildung 3.3).

3.2.2 Elektronentoßionisation

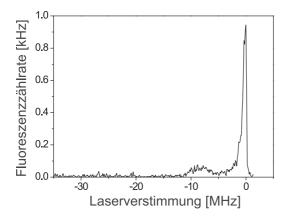
Die vom Ofen abgedampften Indium-Atome müssen zur Speicherung innerhalb der Falle ionisiert werden, da das Speicherpotential in adiabatischer Näherung konservativ ist und damit auch keine Ionen in den Potentialtopf hinein gelangen können. Dazu wurde bisher Stoßionisation mit einem Elektronenstrahl angewendet [62]. Von einem thorierten Wolframdraht emittierte Elektronen werden dabei mit etwa 150 V gegen eine Anode beschleunigt und mit einem Wehneltzylinder auf die Fallenregion fokussiert. Abbildung 3.4 zeigt die Anordnung der Elektronenkanone, die gegenüber dem Objektiv positioniert ist. Da beim Betrieb der

Elektronenkanone die Lichtemission des glühenden Wolframdrahts den Photomultiplier überlasten würde, ist ein Laden der Falle unter gleichzeitiger Fluoreszenzdetektion des Kühlübergangs auf diese Art unmöglich.

Diese üblicherweise in Ionenfallen verwendete Methode der Elektronenstoßionisation ist mit einigen gravierenden Nachteilen verbunden. Prinzipiell ist diese Ionisation in Ionenfallen-Experimenten nur nicht-resonant möglich und damit sehr ineffizient (siehe Kapitel 4.2.3). Die Ionisationsenergie von Indium liegt bei etwa 6 eV; die Elektronen müssen aber vor der Stoßionisation das weitaus stärkere Fallenfeld durchlaufen und daher stark beschleunigt werden, was die Ionisation nur nichtresonant ermöglicht. Eine relativ große Anzahl von Atomen des zu speichernden Elements muss deshalb in die Fallenregion gebracht werden, um in kurzer Zeit eine Wolke von Ionen zu erzeugen. Das führt zu einer Bedampfung der Fallenelektroden bei jedem Ladeprozess. Detaillierte Untersuchungen [64] legen Nahe, dass dadurch entstehende fleckenartige Kontaktpotentiale ('patch-potentials') auf den Fallenelektroden die Ursache einer Aufheizung des gespeicherten Ions sind, die experimentell in allen Einzelionenfallen mit effektiver Kühlung beobachtet werden konnte. Ein in den quantenmechanischen Grundzustand des Fallenpotentials gekühltes Einzelion verbleibt ohne dauerhafte Laserkühlung nicht im Grundzustand, sondern wird durch diesen Störeinfluss vibronisch angeregt. Dadurch sind Experimente, die den Grundzustand des Ions erfordern, wie die Realisierung eines Quantencomputers auf Basis gespeicherter Ionen [65,66], stark eingeschränkt. Für die Anwendung im Bereich hochstabiler Frequenznormale erhöhen sich dadurch mögliche systematische Linienverschiebungen, die an die Bewegungsenergie des Ions gekoppelt sind (siehe Kapitel 2.3). Die experimentell gefundenen Heizraten variieren je nach Experiment sehr stark [60, 64, 67–71] und erlauben leider keine eindeutige Zuordnung zu einem der theoretisch vorgeschlagenen mikroskopischen Heizmechanismen [64,72–76]. Eine systematische Zunahme der Heizrate mit abnehmender Oberflächenreinheit der Fallenelektroden konnte aber beobachtet werden [64]. Zur Reduzierung der Heizrate sollten Kontaktpotentiale auf den Fallenelektroden durch aufgedampftes Indium aus dem Ofen daher möglichst stark reduziert werden, was eine höhere Ionisationseffizienz erfordert.

Bei Anwendung der Elektronenstoßionisation steht dem kontinuierlichen Betrieb eines Frequenzstandards jedoch noch ein weiteres Problem im Weg. Der Strahl von Elektronen führt zu einer statischen Aufladung von Isolatorteilen (siehe Abbildung 3.4) in der Nähe der Fallenregion und damit zu einer zusätzlichen Mikrobewegung des gespeicherten Ions. Da diese Ladungen unkontrollierbar abfließen, variiert die zusätzliche Mikrobewegung und damit die Fluoreszenz des Kühlübergangs selbst auf kurzen Zeitskalen stark. Abbildung 3.5 demonstriert diese zeit-

liche Variation der Mikrobewegung anhand zweier Spektren des Kühlübergangs, die im zeitlichen Abstand von einigen Minuten aufgenommen worden sind.



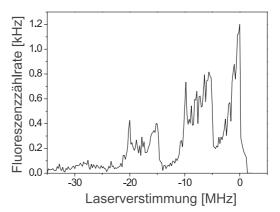


Abbildung 3.5: Zwei Spektren des Kühlübergangs eines einzelnen, gespeicherten Ions, aufgenommen im zeitlichen Abstand von einigen Minuten, nach Laden der Falle mit Hilfe der Elektronenstoßionisation. Während links ein Spektrum mit nahezu komplett kompensierter zusätzlicher Mikrobewegung zu sehen ist, zeigt das Spektrum rechts eine ausgepägte Seitenbandstruktur durch die Mikrobewegung (siehe dazu auch Kapitel 6.4.3). Dies dokumentiert das Driften statischer Störpotentiale bei Anwendung der Elektronenstoßionisation.

Um bei der Doppelresonanz-Spektroskopie eine klare Detektion des Referenzübergangs zu gewährleisten, muss diese Mikrobewegung in kurzen zeitlichen Abständen anhand einer Spektroskopie des Kühlübergangs bestimmt und anschließend kompensiert werden (siehe Kapitel 6.4.2). Dadurch wird eine kontinuierliche Abfrage des Referenzübergangs und damit ein dauerhafter Betrieb als Frequenznormal stark erschwert.

Zur Vermeidung der dargestellten Probleme wurde im Rahmen dieser Arbeit die Möglichkeit zur Photoionisation von Indium experimentell realisiert, wie in Kapitel 4 beschrieben wird.

3.2.3 Detektion des Fluoreszenzlichts

Der relativ schmalbandige Kühlübergang von In⁺ bietet mit einer natürlichen Linienbreite von $\Gamma/2\pi = 360$ kHz einerseits außergewöhnliche Vorteile bei der Laserkühlung, erfordert andererseits aber eine sehr effiziente Detektion des ultravioletten Fluoreszenzlichts und eine effektive Trennung von Signal und Streulicht. Daher ist die Elektrodenkonfiguration sehr offen und planar gewählt, was

eine rechtwinklige Detektion des Fluoreszenzlichts ermöglicht. Der Abstand zwischen dem Fallenstreifen und den ringförmigen Elektroden ist dabei relativ groß. Stabförmige Endkappen sehr nahe an der Elektrode würden zwar ein tieferes Fallenpotential erzeugen [61], jedoch die Detektion der geringen Fluoreszenzzählrate erschweren. Die Speicherregion wird zur Trennung von Signal und Streulicht durch das im Vakuum sitzende Sammelobjektiv auf eine Lochblende abgebildet; zusätzlich erfolgt eine Einschränkung des Gesichtsfelds durch eine Irisblende [62, 63]. Das Signal wird durch einen im sichtbaren Spektralbereich unempfindlichen Photomultiplier detektiert und in den Computer eingelesen, der das Experiment steuert. Damit konnte eine Dunkelzählrate unter 10 Hz bei einem Signal von 1000 Hz erzielt werden (siehe beispielsweise Abbildung 3.5).

Umbauten der Falle mit dem Ziel, auf den zentralen Macorhalter, in dem der Fallenstreifen und die beiden radialen Kompensationspins gehaltert sind, zu verzichten, um auf diese Weise die störende zeitlich veränderliche Mikrobewegung zu umgehen, zeigten einen äußerst kritischen Einfluss auf das Streulichniveau. Daher wurden detaillierte Messungen des Streulichts bei verschiedenen Änderungen im Aufbau des Vakuuminnern notwendig. Dabei wurde nach und nach die Geometrie der Fallenregion geöffnet und damit der Weg des Laserstrahls durch die Vakuumapperatur von störenden, streulichterzeugenden Hindernissen möglichst befreit. Außerdem wurden die Parameter des Laserstrahls, wie Fokusgröße, Divergenz, Durchgangswinkel durch die Falle und seine Modenform variiert, um in jeder Konfiguration jeweils minimales Streulicht zu erzielen.

Es zeigte sich, dass eine optimale Streulichtunterdrückung nicht wie erwartet in einer möglichst offenen Geometrie des Laserwegs, sondern durch eine Abschirmung der inneren Fallenregion in Laserrichtung zu erreichen ist. In Richtung des Objektivs darf jedoch keine Abschirmung erfolgen, um die Fluoreszenzzählrate nicht zu verringern. Ein objektivseits offener Macorzylinder mit seitlichen Öffnungen zum Durchgang eines stark kollimierten Laserstrahls, ähnlich dem früheren Halter des Fallenstreifens [62], wurde dazu in die Umgebung des Fallenstreifens eingebaut. Die Details der Geometrie sind in den Photographien von Fallenstreifen, Endkappen und dem Macorteil in Abbildung 3.6 erkennbar.

Zur Vermeidung des Problems statischer Ladungen durch ein Isolatormaterial in unmittelbarer Nähe der Falle, kann alternativ ein geerdeter Leiter zur Abschirmung der Fallenregion dienen. Dadurch entstehende Veränderungen des Speicherpotentials sind, wie eine Berechnung zeigte [61], sehr klein und sollten demnach die Speichereigenschaften der Falle nicht beeinträchtigen. Nach Realisierung der Photoionisation war dieser Umbau für das bestehende Experiment aber nicht mehr notwendig.

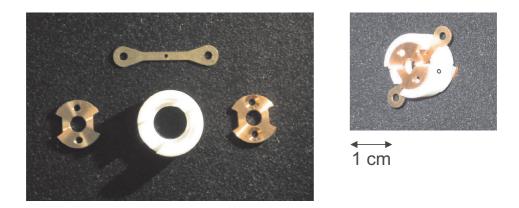


Abbildung 3.6: Links eine Photographie der Fallenteile in unmittelbarer Umgebung der Speicherregion: der Fallenstreifen mit zylindrischem Loch von 1 mm Durchmesser, die beiden ringförmigen Endkappen und die Streulichtabschirmung aus Macor. Die äußeren Löcher der jeweiligen Elektroden dienen der Halterung. Die innere Öffnung der Endkappen ermöglicht die Detektion des Ions auf der Objektivseite, gegenüber erlaubt es den Eintritt des Atomstrahls in die Fallenregion. Die Aussparungen am Macorteil zur Laserdurchführung und die Gewinde zum Einschrauben der Pins für die Kompensation radialer Störpotentiale sind im Bild kenntlich gemacht. Rechts die Aneinanderfügung der Einzelteile.

3.2.4 Langzeit-Speicherung

Die stabile Speicherung eines einzelnen ¹¹⁵In⁺-Ions in der verwendeten Falle ist problemlos über einen kompletten Messtag möglich. Ist das Ion jedoch mehrere Stunden ohne jegliche Laserkühlung in der Falle, so kann es zu einem Verlust des Ions kommen. Obwohl ein erneutes Speichern nur eine kurze Zeitspanne erfordert, wäre für den kontinuierlichen Betrieb des Frequenznormals eine Speicherung über viele Monate und unabhängig von der Laserkühlung wünschenswert. Wegweisend in diesem Hinblick könnten dabei die außergewöhnlich langen Speicherzeiten eines einzelnen ¹⁷¹Yb⁺-Ions sein, das in einer Paulfalle an der Physikalisch-Technischen-Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig unabhängig von einer Laserkühlung über einen Zeitraum von über einem Jahr gespeichert werden konnte [37]. Ausgehend davon könnten Unterschiede der für Yb⁺ und In⁺ verwendeten Fallen Hinweise auf die Gründe für einen Verlust des gespeicherten Ions geben.

Mögliche Anharmonizitäten des Pseudopotentials in der konkreten Realisierung der Paul-Straubel-Falle kämen für einen Ionenverlust in Frage. Zur Untersuchung dessen wurden detaillierte Berechnungen der Fallentiefe und Anharmonizität der verwendeten Geometrie, Vergleiche bei Modifikationen aller wesentlicher Parame-

ter dieser Geometrie und Vergleiche zu der an der PTB verwendeten Geometrie durchgeführt [61]. Im Vergleich zu den Fallentiefen sind die gefundenen Anharmonizitäten des Pseudopotentials jedoch immer klein [57,61]. Daher erscheinen Anharmonizitäten allein als Grund für einen Ionenverlust nicht naheliegend. Die im Vergleich zur In⁺-Falle größere Potentialtiefe der Yb⁺-Falle aufgrund ihres näher an der Paulfalle liegenden Designs macht die Speicherung jedoch unkritischer gegenüber Aufheizungseffekten des Ions. Der im Vergleich zu dem bei In⁺ etwa um den Faktor 100 breitere Kühlübergang von Yb⁺ erfordert weniger Rücksicht beim Design der Fallengeometrie auf die Detektion.

Die in Kapitel 3.2.2 diskutierte Aufheizung des einzelnen ${\rm In^+}$ -Ions in der verwendeten Falle durch Kontaktpotentiale auf der Fallenelektrode liegt, ausgehend von Temperaturen nahe dem Schwingungsgrundzustand, bei 10^2 - $10^3~\hbar\omega/s$ [60]. Verglichen mit der Tiefe des Fallenpotentials von einigen eV ist diese Aufheizung gering. Jede Vergrößerung der Bewegungsamplitude des gespeicherten Ions erhöht jedoch den Einfluss der Anharmonizitäten des Fallenpotentials, was wiederum zu einer höheren Bewegungsamplitude führen kann. Ohne Laserkühlung kann sich damit ein verstärkender Aufheizungsprozess des Ions in Gang setzten, der zu einem Verlust des Ions führt. Eine Bedampfung der Elektrode bricht zusätzlich die Symmetrie der Falle, was wiederum zu Anharmonizitäten des Fallenpotentials führen kann. Ein Verlust des gespeicherten Ions durch diese Effekte ist also nicht auszuschließen, weshalb auch im Hinblick auf die Speicherzeit eine Bedampfung der Fallenelektrode möglichst vermieden werden sollte.

Stöße mit dem Restgas im Vakuumtank könnten, je nach Zusammensetzung des Hintergrundgases vor allem mit schweren Teilchen, auch bei dem sehr kleinen Geamtdruck von etwa 10^{-10} mbar als Verlustprozess in Frage kommen. Auch chemische Reaktionen von ¹¹⁵In⁺ mit dem Hintergrundgas wären denkbar und sind als mögliches Speicherhindernis bekannt. Die stabile Speicherung von ¹⁹⁹Hg⁺ am National Institute for Standards and Technology (NIST) in Boulder ist aufgrund einer chemischen Reaktion von metastabilem Hg⁺ im *D*-Niveau mit neutralem Hg des Hintergrundgases nur unter kryogenen Temperaturen möglich, bei denen der verbleibende Partialdruck von Hg sehr gering ist [77]. Einen weiteren Hinweis auf vorrangig chemische Ursachen für den Verlust gespeicherter Ionen ergibt sich aus der Tatsache, dass Yb⁺ auch in einer Endkappenfalle am National Physical Laboratory (NPL) in Teddington bis zu einem Monat gespeichert werden konnte [78]. Bezüglich Anharmonizitäten ist die dabei verwendete Endkappenfalle [57] der für In⁺ verwendeten Paul-Straubel-Falle keinesfalls überlegen, was folglich eher auf einen chemischen Vorteil von Yb⁺ hinweist.

Kapitel 4

Photoionisation

Im gegenwärtigen Prozess der Optimierung von Ionenfallen zu zuverlässigen experimentellen Werkzeugen gliedert sich die Vermeidung der im letzten Kapitel angesprochenen Probleme ein, die mit der Elektronenstoßionisation verbunden sind. Dazu wurde bereits in einigen Ionenfallen-Experimenten die Methode der Photoionisation implementiert [79–81]. Die dazu verwendeten Schemata benutzen jeweils zwei Laser und teilweise zusätzlich das Fallenfeld zur Ionisierung. Wesentlich einfacher, mit nur einem Laser in Form eines kompakten gitterstabilisierten Diodenlasers, konnte im Rahmen dieser Arbeit eine effiziente Photoionisation von Indium realisiert werden.

4.1 Ionisierungsschemata von Indium

Die Ionisierungsenergie von Indium beträgt etwa 5,79 eV [82]. Mit einem Laser der Wellenlänge 214 nm wäre diese Schwelle durch eine Einphotonen-Anregung überbrückbar. Technisch deutlich einfacher gestaltet sich aber eine zweistufige Ionisation über ein Zwischenniveau, mit Wellenlängen im Sichtbaren. Die verschiedenen einfachsten und gleichzeitig effizienten Möglichkeiten dazu ergeben sich aus dem Niveauschema von neutralem Indium, das in Abbildung 4.1 mit den hierfür relevanten Übergängen dargestellt ist.

Indium besitzt im Hinblick auf die Photoionisation eine außerordentlich günstige Lage der Energieniveaus, die sich durch eine Koinzidenz zweier Übergangswellenlängen auszeichnet. Die stärkste Linie im Anregungsspektrum entsteht durch den Übergang zwischen dem Grundzustand $5s^25p$ $^2P_{1/2}$ und dem Niveau $5s^26s$ $^2S_{1/2}$ bei 410,18 nm [83,84]. Ausgehend vom 6s-Niveau scheint es zunächst naheliegend, mit einem zweiten Laser unterhalb einer Wellenlänge von 448 nm

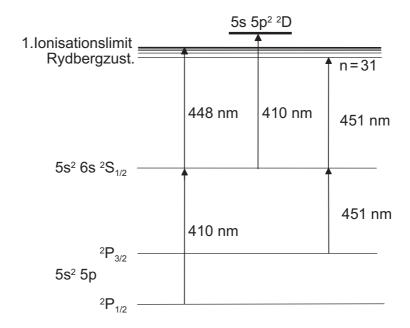


Abbildung 4.1: Für die Photoionisation relevantes Niveauschema von neutralem Indium. Eine Koinzidenz in den Übergangsfrequenzen ermöglicht ein denkbar einfaches Verfahren: Eine resonante Zweiphotonen Anregung bei 410 nm führt vom $^2P_{1/2}$ -Anteil des Grundzustands $5s^25p$ in autoionisierende Zustände $5s5p^2$ 2D oberhalb des Kontinuums. Diese Methode wurde im Experiment realisiert. Eine zweite Möglichkeit bestünde in einer Anregung vom 6s-Zustand aus in ein niedrigliegendes Rydberg-Niveau, von wo aus eine effektive Feldionisation durch das Fallenfeld zu erwarten ist.

direkt ins Kontinuum anzuregen. Experimentell zeigte sich jedoch, dass die Ionisierung mit nur einem Laser bei 410 nm so effizient ist, dass ein zweiter Laser keine weitere Erhöhung der Ionisierungseffizienz erkennen ließ [61]. Das liegt daran, dass vom 6s-Niveau aus eine zweite Anregung bei 410 nm über diskrete, autoionisierende Zustände $5s5p^2$ 2D oberhalb der Kontinuumsschwelle zur Ionisation führt [83, 85, 86]. Die Mischung der diskreten D-Niveaus oberhalb der Ionisationsschwelle mit den Zuständen des Kontinuums, vor allem mit nahe liegenden P-Zuständen, führt zu einer starken Verbreiterung der Niveaus und in der Folge zur Autoionisation bei einer Anregung über einen weiten Frequenzbereich. Anregungen in autoionisierende Zustände konnten bei Indium über weite Spektralbereiche nachgewiesen werden [87,88]. Im hier relevanten Bereich wurde eine effiziente Einphotonen-Anregung bei etwa 200 nm vom Grundzustand $5s^25p$ $^2P_{1/2}$ in die autoionisierenden D-Niveaus über einige nm beobachtet [89]. Im Gegensatz zum Dipol-erlaubten Einphotonen-Übergang ist der Zweiphotonen-Übergang bei

28 4. Photoionisation

410 nm vom Grundzustand in die D-Niveaus jedoch stark verboten: Zum Einen ist dabei $\Delta L=2$ und zum Anderen ist dieser Übergang aufgrund der Paritäten nur als Zwei-Elektronenprozess möglich. Der Einfluss der Auswahlregeln für die Anregung in einen autoionisierenden Zustand ist aber durch den Mischcharakter der Zustände mit dem Kontinuum stark reduziert und spielt daher offensichtlich nur eine untergeordnete Rolle [86]. Insgesamt ergibt sich die Möglichkeit, Indium mit nur einem Laser bei 410 nm durch eine resonante Zweiphotonen-Anregung zu ionisieren. Alternativ ist vom 6s-Niveau bei 410 nm auch eine Anregung direkt ins Kontinuum, ohne eine Anregung in die D-Zustände, möglich.

Bei der Anwendung in einer Ionenfalle existiert noch eine weitere Möglichkeit zur quasi-resonanten Photoionisation vom 6s-Zustand aus: Bei einer Wellenlänge von 451,31 nm könnte in den Rydbergzustand mit der größten Anregungswahrscheinlichkeit (n=31 [90]) angeregt werden, der dann vom Fallenfeld ionisiert wird. Da Rydbergzustände sehr langlebig sind, und das äußere Elektron nur schwach gebunden ist, lässt sich für diese Feldionisation unabhängig von der konkreten Hauptquantenzahl n eine Wahrscheinlichkeit nahe 1 erwarten, was auch aus der experimentellen Umsetzung vergleichbarer Ionisationsschemata zu schließen ist [79–81].

Erwähnenswert in Bezug auf eine Photoionisation ist eine zweite Besonderheit des Niveauschemas von Indium, die nur sehr geringe Differenz der Wellenlängen zweier diskreter Übergänge. Der Zustand $5s^25p$ $^2P_{3/2}$ wird aus dem $^2P_{1/2}$ -Niveau thermisch besetzt. Bei einer Temperatur der Atome von 1000 K beispielsweise befinden sich bereits knapp 10 % der Atome im thermisch angeregten $^2P_{3/2}$ -Zustand. Ausgehend davon erhält man eine resonante Anregung in den 6s-Zustand bei einer Wellenlänge von 451,25 nm [91]. Damit liegen ca. 80 GHz zwischen den beiden Übergängen bei etwa 451 nm, was je nach Linienbreite des anregenden Lasers, verschiedenen Aufspaltungen (beispielsweise der Hyperfeinstruktur des unteren Übergangs) und der erforderlichen Effizienz eventuell eine weiter Möglichkeit der Photoionisation mit nur einer Laserfrequenz darstellen könnte.

Eine Kombination beider Methoden mit zwei Lasern bei 410 nm und 451 nm ist prinzipiell denkbar, um eine maximale Effizienz der Photoionisation zu erzielen. Zumal damit ein relevanter Verlustprozess der Ionisation mit nur einem Laser bei 410 nm, das optische Pumpen der Grundzustands-Besetzung in den bei dieser Anregung dunklen $^2P_{3/2}$ -Zustand, aufgehoben wird. Da die Übergangswahrscheinlichkeit in einen Rydbergzustand mit der Hauptquantenzahl n^{-3} skaliert [91, 92], verliert der zweite Ionisierungskanal, ausgehend von einem stark besetzten 6s-Niveau, mit einer Laserwellenlänge unterhalb von 451 nm jedoch schnell an Bedeutung [61].

4.2 Experimente

Zur Realisierung der Zweiphotonen-Ionisation wurde ein gitterstabilisierter Diodenlaser bei 410 nm aufgebaut. Prinzip und konkreter Aufbau folgen dabei dem in Kapitel 5.2 ausführlich beschrieben System, Details zur Realisierung und Charakteristik im Blauen finden sich in [61]. Für die Photoionisation steht damit ein Einzelmoden-Laser mit etwa 3 mW Leistung bei 410 nm zur Verfügung, dessen Frequenz zur Spektroskopie über eine piezogesteuerte Gitterdrehung über etwa 3 GHz modensprungfrei durchgestimmt werden kann. Insgesamt lässt sich über den Gitterwinkel die Wellenlänge im Bereich von etwa 2 nm variieren. Eine Entspiegelung der Laserdiode könnte diesen Durchstimmbereich auch im Blauen signifikant vergrößern [93].

4.2.1 Spektroskopie des $5p \rightarrow 6s$ Übergangs

Für Anfangs- und Endzustand des 5p $^2P_{1/2} \rightarrow 6s$ $^2S_{1/2}$ Übergangs gilt jeweils J=1/2 und I=9/2; damit sind 4 Linien zwischen den jeweiligen Hyperfeinniveaus F=4 und F=5 möglich. Zur genauen Bestimmung der Frequenz dieser Hyperfeinlinien wurde zunächst optogalvanische Spektroskopie [94] an einer Indium Hohlkathodenlampe durchgeführt. Die Änderung des Ionisierungsstroms bei einer Anregung der gasförmigen Indium-Atome in der Hohlkathodenlampe wird dabei mit intensitätsmoduliertem Laserlicht und Lock-in-Nachweis gemessen [61]. In Tabelle 4.1 sind die gemessenen Wellenzahlen der 4 Hyperfeinlinien und deren Unsicherheit angegeben.

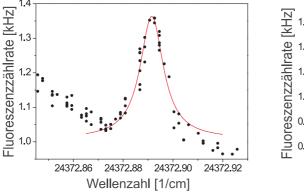
Hyperfeinkomponente	Wellenzahl
$F \to F'$	[1/cm]
$4 \rightarrow 4$	24373,001(2)
$4 \rightarrow 5$	24373, 287(2)
$5 \rightarrow 4$	24372, 907(2)
$5 \rightarrow 5$	24372,626(2)

Tabelle 4.1: Gemessene Wellenzahlen der Hyperfeinkomponenten des $5p^2P_{1/2} \rightarrow 6s^2S_{1/2}$ Übergangs neutralen Indiums, bestimmt in optogalvanischer Spektroskopie in einer Hohlkathodenlampe.

Aus den gemessenen 4 Hyperfeinlinien ergeben sich die Hyperfeinaufspaltungen zu 11,3(1) GHz für das Niveau 5p $^2P_{1/2}$, und 8,5(1) GHz für das Niveau 6s $^2S_{1/2}$, in Übereinstimmung mit den Literaturwerten [84].

30 4. Photoionisation

In einem zweiten Schritt konnte die Fluoreszenz des $5p \to 6s$ Übergangs am Atomstrahl des Ofens in der Falle spektroskopiert werden. Dazu wurde die im üblichen experimentellen Aufbau auf 231 nm optimierte Detektion an die veränderte blaue Wellenlänge angepasst. Neben dem Tausch zu einem für 410 nm sensitiven Photomultiplier waren dazu lediglich eine zusätzliche fokussierende Linse und eine Blende außerhalb des Vakuumtanks notwendig. Im Experiment eröffnet sich durch diese Spektroskopie die Möglichkeit, die Funktion des Ofens einfach und unabhängig von der Ionisierung und der Speicherung in der Falle zu testen. Für die im Rahmen dieser Arbeit vorgenommenen Veränderungen des Fallenaufbaus und der Ionisationsmethode war dies ein deutlicher Gewinn, da damit ein wichtiger kritischer Parameter der Ionenfalle einer unabhängigen Kontrolle zugänglich war. In Abbildung 4.2 sind beispielhaft die Spektren zweier Hyperfeinlinien dargestellt, die durch eine Anregung am Atomstrahl gewonnen wurden.



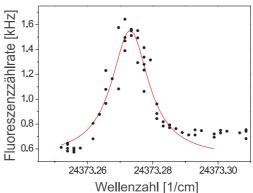


Abbildung 4.2: Spektren der Hyperfeinlinien $F = 5 \rightarrow F' = 4$ und $F = 4 \rightarrow F' = 5$ des $5p \rightarrow 6s$ Übergangs neutralen Indiums. Das Anregungsspektrum der vom Ofen emittierten Atome in der Fallenregion kann über eine modifizierte Detektion im Blauen nachgewiesen werden.

Zum Nachweis des Signals muss der Fluss der Indium-Atome im Vergleich zum Ladeprozess erhöht werden und so der Ofen mit relativ hohen Strömen von 2,2 bis 2,3 A betrieben werden. Die gemessenen Linien sind gegenüber der natürlichen Linienbreite $\Gamma/2\pi=25$ MHz [95] auf rund 300 MHz verbreitert. Mit der eingestrahlten Laserleistung von ca. 10 W/cm² und einer Sättigungsleistung des Übergangs von etwa 0,02 W/cm² [96] könnte diese Breite durch Sättigung erklärt werden. Zusätzlich geht eine Dopplerverbreiterung ein, abhängig von der Ge-

schwindigkeitsverteilung und Kollimation des durch die Geometrie nur bedingt kollimierten Atomstrahls. Eine Rotverschiebung von der Größenordnung der Linienbreiten der 4 spektroskopierten Hyperfeinlinien wird hervorgerufen durch den Dopplereffekt. Die breite Streuung der Rotverschiebungen aufgrund von nicht exakt reproduzierten Ofentemperaturen und die Ungenauigkeit in der Kenntnis des Winkels zwischen Ofen und Laserstrahl macht eine Bestimmung der Temperatur der Atome aus diesem Effekt jedoch unmöglich. Eine Abschätzung der Temperatur des Ofens ist aber durch die niedrige Schmelztemperatur von Indium von 156° C möglich. Da der Ofen nicht waagerecht angebracht ist, führt eine vollständige Verflüssigung des Indiumdrahts zu einem Auslaufen des Indiums aus dem Tantalröhrchen, was im Experiment durch einen niedrigen Ofenstrom vermieden wird. Demnach sollte die mittlere Temperatur des Ofens nicht deutlich oberhalb von 200° C liegen. Bei dem Winkel zwischen Ofen und Laserstrahl von rund 55° ergäbe eine Temperatur von 200° C eine Dopplerverschiebung von etwa 200 MHz.

Anhand von Doppler-freier Spektroskopie der Hyperfeinlinien des $5p \rightarrow 6s$ Übergangs an einem Indium-Atomstrahl wurde vor wenigen Jahren erstmals demonstriert, dass gitterstabilisierte Diodenlaser auch für hochauflösende Spektroskopie im blauen Spektralbereich angewendet werden können [96].

4.2.2 Zweiphotonen-Ionisation

Nachweis und Untersuchung der Zweiphotonen-Ionisation bei 410 nm erfolgt über die Fluoreszenz des Kühlübergangs der in der Radiofrequenz-Falle gespeicherten Ionen im üblichen UV-Detektionsaufbau. Die Höhe des Maximums des Kühlübergangs-Spektrums der puffergasgekühlten Ionenwolke abzüglich dem Steulicht wird dabei bei konstanter Ofentemperatur und konstanter Kühllaserleistung als Ionisationssignal ausgewertet. Als Puffergas dient in die Falle eingeströmtes Helium, das einen Druck von 10^{-5} bis 10^{-4} mbar erzeugt. Abbildung 4.3 zeigt schematisch den experimentellen Aufbau.

Der Strahl des Ionisierungslasers ist in den Fallenring auf eine Größe von etwa $50 \times 70~\mu\mathrm{m}^2$ fokussiert. Der Ofen wurde in den folgenden Messungen bei einem sehr niedrigen Strom von 1,8 A (verglichen mit 2 bis 2,2 A bei der Elektronenstoßionisation) betrieben; eine Aufwärmphase von 30 s ging jeder Messung voraus.

Zur Untersuchung der Frequenzabhängigkeit der Photoionisation wird das Ionisationssignal (siehe oben) nach einer festen Bestrahlungszeit des Ionisierungslasers bei unterschiedlichen Frequenzen aufgetragen. Dadurch tastet man die Frequenzabhängigkeit der Ionisierungswahrscheinlichkeit schrittweise ab und es ent-

32 4. Photoionisation

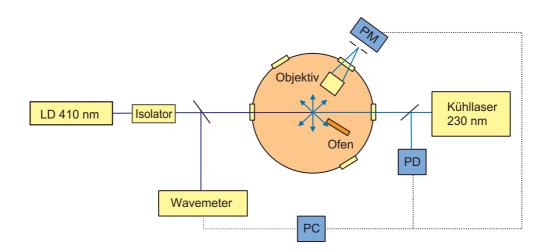


Abbildung 4.3: Aufbau zur Untersuchung der Photoionisation.

steht, analog zum indirekten Nachweis des Referenzübergangs durch das 'electronshelving', erst in der Zusammensetzung das Photoionisations-Spektrum.

Die Abstimmung des Ionisierungslasers auf die Mitte einer beliebigen der 4 Hyperfeinlinien des $5s \to 6s$ Übergangs führt zu einer gleichermaßen hohen Ionisierungseffizienz. Die wesentliche Frequenzabhängigkeit der Ionisierung ist demnach durch den unteren Übergang, zwischen den diskreten Zuständen 5p und 6s gegeben. Das entspricht der Erwartung bei einer Anregung in energetisch breite, autoionisierende Niveaus, die Mischzustände zwischen Kontinuum und diskreten Niveaus oberhalb der Ionisierungsschwelle darstellen. In die Linienform der Ionisation geht jedoch das komplexere Anregungssschema ein. Abbildung 4.4 zeigt die gemessene Frequenzabhängigkeit der Photoionisation beim Durchstimmen des Ionisierungslasers über die (höchstfrequente) $F = 4 \to F' = 5$ Hyperfeinkomponente des $5p^2P_{1/2} \to 6s^2S_{1/2}$ Übergangs; die Laserleistung betrug dabei 1, 6 mW.

Die erkennbare Asymmetrie der Linienform ist zunächst charakteristisch für eine Anregung in einen autoionisierenden Zustand [92]. Die Anwesenheit eines diskreten Zustands im Kontinuum führt dabei zu einer Interferenz zweier möglicher Anregungswege in das Kontinuum: Der direkten, nichtresonanten Anregung einerseits und der quasi-resonanten Anregung über den autoionisierenden Zustand andererseits. Das führt zu einer asymmetrische Ionisationlinie, einem sogenannten Fanoprofil [97], mit einem Absorptionsminimum auf der niederfrequenten Seite der Resonanz.

Das hier spektroskopierte System ist jedoch komplizierter als das von Fano betrachtete, da einer Anregung in die autoionisierenden Zustände zuerst eine diskre-

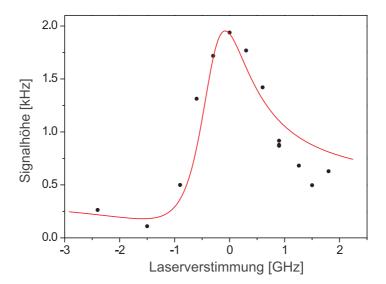


Abbildung 4.4: Frequenzabhängigkeit der Zweiphotonen-Ionisation bei 410 nm. Die Asymmetrie der Linienform lässt sich durch die bekannten Interferenzeffekte bei der Anregung in einen autoionisierenden Zustand erklären. Den Messpunkten wurde daher eine Fanolinie einbeschrieben.

te Anregung in das 6s-Niveau bei identischer Frequenz vorausgeht. Auch ohne die Anwesenheit autoionisierender Zustände kann hierbei die Interferenz zwischen der resonanten Zweiphotonen-Anregung über die Besetzung des 6s-Zwischenniveaus und der nichtresonanten, direkten Zweiphotonen-Anregung ins Kontinuum zu einem Fanoprofil führen [98]. Da sich experimentell keine Erhöhung der Ionisierungseffizienz durch das Einstrahlen eines zweiten Laser bei 448 nm (und damit leicht oberhalb der Ionisierungsschwelle vom 6s-Niveau aus) zeigt, scheint die Ionisation aber durch den autoionisierenden Prozess dominiert zu sein. Daher sollte die Asymmetrie der Linienform auch im Wesentlichen auf den oberen Übergang in den autoionisierenden Zustand zurückzuführen sein [92].

Die nahe liegende Erklärung der Asymmetrie durch eine nicht aufgelöste zweite Linie oberhalb der Mittenfrequenz des Spektrums in Abbildung 4.4 kann weitestgehend ausgeschlossen werden. Da der Laser über die Hyperfeinkomponente des $5p\ ^2P_{1/2} \rightarrow 6s\ ^2S_{1/2}$ Übergangs mit der höchsten Frequenz abgestimmt wurde, kann keine weitere der Hyperfeinkomponenten des Übergangs angeregt worden sein. Die gegenüber $^{115}\text{In}^+$ um 258 MHz zu höheren Frequenzen verschobene Hyperfeinkomponente des zweiten stabilen Indium-Isotops $^{113}\text{In}^+$ [84] käme allerdings dafür in Frage. Das für den Ofen verwendete natürliche Isotopengemisch besteht jedoch nur zu etwa 5 % aus ^{113}In . Die Amplitude der Anregung von $^{113}\text{In}^+$

sollte unterhalb einer starken Sättigung des Zweiphotonen-Übergangs im Verhältnis damit nur sehr klein sein, da kein Prozess bekannt ist, der zu einer starken Bevorzugung von ¹¹³In⁺ beim Laden der Falle führt. Andere Linien im Spektrum von Indium sind bei der fraglichen Frequenz ebenfalls nicht zu erwarten.

Die Asymmetrie des Photoionisations-Spektrums scheint demnach qualitativ den Einfluss des autoionisierenden Übergangs auf die Linienform zu demonstrieren. Die den Datenpunkten einbeschriebene Fanolinie kann alle wesentlichen Charakteristika der gemessenen Linienform wiedergeben.

4.2.3 Effizienz der Methode

Einen Vergleich der Effizienzen der Zweiphotonen-Ionisation bei 410 nm und der Elektronenstoßionisation zeigt Abbildung 4.5. Hier ist das Ionisationssignal abhängig von der Bestrahlungs- bzw. Ionisierungszeit aufgetragen. Für die Elektronenstoßionisation wurden dabei die optimierten Parameter [63] für die angelegte Wehneltspannung und den Strom durch den Glühdraht verwendet.

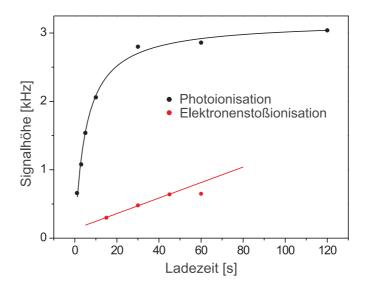


Abbildung 4.5: Vergleich von Photoionisation zu Elektronenstoßionisation. Aus dem Anstieg der Signalhöhe der Kühlübergangs-Fluoreszenz einer gespeicherten Ionenwolke in Abhängigkeit von der Ladezeit kann die Ionisierungseffizienz beider Verfahren bestimmt werden. Aus der jeweils linearen Anfangssteigung ergibt sich für die Photoionisation eine etwa zwei Größenordnungen höhere Effizienz als für die Elektronenstoßionisation

Die Kurve für die Photoionisation zeigt schon nach etwa 20 s den Übergang in

eine Sättigung bei einer Signalhöhe von 3 kHz. Die Falle ist dann bereits mit Ionen gefüllt und die Erzeugung weiterer Ionen kann so nicht zu einer weiteren Fluoreszenzerhöhung führen. Der lineare Anfangsanstieg beider Ionisationskurven ist ein Maß für die jeweilige Effizienz der beiden Methoden.

Zur Auswertung wurde der Photoionisationskurve ein zeitlicher Sättigungsverlauf folgender Form angepasst:

$$f(t) = \frac{s}{1 + t_0/t} \tag{4.1}$$

Dabei gibt t_0 die Sättigungszeit und s die maximale Floureszenzzählrate an. Für Zeiten $t \ll t_0$ ist f(t) linear mit der Steigung $c_{PI} = s/t_0$, die sich aus der Anpassung zu $c_{PI} = 0,75\pm0,12$ kHz/s ergibt. Den Datenpunkte zur Elektronenstoßionisation wurde eine Gerade einbeschrieben, deren Steigung $c_{ES} = 7(1) \cdot 10^{-3}$ kHz/s ist. Der Vergleich beider Steigungen c_{PI}/c_{ES} ergibt eine Erhöhung der Ionisierungseffizienz um mehr als zwei Größenordnungen durch die angewendete Methode der Photoionisation.

Eine weitere Steigerung der Effizienz der Photoionisation durch einen zusätzlichen zweiten gitterstabilisierten Diodenlaser konnte bei Wellenlängen von 447,5 bis 449 nm nicht eindeutig nachgewiesen werden [61]. Die stärkste Rydbergresonanz bei 451,3 nm [91] ließ sich mit dem Diodenlaser nicht erreichen, wodurch der zweite resonante Ionisierungskanal nicht genutzt werden konnte. Die zusätzliche nichtresonante Ionisation vom 6s-Zustand aus mit dem zweiten Laser direkt ins Kontinuum blieb offensichtlich ebenfalls vernachlässigbar gegenüber der effektiven Methode mit zwei Photonen bei 410 nm.

4.2.4 Ergebnis

Mit der Implementierung einer effizienten Photoionisation mit nur einem Diodenlaser konnten wesentliche Verbesserungen hinsichtlich der experimentellen Kontrolle der gespeicherter Ionen erreicht werden. Zum Einen wird die durch die Elektronenstoßionisation verursachte elektrostatische Aufladung von Isolatoren in Fallennähe nun vermieden. Zum Anderen kann der Indium-Ofen jetzt aufgrund der um zwei Größenordnungen erhöhten Ionisierungseffizienz bei deutlich reduziertem Strom und so bei Temperatur weit unterhalb eines sichtbaren Glühens betrieben werden, was die störende Bedampfung der Fallenelektroden auf ein Minimum reduziert.

Zusätzlich eröffnen sich sehr hilfreiche neue experimentelle Möglichkeiten. Dazu zählt zum Einen der unabhängige Funktionstest des Ofens durch die Spek-

36 4. Photoionisation

troskopie des Atomstrahls im Blauen. Zum Anderen ist jetzt eine Detektion der Kühlübergangs-Fluoreszenz schon während des Ladens der Falle möglich, was zuvor durch das starke Streulicht des Glühdrahts der Elektronenkanone unmöglich war. Anhand des Fluoreszenzanstiegs kann so der Ladeprozess unmittelbar optimiert werden, was eine direkte Speicherung des einzelnen Ions, ohne den zeitaufwändigen Übergang von einer Ionenwolke zum Einzelion durch Laserheizung [62,99], ermöglichen sollte.

Kapitel 5

Aufbau eines neuen Kühllasersystems

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein neues Kühllasersystem aufgebaut [100], das den Anforderungen eines kontinuierlich betriebenen Indium-Frequenzstandards entspricht. Darüberhinaus ermöglichen die Eigenschaften des Lasersystems vielfältige Anwendungen im Bereich der hochauflösenden Spektroskopie.

Die Grundanforderungen an das Kühllasersystem sind durch den zu treibenden ${}^1S_0 \rightarrow {}^3P_1$ Übergang von In⁺ festgelegt: Eine Leistung von mindestens 50 μW wird bei 230,6 nm benötigt; zur Detektion gespeicherter Ionenwolken muss die Laserfrequenz um die Resonanz als Zentrum einige GHz durchstimmbar sein, zur Spektroskopie einzelner Ionen fein durchstimmbar um einige zehn MHz. Für eine effiziente Seitenbandkühlung sollte die Linienbreite des Lasers deutlich kleiner sein als die natürliche Linienbreite des angeregten Übergangs von 360 kHz. Im Hinblick auf die angestrebte Genauigkeit des Indium-Frequenznormals von 10⁻¹⁸ sind Mittelungszeiten von Tagen bei der Abfrage des Referenzübergangs notwendig. Der zum 'electron-shelving' benutzte Kühllaser muss demnach kontinuierlich betrieben werden können. Aus einem Vergleich verschiedener hochstabiler Frequenznormale ergibt sich unter anderem die Möglichkeit, fundamentale physikalische Prinzipien zu überprüfen (siehe Kapitel 2.4). Um verschiedene Realisierungen von Frequenznormalen vergleichen zu können, ist ein transportabler Frequenzstandard von großem Vorteil. Daher wurde das Kühllasersystem möglichst transportierbar entworfen.

Das alte Kühllasersystem [63] bestand aus einem Stilben-3 Farbstofflaser bei 461 nm, der im UV von einem Argon-Ionen-Laser gepumpt wurde, mit nachfolgender externer Frequenzverdopplung. Dieses System ist weder transportabel, noch

lässt sich ein Farbstofflaser dauerhaft betreiben. Außerdem ist die Zuverlässigkeit von Argon-Pumpröhren im UV äußerst eingeschränkt: Verunreinigungen im Quarzglas der Brewster-Fenster führen beim Betrieb mit hohen UV-Leistungen zu Farbzentren, die eine zum Pumpen notwendige TEM_{00} -Mode unmöglich machen. Ein Röhrentausch mit nachfolgender Basisjustage des Farblasersystems war deshalb jeweils nach etwa 1000 Betriebsstunden notwenig.

Zur Erfüllung aller oben genannten Anforderungen bietet sich ein diodenbasiertes Lasersystem an. Diodenlaser zeichnen sich durch eine hohe Zuverlässigkeit, Durchstimmbarkeit und Robustheit aus, die sie bei kleiner Größe, niedrigem Preis und einfacher Handhabung bieten. Zur Zeit decken Diodenlaser das Spektrum von rot bis infrarot fast kontinuierlich ab, außerdem lassen sich ausgesuchte Wellenlängen im Ferninfraroten und im Blauen erzeugen. Die hohe intrinsische Frequenzinstabilität von Diodenlasern lässt sich in einem 'extended-cavity' Aufbau kompensieren, bei dem die Rückkopplung von einem optischen Gitter die Linienbreite des Ausgangsspektrums typischerweise unter 1 MHz reduzieren kann [101]. Ausgehend davon kann dann die Linienbreite des Diodenlasers durch Anbindung an einen externen Referenzresonator hoher Güte weiter reduziert werden. Die nur moderate Ausgangsleistung solcher Systeme kann seit dem Aufkommen von effizienten Trapezverstärkern ('tapered amplifier') in einem immer größer werdenden Wellenlängenbereich stark erhöht werden, indem man Diodenlaser mit nachfolgendem Verstärker einsetzt. Ein solches Master-Oszillator-Power-Amplifier (MOPA)-System bietet vielfältige Anwendungsmöglichkeiten im Bereich der Spektroskopie, Atomphysik oder Quantenoptik [102–104]. Die hohe Ausgangsleistung erlaubt es, die Vorteile von Diodenlasern durch Frequenzverdopplung ins Grüne, Blaue und sogar in Bereiche des ultravioletten Spektrums zu transferieren. Dabei konnten durch den Einsatz von periodisch gepolten Kristallen [105–109] in den letzten Jahren erheblich gesteigerte Effizienzen erzielt werden.

5.1 Übersicht des Aufbaus

Der Aufbau des neuen Kühllasersystems ist schematisch in Abbildung 5.1 dargestellt. Als Masterlaser dient ein gitterstabilisierter Diodenlaser mit einer Ausgangsleistung von 30 mW bei einer Wellenlänge von 922 nm. 20 % dieses Lichts werden zur aktiven Frequenzstabilisierung auf die Linie eines externen Referenzresonators benutzt. Der Hauptteil des Diodenlaserlichtes wird in einen Trapezverstärker eingekoppelt, was zu einer Leistung von 0,5 W bei gleicher Wellenlänge führt. Das infrarote Licht wird danach in einem externen Überhöhungsresonator

mit Hilfe eines periodisch gepolten Kaliumtitanyl-Phosphat (KTiOPO₄, KTP) Kristalls frequenzverdoppelt. Damit konnte eine Leistung von mehr als 200 mW bei 461 nm erzielt werden. Eine zweite externe Frequenzverdopplung erzeugt schließlich mit Hilfe eines Beta-Bariumoxid (BaB₂O₄, BBO) Kristalls 1 mW ultraviolettes Licht bei 231 nm.

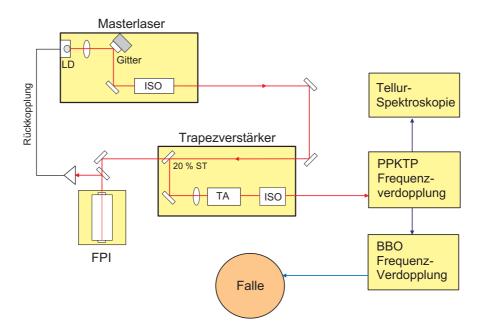


Abbildung 5.1: Schema des Laseraufbaus.

Alle Komponenten des Aufbaus sind modular auf verschiedenen Breadboards aufgebaut und ermöglichen so einen problemlosen Transport des Systems. Insgesamt ist der Aufbau sehr kompakt und benötigt nur ca. zwei Quadratmeter Labortischfläche. Die ausschließliche Verwendung von Laserdioden und Festkörpersystemen erlaubt einen kontinuierlichen Betrieb dieses Lasersystems, praktisch lediglich limitiert durch die Lebensdauer der Dioden.

5.2 Gitterstabilisierter Diodenlaser

Freilaufende Laserdioden besitzen, verglichen mit anderen Lasertypen, nur schlechte spektrale Eigenschaften. Die Gründe dafür liegen zum Einen in der Kürze und der kleinen Finesse des Diodenlaserresonators und zum Anderen in der starken modeninduzierten Kopplung zwischen Verstärkung und Phase im Laserumlauf [110]. So liegt die Linienbreite des emittierten Lichts im Bereich

von 100 MHz und die Durchstimmbarkeit über eine Änderung der Temperatur oder des Injektionsstroms ist durch Modensprünge stark eingeschränkt [111]. Somit sind die Vorraussetzungen für hochauflösende spektroskopische Anwendungen nicht erfüllt.

Durch verschiedene Arten der aktiven und passiven Stabilisierung lassen sich jedoch die spektralen Eigenschaften von Diodenlasern wesentlich verbessern. Dazu wurden prinzipiell zwei verschiedene Techniken realisiert: Eine rein elektronische Frequenzkontrolle über den Diodenlaserstrom durch eine Rückkopplung gemäß einem Fehlersignal, das durch die Einkopplung in einen externen Resonator hoher Güte erzeugt wird [112]. Durch die außergewöhnlich guten Hochfrequenzmodulations-Eigenschaften des Diodenlaserstroms ist so eine Reduzierung der Linienbreite bis in den Bereich von 10 kHz möglich [113], erforderlich ist dazu jedoch eine aufwändige Rückkopplungselektronik hoher Bandbreite. Außerdem verbessert sich bei diesem Verfahren die Durchstimmbarkeit des Diodenlasers nicht.

Ein zweiter Weg benutzt die optische Rückkopplung eines frequenzselektiven Elements in die Diode zurück [114]. Realisiert wurde die Anbindung an einen Resonator hoher Güte [115] oder an ein Beugungsgitter [101]. Beides kann die Linienbreite substanziell reduzieren und die Durchstimmeigenschaften wesentlich verbessern. Letztere Methode ist dabei die deutlich einfachere technische Realisierung. Ist die Frontfacette der Diode zusätzlich entspiegelt, verlängert sich der maßgebliche Resonator auf den Abstand zwischen Endfacette und Gitter und die optische Rückkopplung des Gitters kann die Frequenzeigenschaften dominieren. Neben einer Linienbreitenreduktion um zwei Größenordnungen, unter 1 MHz, wird damit ein kontinuierliches Durchstimmen der Laserfrequenz möglich [101]. Durch die Einfachheit dieser Methode und ihrer Leistungsfähigkeit hat sie sich als Standard-Verfahren des 'extended-cavity'-Diodenlasers (ECDL) zur Verbesserung der spektralen Eigenschaften von Diodenlasern etabliert [111]. Für den Kühllaseraufbau wurden nun beide Arten der Rückkopplung kombiniert, wie im Detail nachfolgend ausgeführt wird: Ein optisch gitterstabilisierter Diodenlaser wird elektronisch über die Kopplung an einen Fabry-Perot-Resonator hoher Güte weiter stabilisiert.

Ausgangspunkt des gitterstabilisierten Diodenlasers ist eine Einzelmoden-Laserdiode¹, die freilaufend bei 922 nm eine nominelle Leistung von 100 mW besitzt. Die minus erste Beugungsordnung eines optischen Gitters (2400 l/mm) wird in die Diode rückgekoppelt (Littrow-Anordnung). Dazu ist die Frontfacette der Diode entspiegelt. Theoretische und experimentelle Untersuchungen lassen eine qua-

¹Typ: LD 935 der Firma Toptica, www.toptica.com

dratische Verringerung der Linienbreite mit zunehmender Länge des Resonators erwarten [111, 116, 117], weshalb ein möglichst großer Abstand zwischen Gitter und Diode wünschenswert wäre. Andererseits nehmen akustische Störungen mit zunehmender Resonatorlänge L zu. Außerdem wird der freie Spektralbereich des Resonators c/2nL und damit der mit Hilfe des Gitters modensprungfrei durchstimmbare Bereich mit zunehmender Länge kleiner. Mit zunehmendem Gitterabstand wird zudem die Justage des rückgekoppelten Strahls kritischer und damit die Anforderungen an die mechanische Stabilität des Aufbaus höher. Zur Untersuchung einer geeigneten Resonatorlänge lassen sich im verwendeten Aufbau drei verschiedene Gitterabstände, 2, 4 und 8 cm realisieren. Abbildung 5.2 gibt den schematischen Aufbau neben einer Photographie wieder.

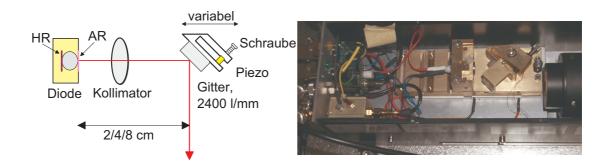


Abbildung 5.2: Aufbau zur Gitterstabilisierung des Diodenlasers.

Die Laserdiode sitzt in einem Gehäuse aus Bronze, an dessen Vorderseite ein dreidimensional justierbarer Kollimator angebracht ist. Ein Gitterhalter ist fest mit einer Schiene aus Bronze verschraubt, auf die in verschiedenen Abständen das Diodengehäuse eingeschraubt werden kann, um die unterschiedlichen Resonatorlängen zu erhalten. Das Gitter kann sowohl durch eine Feingewindeschraube grob, als auch über einen Piezo-Aktuator fein gedreht werden. Die Halterschiene ist gitterseits höhen- und seitenverstellbar gelagert, um die Justage des gebeugten Lichtes in die Diode zurück zu ermöglichen. Über Peltierelemente unter der stabilen Grundplatte und einem Temperatursensor auf dem Diodengehäuse wird die Temperatur elektronisch auf ± 1 mK genau stabilisiert.

Aufgrund der effizienten Entspiegelung der Frontfacette kann der Laser durch Drehen des Gitters von 880 bis 960 nm durchgestimmt werden. Über den gesamten freien Spektralbereich des gitterstabilisierten Diodenlasers (ca. 8 GHz bei etwa 2 cm Resonatorlänge) lässt sich die Frequenz kontinuierlich modensprungfrei durchstimmen. Offensichtlich ist das Regime der starken Rückkopplung erreicht,

bei dem die Frequenzeigenschaften des Lasers allein durch den äußeren Resonator und damit das Gitter bestimmt werden [117].

5.2.1 Frequenzstabilität

Zur Untersuchung der Frequenzfluktuationen und damit der Linienbreite des gitterstabilisierten Diodenlasers wurde die breite Resonanz (150 MHz) eines zusätzlichen Fabry-Perot-Interferometers (FPI) kleiner Finesse als Frequenzdiskriminator für eine Fourieranalyse benutzt. Die Laserfrequenz wird dazu auf die Flanke der Resonanz des FPIs abgestimmt und man analysiert das Transmissionssignal aus dem Resonator auf einer Photodiode mit Hilfe eines Spektrumanalysators. Eine bestimmte Fourierkomponente des Frequenzrauschens des Lasers führt zu einer Oszillation der Amplitude des Transmissionssignals bei gleicher Frequenz. Der Spektrumanalysator nimmt die Gesamtheit aller Fourierkomponenten auf, Intensitätsschwankungen des Diodenlasers und das Rauschen der Photodiode müssen abgezogen werden. Über die näherungsweise lineare Steigung der Flanke der Resonatormode kann dann von der Amplitudenfluktuation des Transmissionssignals auf die Frequenzfluktuation des Lasers zurückgerechnet werden. Für die Analyse der Frequenzfluktuationen müssen also zuerst die Intensitätsschwankungen bestimmt werden. Diese lassen sich einfach mit einer Photodiode geeigneter Bandbreite und einem Spektrumanalysator messen.

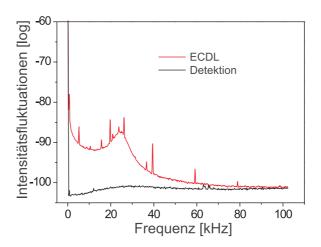


Abbildung 5.3: Intensitätsfluktuationen des gitterstabilisierten Diodenlasers (rot) gegenüber dem Rauschen der Detektion (schwarz).

Abbildung 5.3 zeigt die gemessenen Intensitätsschwankungen des gitterstabilisier-

ten Diodenlasers im Bereich bis 100 kHz und vergleicht sie mit der Messgrenze des Rauschens der Detektion, die durch thermisches Licht gleicher Intensität bei gleichem Messaufbau erzeugt wurde. Nur im Bereich von einigen 10 kHz zeigen sich deutliche Unterschiede. Die diskreten Peaks in diesem Bereich sind auch im Diodenstrom zu finden, was nahelegt, dass elektronisches Rauschen in der Stromstabilisierung die Ursache der Intensitätsfluktuationen ist. Ab 100 kHz nähern sich die Fluktuationen asymptotisch dem Limit an. Der Frequenzbereich von 1 MHz bis 30 MHz wurde gesondert analysiert und zeigt keine messbare Erhöhung gegenüber dem Detektionsrauschen. Mit den Messwerten für die Intensitätsschwankungen ist die Grundlage für die Frequenzanalyse gegeben. Die Fourieranalyse der Frequenzfluktuationen des gitterstabilisierten Diodenlasers bei den drei verschiedenen Resonatorlängen zeigt Abbildung 5.4.

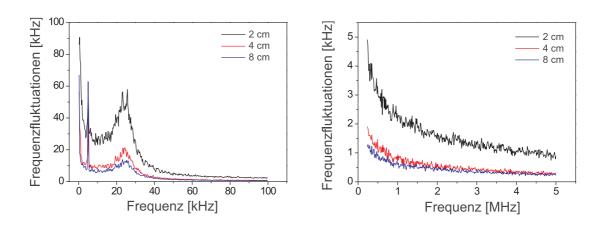


Abbildung 5.4: Frequenzfluktuationen des ECDL bei verschiedenen Resonatorlängen. Links der niederfrequente Anteil, rechts der Bereich hoher Frequenzen.

Das Frequenzrauschen lässt sich grob in drei Bereiche einteilen. Der erste Bereich liegt zwischen 0 und etwa 10 kHz. Bei sehr kleinen Frequenzen sind darin Modulationsindizes von bis zu 100 erkennbar; damit tragen diese Fluktuationen wesentlich zur Linienverbreiterung bei. Akustische Störungen und mechanische Vibrationen sind hierfür als Ursache zu nennen. Eine reine Reduzierung dieser niederfrequenten Frequenzfluktuationen ist durch die Verlängerung des Resonators erwartungsgemäß nicht erkennbar.

Ein zweiter Bereich starker Frequenzfluktuationen mit einem Modulationsindex der Größenordnung 1 hat ein Maximum bei etwa 25 kHz, der den dominierenden Anteil der elektronisch zu unterdrückenden Störungen darstellt. Eine aktive Linienbreitenreduzierung muss daher in diesem Frequenzbereich möglichst effektiv sein. Diese Fluktuationen haben vermutlich ihre Ursache in elektronischem

Rauschen der Stromansteuerung der Diode. Wie bereits bei der Diskussion der Intensitätsfluktuationen erwähnt, zeigen Messungen am Ausgangsstrom des Diodenstromreglers etwa 10 diskrete Störfrequenzen im Bereich von 10 kHz bis 40 kHz mit deutlichem Maximum der Amplituden um 25 kHz. In Abbildung 5.3 ist erkennbar, dass sich dieser Rauschanteil mit zunehmender Resonatorlänge verringert.

Oberhalb von 50 kHz ist das Frequenzrauschen unterhalb eines Modulationsindexes von 0,1 und verläuft dann nur schwach frequenzabhängig. Läge eine komplett frequenzunabhängige Verteilung vor (weißes Rauschen) befände man sich am Schawlow-Townes-Limit. Es stellt die durch die Phasenunsicherheit der Spontanemission prinzipiell vorhandene Linienbreite eines freilaufenden Lasers dar und spielt bei freilaufenden Laserdioden aufgrund der kleinen Umlaufdauer im Resonator oft eine dominierende Rolle [118]. Das erst asymptotische Annähern der Frequenzfluktuationen an einen konstanten Wert bei hoher Frequenz zeigt, dass durch die Gitterstabilisierung jedoch andere Fluktuationen dominieren. Ein Vergleich der drei Kurven bei verschiedenen Resonatorlängen zeigt in diesem oberen Frequenzbereich klar eine Abnahme des Frequenzrauschens mit zunehmender Resonatorlänge.

Durch eine diskrete Fouriertransformation des spektralen Rauschens ergibt sich die Linienbreite des Lasers. Abbildung 5.5 zeigt das Ergebnis der Fouriertransformation der Fluktuationen bei einer Resonatorlänge von 2 cm.

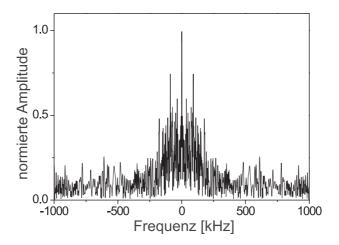


Abbildung 5.5: Diskrete Fouriertransformation des Frequenzrauschen des ECDL. Durch die optische Stabilisierung wird die Linienbreite unter 500 kHz reduziert.

Die Linienbreite des gitterstabilisierten Diodenlasers liegt unter 500 kHz. Für die

beiden längeren Resonatoren ergeben sich leicht reduzierte Linienbreiten, die um etwa 20 % bei 4 cm und etwa 30-40 % bei 8 cm unter der in Abbildung 5.5 dargestellten Breite liegen. Ein quadratischer Zusammenhang der Linienbreitenreduktion von der Resonatorlänge, wie in [116], konnte folglich nicht gefunden werden. Der Grund dafür ist, dass bei der Änderung des Resonators über diesen großen Längenbereich andere Einflüsse auf die Linienbreitenreduktion dominieren. Das für die Linienbreite wesentliche Rauschen bei kleinen Frequenzen verringert sich in einem längeren Resonatoraufbau nicht substanziell. Durch den stark verlängerten Gitterabstand ändert sich bei gleichem Kollimator außerdem die Modenanpassung und damit die in die Diode rückgekoppelte Leistung. Dadurch können die Linienbreiten von Resonatoren stark unterschiedlicher Länge nur schwer verglichen werden. Die Untersuchungen in [116] bezogen sich im Gegensatz dazu auf kleine Resonatorlängen im Bereich von mm.

Insgesamt überwiegen bei größeren Resonatorlängen die Nachteile der geringeren modensprungfreien Durchstimmbarkeit und der erhöhten Anforderung an die mechanische Stabilität den Vorteil einer nur leicht reduzierten Linienbreite. Für den Betrieb des Lasers wurde daher der Gitterabstand von 2 cm gewählt.

5.3 Aktive Frequenzstabilisierung

Zur weiteren Reduzierung der Laser-Linienbreite weit unter die natürliche Linienbreite des Kühlübergangs von 360 kHz ist eine aktive Frequenzstabilisierung des Masterlasers notwendig. Die Laserfrequenz wird dazu auf der Resonanz eines Fabry-Perot-Interferometers (FPI) hoher Finessse gehalten. In Abbildung 5.6 ist der Aufbau zur Frequenzstabilisierung dargestellt.

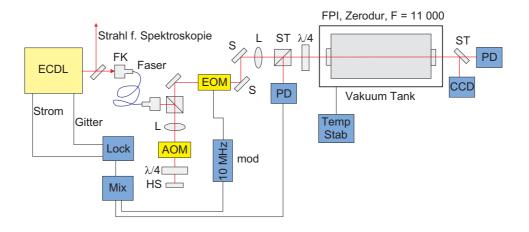


Abbildung 5.6: Aufbau zur Frequenzstabilisierung.

Um eine reine TEM₀₀-Mode für die Stabilisierung verwenden zu können, wird das Licht des Masterlasers zuerst in einer Einzelmoden-Faser modengefiltert. Zur feinen Durchstimmung der Laserfrequenz für die Spektroskopie am Einzelion wird der Strahl anschließend in doppeltem Durchgang durch einen akusto-optischen Modulator (AOM) geschickt. Danach erfolgt die Ankopplung der Laserfrequenz an die Resonanz des Interferometers, die später genauer beschrieben wird.

5.3.1 Referenzersonator

Das FPI besteht aus zwei für 922 nm hochreflektierenden Spiegeln, deren Reflektivität die Finesse des Resonators und damit die Linienbreite der Resonanz bestimmt, auf die der Laser stabilisiert wird. Die Finesse des Resonators wurde gemessen, indem zuerst die Laserfrequenz auf die Resonanz des FPIs abgestimmt, und dann nach Ausschalten des Laserstrahls der Zerfall des Transmissionssignals aus dem Resonator aufgenommen wurde. Der Laserstrahl wurde mit Hilfe eines AOMs ausgeschaltet und zeitgleich die Transmission über eine Photodiode großer Frequenzbandbreite in ein Digitaloszilloskop eingelesen. Abbildung 5.7 zeigt den

gemessenen exponentiellen Zerfall, aus dem sich eine Linienbreite der Resonanz von etwa 100 kHz und damit eine Finesse des Resonators von 11 000 ergibt.

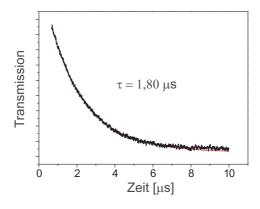


Abbildung 5.7: Transmissionssignal der Resonatormode. An die Daten wurde ein exponentieller Zerfall angepasst, aus der Zerfallszeit ergibt sich die Finesse des Resonators.

Um den Abstand der beiden Resonatorspiegel und damit die Referenzfrequenz möglichst stabil zu halten, sind die Spiegel auf einen 12 cm langen monolithischen Abstandshalter aus Zerodur optisch kontaktiert (Mit dieser Länge ergibt sich ein freier Spektralbereich von 1,2 GHz). Zerodur ist ein speziell für geringe Wärmeausdehnung entwickeltes Glas - der Wärmeausdehnungskoeffizient liegt bei 10^{-6} bis 10^{-7} 1/K. Um temperaturinduzierte Abstandsschwankungen zu vermeiden, wird der Resonator von der Umgebung isoliert, indem er in einem aktiv temperaturstabilisierten Vakuumtank bei einem Druck von 10^{-8} mbar gehalten wird. Abbildung 5.8 zeigt den gemessenen Temperaturverlauf des Vakuumtanks, der eine obere Grenze für die Temperaturschwankungen des Resonators im Inneren gibt.

Mit einer Schwankungsbreite der Temperatur von maximal 40 mK im Tagesverlauf liegt die Temperaturverschiebung der Resonanzfrequenz unterhalb von 4 MHz pro Tag.

Mechanische Vibrationen haben sich bei genauen Untersuchungen [32,33] als eine wesentliche Ursache für die Frequenzinstabilität eines Resonators erwiesen. Um diese zu unterdrücken, ruht der Glasblock auf zwei Viton-O-Ringen in einer U-förmigen Wiege aus Edelstahl, die wiederum auf Viton-Streifen im Vakuumtank sitzt. Ohne weitere Vibrationsisolation sitzt der Vakuumtank dann auf dem optischen Tisch. Akustische Schwingungen werden durch eine äußere Box

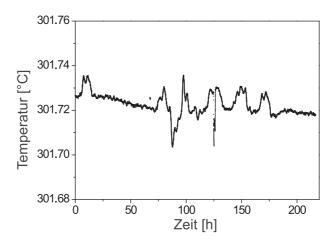
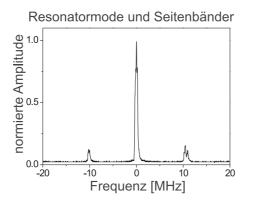


Abbildung 5.8: Temperaturverlauf des Vakuumtanks, in dem der Resonator sitzt. Die Temperaturschwankungen liegen selbst auf einer Zeitskala von Wochen nur innerhalb weniger 10 mK.

aus Styrodur-Platten unterdrückt, die zusätzlich mit weichem Schaumstoff belegt sind.

5.3.2 Stabilisierungsverfahren

Die Stabilisierung auf die Resonanzfrequenz erfolgt nach dem üblichen Verfahren nach Pound-Drever-Hall [119]. Dazu werden dem Masterlaserlicht mit Hilfe eines elektro-optischen Modulators (EOM) Seitenbänder bei einer Lokaloszillatorfrequenz von 10 MHz aufmoduliert. Das Signal in Reflektion des Resonators wird mit einer Photodiode großer Frequenzbandbreite aufgenommen. Da die Seitenbänder weit außerhalb der Bandbreite der Resonatormode von 100 kHz liegen, werden sie vom Resonator fast vollständig reflektiert, und nur der Träger wird eingekoppelt. Das Interferenzsignal in Reflexion des Resonators verschwindet aufgrund der beiden zum Träger äquidistanten Seitenbändern mit entgegengesetzter Phase, falls die Laserfrequenz mit der Resonanzfrequenz des FPIs exakt übereinstimmt. Falls nicht, bleibt ein Signal mit einer stark von der Frequenzdifferenz abhängigen Intensität bei der Modulationsfrequenz [120]. Zur klaren Detektion dieses Signals benutzt man das Homodyn-Verfahren: Auf einem Mischer wird das Photodiodensignal mit dem Lokaloszillatorsignal überlagert. Es ergibt sich um die Resonanzfrequenz des Resonators ein stark frequenzabhängiges, asymmetrisches Fehlersignal, das als Regelsignal dient. Abbildung 5.9 zeigt die Resonatormode mit den Seitenbändern und das erzeugte Pound-Drever-Hall Fehlersignal.



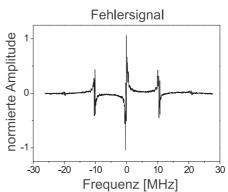


Abbildung 5.9: Resonatormode und Fehlersignal zur Frequenzstabilisierung nach der Pound-Drever-Hall-Methode.

Als langsames Stellelement zur Regelung der Frequenz des Masterlasers dient der Gitterwinkel, der über die Veränderung der Spannung am piezoelektrischen Aktuator mit einer Bandbreite von einigen 10 kHz angesteuert wird. Schnelles Stellelement ist der Diodenstrom, der mit einer Bandbreite von 1 MHz in einem zweiten Zweig der Stabilisierung verändert wird. Das frequenzabhängige Verstärkungsprofil (Bode-Diagramm) der Rückkopplungselektronik ist schematisch in Abbildung 5.10 dargestellt.

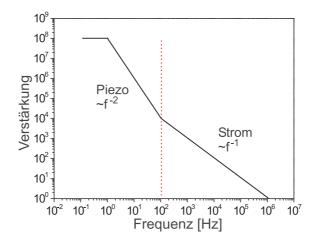


Abbildung 5.10: Bode-Diagramm der Rückkopplungselektronik zur aktiven Frequenzstabilisierung. Der schnelle Zweig auf den Diodenlaserstrom besitzt eine 1/f-Abhängigkeit, die langsame Rückkopplung auf den Piezoaktuator des Gitters fällt mit $1/f^2$ ab.

Zur Erzeugung der Seitenbänder kann alternativ auch der Diodenlaserstrom mit einer Frequenz von 10 MHz moduliert werden. Zur bestmöglichen Unterdrückung von störenden Amplitudenmodulationen ('residual amplitude modulations', RAM) eignet sich jedoch dafür ein EOM [32].

5.3.3 Resultat

Zur Analyse der Frequenzstabilität des aktiv stabilisierten Lasers geht man prinzipiell in gleicher Weise vor, wie in Kapitel 5.2.1 beschrieben ist. Als Frequenz-diskriminator fungiert jedoch nun der Stabilisierungsresonator selbst und das in Kapitel 5.3.2 vorgestellte Fehlersignal wird analysiert. In Abbildung 5.11 sind die Fourieranalysen der Frequenzfluktuationen des Lasers im freilaufenden und aktiv stabilisierten Zustand gegenübergestellt.

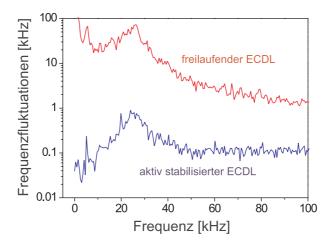


Abbildung 5.11: normierte Frequenzfluktuationen des gitterstabilisierten Lasers, mit und ohne aktiver Frequenzstabilisierung.

Das spektrale Rauschen wird durch die aktive Stabilisierung deutlich reduziert, abhängig von der Frequenz um bis zu drei Größenordnungen. Auch nach der aktiven Stabilisierung bildet das Rauschen bei 25 kHz neben dem bei kleinen Frequenzen den dominierenden Anteil der Frequenzfluktuationen. Die in Abbildung 5.12 dargestellte diskrete Fouriertransformation der spektralen Rauschdichte liefert die quantitative Auswirkung der Stabilisierung auf die Linienbreite des Lasers relativ zur Resonanzfrequenz des FPIs.

Die Linienbreite relativ zur Resonatorfrequenz liegt unterhalb von 100 Hz. Die Beiträge verschiedener parasitärer Effekte wie RAM, störender Interferenzen,

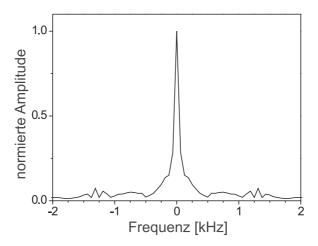


Abbildung 5.12: Diskrete Fouriertransformation des spektralen Rauschens des aktiv stabilisierten Masterlasers. Die Linenbreite von unter 100 Hz gibt die Qualität der Stabilisierung auf den Referenzresonator an.

usw. auf die Güte der Stabilisierung sind einer Abschätzung nach bei der erreichten Genauigkeit noch vernachlässigbar. Sie ist im Wesentlichen von der Bandbreite des Rückkopplungssystems begrenzt, was Raum für eine mögliche Verbesserung zulässt. In einigen Experimenten konnte gezeigt werden, dass mit einem gitterstabilisierter Diodenlaser eine Frequenzstabiltät relativ zu einem Referenzresonator im Bereich von einigen 10 Hz [121] und sogar auf dem Level von einigen Hertz erreichen werden kann [122].

Bei der erreichten Güte der Stabilisierung ist die absolute Linienbreite des Lasers im Wesentlichen durch die Abstandsschwankungen der beiden Resonatorspiegel bestimmt. Diese hängen von der Isolierung des Resonators gegenüber Störungen der Umgebung ab. Aus Erfahrungen mit unterschiedlichen Arten der Halterung von Resonatoren [32] lässt sich die absolute Frequenzstabilität als deutlich unterhalb von 10 kHz einschätzen. Ein effektiveres Abkoppeln des Resonators von äußeren Vibrationen, z.B. durch einen aktiv schwingungsdämpfenden Tisch, würde die absolute Linienbreite weiter verringern [33].

Mit den in den letzten Jahren verbesserten Stabilisierungsverfahren, die zu Laserlinienbreiten in einem Bereich von Dekahertz und darunter führen, werden Diodenlaser im Bereich der Spektroskopie höchster Auflösung anwendbar. Die mit einem Diodenlaser spektroskopisch verifizierte Linienbreite von 30 Hz [123] steht sogar am Limit der bisher überhaupt erreichten Lasersstabilisierung: Mit einem Farbstofflaser gelang Spektroskopie im Bereich unter 10 Hz [30], mit einem

Festkörperlaser einer Linienbreite im Bereich von einigen Hertz [33] könnten in der Zukunft ähnliche Werte erreicht werden.

5.4 Trapezverstärker

Die Leistungen von gitterstabilisierten Einzelmoden-Laserdioden im Infraroten liegen, wie es auch hier der Fall ist, im Bereich von einigen 10 mW und sind damit für eine effiziente Frequenzvervierfachung nicht ausreichend. Höhere Leistungen können nur durch Hochleistungs-Laserdioden erzeugt werden, die im Vergleich zu Einzelmoden-Laserdioden eine deutlich verbreiterte Emissionfläche besitzen, was allerdings zu einem verstärkten Anschwingen höherer Moden führt. Ein gängiges Verfahren, höhere optische Leistungen mit spektralem und räumlichem Einzelmodenbetrieb zu kombinieren, ist das 'injection-locking'. Dabei wird ein Masterlaser bei kleiner Leistung, aber hoher spektraler Reinheit betrieben, und eine zweite, leistungsstarke Diode im Anschluss an den Masterlaser gekoppelt [124]. Solche Systeme fanden selbst im Bereich der ultra-hochauflösenden Spektroskopie Einzug [71]. Der dabei erreichbare Leistungsgewinn ist jedoch nur begrenzt.

Eine größere und dennoch frequenztreue Leistungssteigerung ist seit einigen Jahren mit Hilfe eines anderen Verfahrens möglich. Man betreibt einen elektronisch gepumpten p-n-Übergang ohne Rückkopplung unterhalb der Schwelle, ab der selbständig Moden anspringen können - die Diode arbeitet dann nicht als Laser, sondern als reiner Verstärker für eine eingekoppelte Laserfrequenz. Als sehr erfolgreich haben sich dabei in den letzten Jahren Trapezverstärker ('tapered amplifier') erwiesen [125, 126], Einzelmoden-Laufwellenverstärker mit lateral angepasstem Verstärkungsprofil. Die index-geführte Verstärkungsregion weitet sich lateral von Eintritts- zu Austrittsseite trapezförmig von einer Breite von einigen Mikrometern zu einigen hundert Mikrometern. So kann das Eingangssignal zu hohen Leistungen verstärkt werden und gleichzeitig die Leistungsdichte konstant bleiben. Damit sich im Verstärkungsmedium keine höheren Moden ausbilden, sind Ein- und Austrittsfläche entspiegelt. Derzeit sind Trapezverstärker in einem Spektralbereich von 730 nm bis 1080 nm kommerziell erhältlich, die Dauer-Ausgangsleistungen bis in den Bereich von einigen Watt erzeugen [125, 127] und deren Ausgangsmodenprofil nahezu in den Bereich der Beugungsbegrenzung kommt [128]. Abbildung 5.13 zeigt den Aufbau der verwendeten (InGaAlAs/InGaAs)-Verstärkerdiode.

Für das Lasersystem wird ein Trapezverstärker mit einer zentralen Wellenlänge von 925 nm benutzt, dessen Verstärkungsprofil eine effiziente Nutzung im Be-

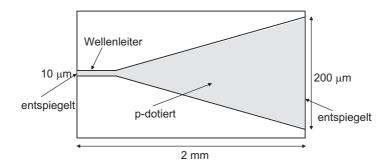


Abbildung 5.13: Schematischer Aufbau des Verstärkerchips.

reich von 900 bis 960 nm erlaubt². Dabei handelte es sich um eines der ersten Modelle dieses Bautyps und wesentliche Eigenschaften für die Verwendung in der Spektroskopie mussten zuerst charakterisiert werden.

Als Eingangsignal dient typischerweise 25 mW infrarotes Licht vom gitterstabilisierten Diodenlaser, das zur Vermeidung von Rückkopplungen zuerst durch einen optischen Isolator mit 40 db Abschwächung geschickt wird. Nach dem Durchgang durch eine $\lambda/2$ -Platte erfolgt dann die Einkopplung in den Verstärker über eine asphärische Linse.

5.4.1 Charakterisierung des Systems

Abbildung 5.14 zeigt die Ausgangsleistung des Verstärkers in Abhängigkeit vom Pumpstrom, mit und ohne Eingangssignal.

Für die nachfolgende Frequenzverdopplung spielt das Modenprofil des verstärkten Lichts eine bedeutende Rolle, da nur der TEM_{00} -Anteil in den Überhöhungsresonator eingekoppelt werden kann. Deshalb wurde versucht, das Modenprofil zu optimieren: Zum Einen wurde aus dem Eingangsstrahl mit Hilfe einer singlemode Faser der TEM_{00} -Anteil herausgefiltert. Zum Anderen wurde sein ellipisches Modenprofil durch anamorphe Prismen korrigiert. In beiden Fällen konnte jedoch keine signifikante Verbesserung des Ausgangsmodenprofils erzielt werden. Ursache dafür ist der interne Aufbau der Verstärkerdiode [128]: Der schmale Wellenleiter hinter der Eingangsfacette (siehe Abbildung 5.15) fungiert schon ausreichend als modenselektives Element.

Eine starke Abhängigkeit des Strahlprofils, sowohl von der Justage des Eingangsstrahls, als auch vom Verstärkerstrom konnte jedoch beobachtet werden. Abbil-

²Modell TA 920 der Firma TOPTICA Photonics AG, www.toptica.com

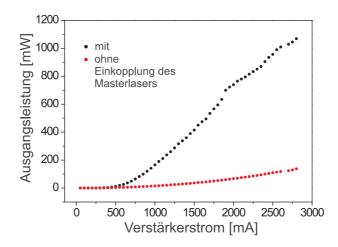


Abbildung 5.14: Ausgangsleistung der Verstärkerdiode in Abhängigkeit vom Pumpstrom bei einer eingekoppelten Leistung von 20 mW (schwarz). Die verstärkte Spotanemission, ohne Eingangssignal, ist rot dargestellt.

dung 5.15 zeigt das optimierte Ausgangsmodenprofil im Fernfeld für zwei verschieden Verstärkerströme, 1600 mA und 2800 mA.

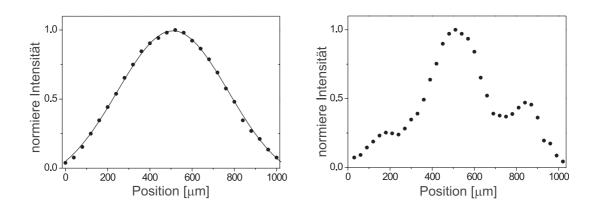


Abbildung 5.15: Ausgangsstrahlprofil des Trapezverstärkers im Fernfeld, senkrecht zur langen Achse der trapezförmigen Verstärkungsregion für verschiedene Verstärkerströme. Bei 1600 mW lässt sich ein nahezu gaußförmiges Modenprofil erreichen (links), die Ausgangsleistung beträgt dabei 0,5 W. Dagegen zeigt sich bei 2800 mW ein stark deformiertes Modenprofil (rechts), die Ausgangsleistung liegt bei mehr als 1 W.

Im ersten Fall, mit einem Verstärkerstrom von 1600 mA, erhält man bei einer Ausgangsleistung des Trapezverstärker von 0,5 W ein nahezu gaußförmiges

Strahlprofil im Fernfeld beider transversalen Richtungen, wenngleich ein leichter Astigmatismus bleibt. So können mehr als 75 % der Ausgangsleistung in den externen Überhöhungsresonator für die erste Frequenzverdopplung eingekoppelt werden, was anhand des am Einkoppelspiegel reflektierten Signals bestimmt wurde. Im zweiten Fall erreicht man mit einem Verstärkerstrom von 2800 mW eine Ausgangsleistung von über 1 W. Das Strahlprofil weicht in beiden transversalen Richtungen jedoch stark von einer Gaußform ab, und ein viel kleinerer Teil des Laserlichts konnte in den Überhöhungsresonator eingekoppelt werden. Für den Betrieb des Trapezverstärkers wurde daher im Folgenden immer die erste Variante gewählt.

In den Eigenschaften der verstärkten Spontanemission unterscheidet sich dieser Bautyp von Trapezverstärker wesentlich von zuvor untersuchten Modellen [129]. Wie man aus Abbildung 5.16 entnehmen kann, ist im Gegensatz zu [129] keine Abhängigkeit der verstärkten Spontanemission von der Eingangslaserleistung erkennbar.

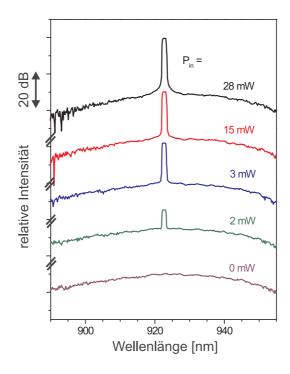


Abbildung 5.16: Ausgangsspektren des Trapezverstärker bei verschiedenen Eingangslaserleistungen, zur Darstellung übereinander aufgetragen. Die verstärkte Spontanemission bleibt erkennbar konstant.

Bei einem Verstärkerstrom von 1600 mW und einer Temperatur der Diode von

18° C bleibt die verstärkte Spontanemission unabhängig von der eingekoppelten Laserleistung auf einem konstanten Wert von etwa 50 mW. Für die experimentelle Verwendung könnte dies von Nutzen sein, da man verschieden starke Lasermoden, etwa auch aufmodulierte Seitenbänder, ohne Beeinflussung der Spontanemission im Trapezverstärker verstärken kann. Der gemessenen Faktor, um den die schmalbandige, kohärente Emission über der spektral sehr breiten verstärkten Spontanemission liegt, ist von der Bandbreite des optischen Spektrumanalysators abhängig.

Für eine Anwendung in der hochauflösenden Spektroskopie ist die Frequenztreue des Verstärkers von zentraler Bedeutung. Um diese Eigenschaft zu untersuchen, wurde die Ausgangsfrequenz des Verstärkers mit der Eingangsfrequenz des Masterlasers in einem Heterodyn-Verfahren verglichen. Die Ausgangsfrequenz des Verstärkers wird dazu mit Hilfe eines AOMs verschoben, und Ein- und Ausgangsstrahl des Trapezverstärker werden auf einer Photodiode überlagert. Mit Hilfe eines Spektrumanalysators beobachtet man das dabei entstehende Schwebungssignal. Abbildung 5.17 zeigt dieses Signal.

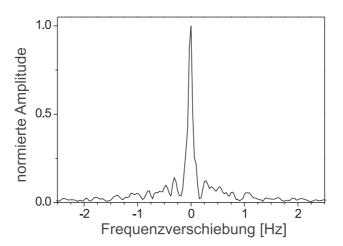


Abbildung 5.17: Schwebungssignal zwischen Ein- und Ausgangsstrahl des Trapezverstärkers. Eine auflösungsbegrenzte Linienbreite von 100 mHz demonstriert die Frequenztreue des Verstärkers.

Die Breite des Schwebungssignals ist vollständig bestimmt durch die Auflösung des verwendeten Spektrumanalysators von 100 mHz. Der Trapezverstärker führt also zu keiner erkennbaren spektralen Verbreiterung der Laserlinie und eignet sich damit für die Verstärkung selbst äußerst frequenzstabiler Laser. Analoge Untersuchungen der Frequenztreue anderer Trapezverstärker-Modelle [104] lagen mit der Auflösung lediglich im Bereich von einigen MHz.

Zusammengefasst liefert die Verstärkerdiode bei einer Eingangsleistung von 25 mW bei 922 nm etwa 500 mW Laserlicht exakt bei der Eingangslaserfrequenz mit nahezu gaußförmigen Strahlprofil. Die verstärkte Spontanemission beträgt 50 mW und ist unabhängig von der eingekoppelten Laserleistung.

5.5 Frequenzverdopplungen

Die Erzeugung der zweiten Harmonischen als nichtlinearer optischer Effekt ist in Lehrbüchern wie [130] ausführlich dargestellt. Hier werden lediglich zwei prinzipielle Möglichkeiten der Phasenanpassung gegenübergestellt, die beide realisiert wurden.

Aufgrund der Dispersion breitet sich in einem nichtlinearen Medium die zweite Harmonische mit einer anderen Phasengeschwindigkeit aus als die Fundamentale. Beide Teilwellen interferieren miteinander und die Leistung der zweiten Harmonischen steigt nur innerhalb der Kohärenzlänge $l_c = \lambda/4(n_{2\omega} - n_{\omega})$ an, wie in Abbildung 5.18 dargestellt ist. Um konstruktive Interferenz zwischen Grund- und Oberwelle zu erreichen, und damit die Leistung der zweiten Harmonischen zu maximieren, muss die Bedingung der Phasenanpassung $n_{2\omega} = n_{\omega}$ erfüllt sein. Dazu nutzt man die Tatsache aus, dass nichtlineare Kristalle gleichzeitig doppelbrechend sind, der Brechungsindex also zusätzlich zur Ausbreitungsrichtung von der Polarisation der im Medium laufenden Welle abhängt.

Bei der Methode der Winkelphasenanpassung legt man den Strahlengang im nichtlinearen Kristall gerade so, dass die in geeigneter Weise polarisierten Teilwellen (Fundamentale und Oberwelle) den gleichen Brechungsindex erfahren. Liegen die Ausbreitungsrichtungen beider Teilwellen entlang der optischen Achse, spricht man vom Spezialfall der unkritischen Phasenanpassung, bei allgemeiner Lage entsprechend von kritischer. Die herkömmliche Methode der kritischen Phasenanpassung wurde bei der Frequenzverdopplung mit BBO benutzt. Auch bei erfüllter Phasenbedingung laufen dabei Fundamentalwelle und zweite Harmonische auseinander, da die Poynting Vektoren beider Teilwellen nicht kollinear sind. Ein Maß dafür ist der Doppelbrechungswinkel. Bei BBO ist dieser Winkel mit 4,4° relativ groß und die Frequenzverdopplung ist so nur mit einem relativ kurzen Kristall sinnvoll [131].

Die Methode der Quasi-Phasenanpassung in periodisch gepolten Kristallen umgeht das Problem der destruktiven Interferenz von Fundamentalwelle und zweiter Harmonischer wie auch das Auseinanderlaufens beider Teilwellen. Der Brechungsindex des nichtlinearen Mediums ändert dazu periodisch sein Vorzei-

chen. Die Phasendifferenz beider Teilwellen wird dadurch nach Durchlaufen einer Kohärenzlänge im Kristall jeweils zurückgesetzt. So ist nur im Mittel die Phasenanpassungsbedingung erfüllt, eine prinzipielle Einschränkung der Länge des Kristalls existiert dagegen nicht. Abbildung 5.18 veranschaulicht dies und vergleicht gleichzeitig die beiden Methoden der Phasenanpassung.

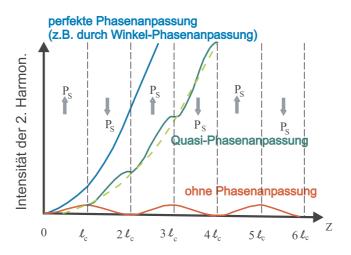


Abbildung 5.18: Vergleich der Effizienz der beiden Methoden der Phasenanpassung.

Im Vergleich zur herkömmlichen Methode sind durch die Quasi-Phasenanpassung größere effektive nichtlineare Koeffizienten eines Kristalles zugänglich. Zusätzlich lässt sich dies in einer unkritischer Wechselwirkungskonfiguration für jede Wellenlängenkombination innerhalb des transparenten Bereichs des nichtlinearen Mediums erreichen [132]. In den letzten Jahren gelang durch den Einsatz von periodisch gepolten ferroelektrischen Kristallen eine effiziente Erzeugung zweiter Harmonischer in einem breiten Bereich des sichtbaren Spektrums [105–107]. Für eine sehr effiziente Frequenzverdopplung in den blauen Spektralbereich werden seid einigen Jahren periodisch gepolte KTP (PPKTP) Kristalle verwendet [108, 109], Konversionseffizienzen von über 50 % (optisch zu optisch) und Leistungen im Dauerstrichbetrieb bis in den Bereich von einigen Watt konnten dabei erreicht werden [133]. Für die Erzeugung des blauen Lichts innerhalb des beschriebenen Laseraufbaus wurde daher ein solcher Kristall gewählt. Für eine Verdopplung in den ultravioletten Spektralbereich stehen derzeit leider noch keine periodisch gepolten Kristalle zur Verfügung, weshalb für die zweite Verdopplung ein BBO-Kristall mit herkömmlicher kritischer Winkel-Phasenanpassung gewählt wurde. Prinzipiell schränkt die Erzielbarkeit der Phasenanpassung für eine gewünschte Wellenlänge die Wahl des Verdopplungskristalls schon weitgehend ein. Erst zweitrangig können Faktoren wie Höhe der Nichtlinearität 2. Ordnung, Transmission und optische Qualität berücksichtigt werden.

Da die Intensität der zweiten Harmonischen quadratisch von der Intensität der Fundamentalwelle abhängt, wird die Fundamentalwelle in den Verdopplungskristall fokussiert. Bei abnehmender Fokusgröße im Kristall nimmt die Intensität zwar zu, doch gleichzeitig auch die Divergenz des Laserstahls. Damit wird die Rayleigh-Länge kleiner und die Phasenanpassung damit schlechter. Es gibt folglich bei gegebener Kristallänge eine optimale Fokusgröße, die mit Hilfe des Optimierungsverfahrens in [131] bestimmt wurde.

5.5.1 Überhöhungsresonatoren

Zur weiteren Erhöhung der Intensität positioniert man den Kristall im Fokus eines Überhöhungsresonators der Fundamentalwelle. In beiden Verdopplungseinheiten wurde hier jeweils ein Doppel-Z-Resonator gewählt. Er besteht aus zwei gekrümmten und zwei planen Spiegeln; die beiden Foki liegen jeweils mittig zwischen den jeweiligen Spiegeln. Der Verdopplungskristall befindet sich im Primärfokus zwischen den beiden Hohlspiegeln. Die Resonatorgeometrien wurden mit Hilfe der Gauß'schen Strahlenoptik [134] jeweils so konzipiert, dass der Primärfokus die für die Verdopplung optimale Größe hat, und gleichzeitig der Astigmatismus durch die Hohlspiegel den Astigmatismus durch das nichtaxiale Auftreffen auf das Brewster-Element (Kristall im Fall für BBO, Brewster-Plättchen im Fall für PPKTP, siehe unten) bestmöglich kompensiert. Die Wahl der Transmission der Einkoppelspiegel richtet sich nach dem Gesamtverlust der Fundamentalwelle im Resonator. Dieser setzt sich zum Einen aus Streu- und Absorptionsverlusten am Kristall und an den Resonatorspiegeln und zum Anderen aus Konversionsverlusten durch die Frequenzverdopplung zusammen. Optimale Impedanzanpassung und damit höchstmögliche umlaufende Leistung erhält man, wenn der Transmissionskoeffizient des Einkoppelspiegels den übrigen Verlusten eines Umlaufs im Resonator entspricht [135].

Die Frequenzstabilisierung der Überhöhungsresonatoren auf die Laserfrequenz erfolgt nach der üblichen polarisationsselektiven Methode nach Hänsch und Couillaud [136]. Das in den Resonator einlaufende Licht ist linear polarisiert, jedoch nicht exakt in der Ebene des Resonators. Der zur Resonatorebene orthogonal polarisierte Teil erfährt, hervorgerufen durch ein polarisationsselektives Element, hohe Verluste beim Umlauf im Resonator, wird daher nur am Einkoppelspiegel reflektiert und dient als Referenz. Der in der Ebene polarisierte Teil läuft im Resonator um und erfährt dadurch in Reflexion des Einkoppelspiegels eine fre-

quenzabhängige Phasenverschiebung. Die Überlagerung beider Teilstrahlen in Reflexion des Einkoppelspiegels ergibt abhängig von der relativen Phasenänderung im Allgemeinen elliptisch polarisiertes Licht; verschwindet die Phasenverschiebung, und damit auch die Frequenzdifferenz, so erhält man lineare Polarisation. Man detektiert nun mit Hilfe eines einfachen Analysatoraufbaus die Elliptizität des am Einkoppelspiegels reflektierten Lichts und erhält so eine steile Resonanz, die sich als elektronisches Fehlersignal für ein Stellelement nutzen lässt. Abbildung 5.19 zeigt neben einer lorentzförmigen Mode im Resonator schematisch das resultierende Fehlersignal.

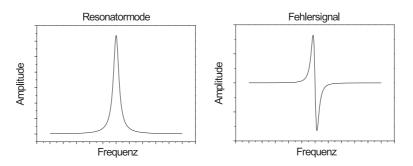


Abbildung 5.19: Resonatormode und Fehlersignal zur Frequenzstabilisierung nach der Hänsch-Couillaud-Methode.

Als polarisationssensitives Element kann der Verdopplungskristall selbst dienen, falls seine Endflächen Brewster-geschnitten sind, wie im Falle des verwendeten BBO-Kristalls, oder eine zusätzlich unter dem Brewster-Winkel eingebaute Glasplatte, wie im Falle von PPKTP. Als Stellelement zur Stabilisierung dient bei beiden Resonatoren jeweils einer der beiden planen Resonatorspiegel, dessen Position mit einem Piezoaktuator verändert wird.

5.5.2 PPKTP-Frequenzverdopplung

Abbildung 5.20 zeigt schematisch den Aufbau des externen Resonators zur Erzeugung von blauem Licht aus der Fundamentalwelle bei 922 nm mit quasiphasenangepasster Frequenzverdopplung im periodisch gepolten KTP Kristall.

Der verwendete Kristall³ hat eine Länge von 20 mm, die Polungslänge der periodischen Struktur ist ca. 3 μ m. Die planen Ein- und Austrittsflächen sind entspiegelt, sowohl für infrarotes als auch für blaues Licht. Die Verluste durch Streuung und

³Kristall von der Firma Raicol, www.raicol.com

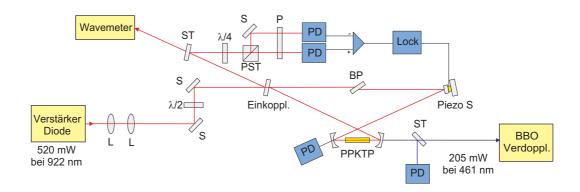


Abbildung 5.20: Aufbau zur Frequenzverdopplung mit PPKTP.

Absorption beim Durchgang von infrarotem Licht betragen etwa 1-2 %. Gemessen wurde dieser Wert bei einfachem Durchgang des infraroten Lichts, ohne Erzeugung der zweiten Harmonischen, also außerhalb der Phasenanpassung. Tabelle 5.1 stellt die Charakteristika des aufgebauten Doppel-Z-Überhöhungsresonators zusammen.

PPKTP-Verdopplungsresonator	
Kristallänge	20 mm
Fokus im Kristall	$46~\mu\mathrm{m}$
Abstand Kristallende-Hohlspiegel	47,5 mm
Krümmungsradius der Hohlspiegel	50 mm
Einfallswinkel auf die Hohlspiegel	10°
Optische Gesamtlänge	685 mm
Freier Spektralbereich	270 MHz
Finesse/Überhöhung	48/15
Einkoppeltransmission	8 %

Tabelle 5.1: Charakteristika des Doppel-Z-Überhöhungsresonators zur Frequenzverdopplung mit PPKTP.

Der Kristall sitzt in einer Halterung, die seine Position präzise in beide zum Laserstrahl senkrechten Raumrichtungen verschieben und in beide Richtungen in der Resonatorebene drehen lässt. Am Kristallhalter ist ein Temperatursensor angebracht, und über eine Temperaturstabilisierung kann die Kristalltemperatur in einem Bereich von 25 °C bis 60 °C mit einer Stabilität von einigen 10 mK eingestellt werden. Um das Fehlersignal für die Stabilisierung des Resonators auf die

Laserfrequenz zu erzeugen, ist in den langen Arm des Resonators zusätzlich eine Brewster-Platte eingebaut. Abbildung 5.21 zeigt eine Photographie des Aufbaus.

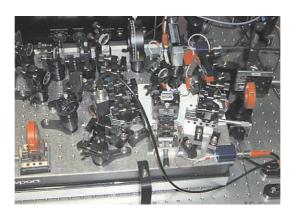


Abbildung 5.21: PPKTP-Verdopplungsresonator.

Optimale Phasenanpassung wurde bei einer Kristalltemperatur von 44,9 °C erreicht. Abbildung 5.22 zeigt bei dieser Temperatur die Leistung der zweiten Harmonischen bei 461 nm in Abhängigkeit von der Ausgangsleistung des Trapezverstärkers für zwei Einkoppelspiegel unterschiedlicher Reflektivität.

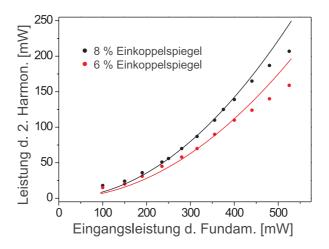


Abbildung 5.22: Intra-cavity Frequenzverdopplung als eine Funktion der Eingangsleistung für zwei Einkoppelspiegel mit 6 % bzw. 8 % Transmission. Die durchgezogenen Linien sind quadratische Fits der jeweiligen Messpunkte.

Mit einem Einkoppelspiegel der Transmission von 8 % und einer Fundamentalleistung im Infraroten von 520 mW, wurde maximal 205 mW blaues Licht erzeugt.

Das entspricht einer Gesamteffizienz von mehr als 40 % (optisch zu optisch). Bei Eingangsleistungen oberhalb von 400 mW im Infraroten steigt die Leistung der zweiten Harmonischen nur schwächer als quadratisch an, wie man Abbildung 5.22 entnehmen kann. Dies liegt daran, dass in diesem Bereich die im Resonator umlaufende infrarote Intensität durch die hohe Konversionseffizienz des Kristalls deutlich verringert wird. Die Frequenzverdopplung stellt in diesem Bereich einen wesentlichen Verlustfaktor für die im Resonator umlaufende Fundamentalwelle dar. Eine Modellierung dieses Verlustprozesses findet sich beispielsweise in [130].

In Abbildung 5.23 ist die Ausgangsleistung bei 461 nm in Abhängigkeit von der Kristalltemperatur dargestellt. Die zentrale Resonanz zeigt eine Bandbreite in der Temperatur von 1,8 K (FWHM), in Übereinstimmung mit dem theoretisch erwarteten Wert, der sich aus der Temperaturabhängigkeit der Brechungsindizes von KTP ergibt [108].

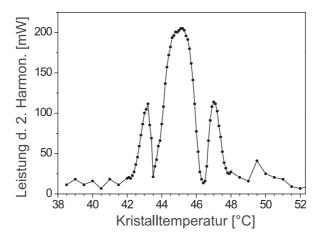


Abbildung 5.23: Temperaturabhängigkeit der intra-cavity Frequenzverdopplung mit PPKTP.

Verglichen mit dem sinc² Verhalten, das man bei quasi-phasenangepasster Frequenzverdopplung bei einfachem Durchgang der Fundamentalwelle erwartet [108], zeigt sich in der Kurve in Abbildung 5.23 der Einfluss des Überhöhungsresonators: Die Seitenmaxima sind im Vergleich zum Träger deutlich erhöht. Das liegt ebenfalls daran, dass die Leistung der Fundamentalwelle im Resonator durch die Konversionsverluste bestimmt ist, so dass eine geringere Konversionseffizienz bei nicht optimaler Temperatur zu einer stärkeren Ausbildung der Fundamentalwelle führen kann.

5.5.3 BBO-Frequenzverdopplung

Im zweiten Doppel-Z-Überhöhungsresonator erfolgt mit der herkömmlichen Methode der Typ I Winkelphasenanpassung mit Hilfe eines BBO-Kristalls die Frequenzverdopplung von 461 nm zu 231 nm. Der Kristall hat eine Länge von 7 mm und Brewster-geschnittene Ein- und Austrittsflächen. Die Streu- und Absorptionsverluste beim Durchgang durch den Kristall liegen bei etwa 1 % der Fundamentalen. Ebenso groß sind die Verluste an den Resonatorspiegeln bei einem Umlauf. Aufgrund der geringen Konversionseffizienz von BBO sind hier Verluste der fundamentalen Welle durch Erzeugung der zweiten Harmonischen vernachlässigbar. Folglich wurde eine optimale Impedanzanpassung mit einem Einkoppelspiegel der Transmission 2 % erreicht. Tabelle 5.2 fasst die charakteristischen Größen dieses Resonators zusammen.

BBO-Verdopplungsresonator	
Kristallänge	7 mm
Fokus im Kristall	$22~\mu\mathrm{m}$
Abstand Kristallende-Hohlspiegel	23,8 mm
Krümmungsradius der Hohlspiegel	50 mm
Einfallswinkel auf die Hohlspiegel	12,5°
Optische Gesamtlänge	235 mm
Freier Spektralbereich	1,3 GHz
Finesse/Überhöhung	130/41
Einkoppeltransmission	2 %

Tabelle 5.2: Charakteristika des Doppel-Z-Überhöhungsresonators zur Frequenzverdopplung mit BBO.

Um die Phasenanpassung zu ermöglichen, ist der Kristall so gehaltert, dass er in beide Richtungen der Resonatorebene präzise drehbar ist. Außerdem kann der Kristall in allen drei Raumrichtungen verschoben werden. Um den hygroskopischen BBO-Kristall vor kondensierendem Wasser zu schützen, wird er mit Hilfe eines Kaltleiters auf der Kristallhalterung bei einer Temperatur von etwa $70\pm0,5$ °C gehalten. Über einen Zeitraum von einigen Monaten stellen sich punktuelle Defekte an den Kristalloberflächen am Ort des Lasereintritts ein, da durch die Laserstrahlung photochemisch Sauerstoff aus der Bindung herausgelöst wird. Für eine optimale Leistungsausbeute muß dann durch Verschieben des Kristalls ein anderer Eintrittspunkt gewählt werden. Eine aufgebaute Spülung mit Sauerstoff könnte diesen Prozess zwar verhindern, führt aber zu Leistungsschwankungen und wurde deshalb nicht weiter eingesetzt.

Bei einer Eingangsleistung von 200 mW bei 461 nm konnte bei optimaler Phasenanpassung eine Leistung von mehr als 1 mW bei 231 nm erreicht werden. Dies entspricht etwa 1000-facher Sättigungsleistung des Kühlübergangs eines einzelnen In⁺-Ions und ist daher mehr als ausreichend für die gewünschte Anwendung.

5.6 Spektroskopische Anwendungen

Als Referenz der Wellenlänge des Lasersystems dient das Absorptionsspektrum von 130 Te₂, das im Blauen eine Vielzahl von Referenzlinien aufweist, die mit einer Genauigkeit von bis zu 10^{-4} 1/cm vermessen und tabelliert sind [137]. Dazu wird mit dem am Einkoppelspiegel des PPKTP-Resonators reflektierten Strahl Absorptionsspektroskopie an einer Tellurzelle betrieben. Das in Abbildung 5.24 dargestellte Absorptionsspektrum demonstriert die kontinuierliche Durchstimmbarkeit des Lasers, hier über einen Frequenzbereich von 10 GHz im Blauen.

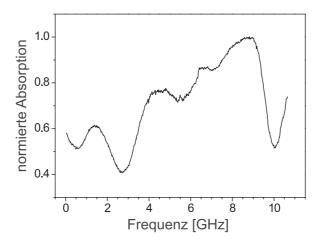


Abbildung 5.24: Dopplerverbreitertes Absorptionsspekrum von 130 Te₂ im Blauen. Über das Gitter des Diodenlasers wird die Frequenz modensprungfrei über etwa 10 GHz im Blauen durchgestimmt.

In Doppler-freier Sättigungsspektroskopie können die beiden verwendeten Referenzlinien von 130 Te₂ aufgenommen werden, zwischen denen die Hyperfeinkomponente $F = 9/2 \rightarrow F' = 11/2$ des $^1S_0 \rightarrow ^3P_1$ Übergangs von In⁺ liegt, der zur Kühlung und zur Detektion der gespeicherten Ionen verwendet wird. Abbildung 5.25 zeigt ein gemessenes Spektrum.

Das Fluoreszenzspektrum des Kühlübergangs einer puffergasgekühlten Wolke gespeicherter In⁺-Ionen zeigt Abbildung 5.26. Als Puffergas diente dabei Helium mit

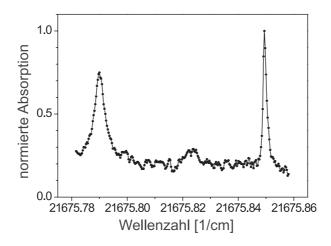


Abbildung 5.25: Dopplerfreie Sättigungsspektroskopie von 130 Te₂ im Blauen. Die beiden gemessenen Tellurlinien dienen als Referenz für den Indium Kühlübergang, dessen $F = 9/2 \rightarrow F' = 11/2$ Komponente zwischen beiden Linien liegt.

einem Druck von etwa 10^{-4} mbar, die Leistung des Lasers betrug etwa 0,5 mW im UV. Mit Hilfe einer im μ m-Bereich positionierbaren Linse wurde der Laser auf eine Größe von etwa $40 \times 40 \ \mu$ m in die Mitte des Fallenrings fokussiert.

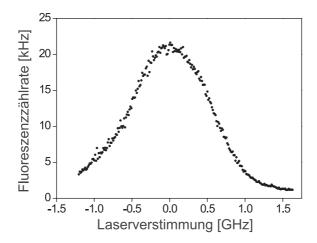


Abbildung 5.26: Ultraviolettes Fluoreszenzsignal einer puffergasgekühlten Wolke gespeicherter In⁺-Ionen.

Die Breite des Spektrums im GHz-Bereich ist durch die Dopplerverbreiterung bei der Temperatur von etwa 1000 K der puffergasgekühlten Ionen bestimmt. Die Asymmetrie des Spektrums entsteht durch Laserheizung der Ionenwolke, die bei

der hohen Laserintensität von über $30~\mathrm{W/cm^2}$ selbst bei Puffergaskühlung erkennbar ist [62, 138]. Während die niederfrequente Flanke des Spektrums nicht durch eine Laserkühlung beeinflusst wird, verbreitert sich die hochfrequente Seite durch eine Laserheizung. Eine Heizung der gespeicherten Ionen gegen die Dämpfung des Puffergases ist demnach mit dem Laser möglich, eine weitere Kühlung dagegen nicht.

Mit dem neuen Kühllasersystem konnten auch einzelne, gespeicherte Ionen spektroskopiert werden. Insgesamt ist damit demonstriert, dass das aufgebaute Lasersystem die oben angeführten Anforderungen für das Indium-Experiment erfüllt.

Kapitel 6

Laserkühlung einzelner Ionen

Nahezu alle Methoden der Laserkühlung basieren im Wesentlichen darauf, dass die Bewegungsenergie eines Atoms durch einen anti-Stokes-Raman Streuprozess auf das Photonenfeld übertragen wird. Im Mittel besitzen die gestreuten Photonen eine höhere Energie als die absorbierten Photonen und der Absorber wird so gekühlt.

Die Beschreibung der Laserkühlung gespeicherter Ionen geht üblicherweise von einem statischen, harmonischen Potential aus, in dem ein Ion gespeichert ist und mit monochromatischem nahresonanten Laserlicht wechselwirkt [20, 139–141]. In diesem theoretischen Gerüst lässt sich die Laserkühlung in zwei Bereiche aufteilen, die sich insbesondere in den erreichbaren Endtemperaturen unterscheiden.

Im ersten Fall ist das Ion schwach an das Fallenpotential gebunden, so dass die natürliche Linienbreite Γ des optischen Übergangs, der zur Laserkühlung verwendet wird, größer ist als die Säkularfrequenzen ω des Teilchens in der Falle. Die Dauer eines Absorptions-Emissions-Zyklus ist damit wesentlich kürzer als die Schwingungsperiode des Ions im Fallenpotential und die Kühlung lässt sich analog zur Doppler-Kühlung freier Atome [8] verstehen. Für Laserfrequenzen unterhalb der Resonanzfrequenz des atomaren Überganges wird das Ion gekühlt. Die Doppler-Verschiebung durch die Bewegung kompensiert dabei die negative Verstimmung des Laserlichts. Die minimale erreichbare Temperatur $T \simeq \hbar \Gamma/2k_b$ ist durch den Photonenrückstoß bei der Absorption limitiert und wird bei einer Laserverstimmung von $\delta = -\Gamma/2$ erreicht. Die dazu korrespondierende kleinste mittlere Besetzungszahl ist $\langle n \rangle = \Gamma/2\omega > 1$ [141]. In Experimenten ließen sich auf diese Art Temperaturen von unter 10 mK und mittlere Besetzungszahlen von n < 50 realisieren [142].

Im zweiten Fall ist das Ion stark an das Fallenpotential gebunden und es gilt

 $\Gamma \ll \omega$. Dieser Fall ist im beschriebenen In⁺-Experiment gegeben. Zwischen Absorption und Emission führt das Ion viele Schwingungen im Fallenpotential durch. Daher besteht das Anregungsspektrum neben dem Träger bei der Resonanzfrequenz aus aufgelösten Seitenbändern bei Vielfachen der Säkularfrequenz ω . Kühlung erhält man bei Verstimmung des Lasers auf eines der niederfrequenten Säkularseitenbänder, weshalb man von Seitenbandkühlung spricht. Hier lassen sich erheblich niedrigere Temperaturen erreichen, da der Photonenrückstoß bei der Streuung einen kleineren Einfluss auf das Kühllimit hat. Bei einer räumlichen Lokalisation des Ions unter die Wellenlänge des anregenden Lichts, im sogenannten Lamb-Dicke-Bereich, erfolgt die Absorption quasi-rückstoßfrei [9] und die bei der Emission übertragene Rückstoßenergie ist klein gegenüber dem Schwingungsquant $\hbar\omega$. So kann durch Seitenbandkühlung eine Reduzierung der kinetischen Energie des gespeicherten Teilchens bis in den quantenmechanischen Grundzustand des Fallenpotentials erreicht werden.

Trotz ihrer prinzipiellen Einfachheit konnte die Methode der Seitenbandkühlung bisher nur in wenigen Experimenten realisiert werden, da sich für optische Übergänge das Kriterium $\Gamma \ll \omega$ nur schwer erreichen lässt. Die Säkularfrequenzen gespeicherter Ionen in üblichen Radiofrequenz-Fallen liegen typischerweise im Bereich von 1 MHz, während die natürlichen Linienbreiten erlaubter optischer Dipolübergänge in Alkali-ähnlichen positiven Ionen im Bereich von 20 bis 50 MHz liegen. Laser-Seitenbandkühlung dieser Ionen ist deshalb vorwiegend unter Anregung verbotener optischer Übergänge [67] oder stimulierter Raman-Übergänge zwischen langlebigen Zuständen [68] realisiert worden. In diesen Fällen ist die Seitenbandkühlung jedoch typischerweise sehr langsam und wird nur in der Endphase der Kühlung zur Extraktion einiger weniger Schwingungsquanten eingesetzt, nach vorheriger Dopplerkühlung auf einem schnellen Dipolübergang. Auf diese Weise gelang die Kühlung eines gespeicherten Einzelions in sehr guter Näherung bis in den Schwingungsgrundzustand des Fallenpotentials ($\langle n \rangle \approx 0,05$), 1989 erstmals an ¹⁹⁹Hg⁺ [67], 1995 an ⁹Be⁺ [68]. Später konnte in analoger Weise ⁴⁰Ca⁺ bis auf eine mittlere Besetzungszahl von $\langle n \rangle \approx 0,001$ gekühlt werden [70]. Raman-Seitenbandkühlung wurde darüberhinaus mit neutralen Atomen demonstriert, die in einer optischen Falle gespeichert wurden [143, 144].

Verglichen mit diesen Experimenten besteht bei einem einzelnen, gespeicherten In⁺-Ion der Vorteil eines Kühlübergangs mit äußerst günstiger natürlicher Linienbreite von 360 kHz. So kann einerseits das Regime der starken Bindung problemlos erreicht werden, andererseits erfolgt die Kühlung schnell genug, um auf andere Methoden zur Vorkühlung verzichten zu können. So konnte ausschließlich durch Seitenbandkühlung eine Reduzierung der mittlere Besetzungszahl von $\langle n \rangle \approx 10^8$

auf $\langle n \rangle \approx 0,7$, also nahe an den Schwingungsgrundzustand des Fallenpotentials, erzielt werden [23]. Für eine kontinuierliche, hochauflösende Spektroskopie ergibt sich daraus der praktische Vorteil, dass für eine Temperatur im Mikrokelvinbereich kein komplizierter Kühlprozess, sondern lediglich das kontinuierliche Einstrahlen eines Kühllasers notwendig ist.

6.1 Theorie der Seitenbandkühlung im harmonischen Potential

Seitenbandkühlung stellt eine anti-Stokes-Raman-Streung von Laserlicht am stark gekoppelten System aus Ion und Fallenpotential dar. Abbildung 6.1 veranschaulicht das Prinzip der Kühlung in einem harmonischen Potential mit einem gegenüber der Resonanz niederfrequent verstimmten Laser.

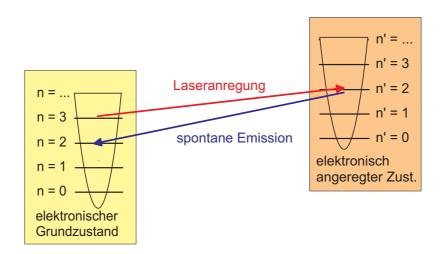


Abbildung 6.1: Prinzip der Seitenbandkühlung.

Die beiden energetisch niedrigsten elektronischen Zustände des gespeicherten In⁺Ions stellen in guter Näherung ein geschlossenes 2-Niveau-System dar (siehe Kapitel 6.2). Im harmonischen Pseudopotential der Falle spalten beide elektronische
Niveaus in Vibrationszustände auf; im Absorptionsspektrum führt dies neben der
Resonanz des Kühlübergangs zu symmetrischen Seitenbändern im Abstand der
Säkularfrequenzen.

Strahlt man einen Laser mit der Frequenz des n-ten niederfrequenten Säkularseitenbands ein, regt man damit Übergänge vom n'-ten Vibrationsniveau des elektronischen Grundzustands in das (n'-n)-te Niveau des elektronisch angeregten Zu-

stands an. Der nachfolgende spontane Zerfall in den elektronischen Grundzustand erfolgt innerhalb des Lamb-Dicke-Bereichs im Mittel ohne Änderung des Vibrationszustands. Nach einem Absorptions-Emissions-Zyklus ist somit die Schwingungsenergie des Ions im Mittel um n Quanten reduziert. Prinzipiell kann man auf diese Art bis in den Schwingungsgrundzustand des Fallenpotentials kühlen.

Im Folgenden werden die Beschreibung und die wesentlichen Ergebnisse der üblichen Theorie der Seitenbandkühlung im statischen, harmonischen Potential [20,141] zusammengefasst. Darin induziert eine laufende Laserwelle Übergänge zwischen Grundzustand und angeregtem Zustand des Ions, wobei sich die inneren (elektronischen) von den äußeren (vibronischen) Freiheitsgraden separieren lassen. In Dipolnäherung ergeben sich für den Übergang zwischen Eigenzuständen $|n\rangle$ und $|n'\rangle$ des harmonischen Potentials die Matrixelemente [20]:

$$\langle n'|e^{ikx}|n\rangle = e^{-\eta^2/2} \sqrt{\frac{n_{<}!}{(n_{<} + \Delta n)!}} (i\eta)^{\Delta n} L_{n_{<}}^{\Delta n}(\eta^2)$$
(6.1)

Für den Lamb-Dicke-Parameter η gilt $\eta = kx_0 = k\sqrt{\hbar/2m\omega}$, wobei x_0 die Ausdehnung der Grundzustandswellenfunktion ist. $n_<$ bezeichnet die kleinere der beiden Zahlen n und n', $\Delta n = |n-n'|$ deren Differenz und L_n^m das generalisierte Laguerre-Polynom. Die Betrachtung der beiden Grenzfälle der Theorie für hohe bzw. niedrige Schwingungsenergie des Ions ermöglicht Näherungen, die zum Einen für das Verständnis des später erweiterten Modells der Seitenbandkühlung von Vorteil sind, und zum Anderen für das Experiment relevante Zusammenhänge liefern.

6.1.1 Grenzfall hoher Schwingungsanregung

Im Grenzfall hoher Schwingungsanregungen $n, n' \gg 1$ ergibt sich für das Übergangsmatrixelement in Gleichung 6.1:

$$\langle n'|e^{ikx}|n\rangle \approx i^{\Delta n}J_{\Delta n}(2\eta\sqrt{n})$$
 (6.2)

wobei $J_{\Delta n}$ die Bessel-Funktion der Ordnung Δn ist. Dieses Ergebnis entspricht dem frequenzmodulierten Spektrum eines klassischen harmonischen Oszillators. Die Verteilung auf verschiedene mögliche Niveaus folgt der Besselfunktion, deren Argument von der klassischen Schwingungsamplitude des angeregten Zustands abhängt. Ausgehend von diesem Bereich wird in Kapitel 6.4 eine erweiterte Theorie der Seitenbandkühlung vorgestellt.

6.1.2 Grenzfall niedriger Schwingungsenergien

Im Grenzfall kleiner Schwingungsanregungen befindet sich das Ion im Lamb-Dicke-Bereich (LDB) mit $\eta \ll 1$. Das heisst, seine Bewegung ist auf einen Raumbereich beschränkt, der kleiner ist als die optische Wellenlänge des Übergangs. In diesem Regime lassen sich die Matrixelemente in Gleichung 6.1 auswerten und eine detailierte Untersuchung der Kühlgrenzen der Seitenbandkühlung durchführen [139]. Dabei ergibt sich als Gleichgewichtszustand des Ions eine thermische Besetzung über die Oszillatorniveaus, charakterisiert durch eine mittlere Besetzungszahl $\langle n \rangle$:

$$p_{\langle n \rangle} = e^{-\frac{\langle n \rangle \hbar \omega}{k_B T}} (1 - e^{-\frac{\hbar \omega}{k_B T}}) \tag{6.3}$$

Durch diese thermische Verteilung kann dem einzelnen gespeicherten Ion eine Temperatur zugeordnet werden:

$$T = \frac{\hbar\omega}{k_B \ln(1 + 1/\langle n \rangle)} \tag{6.4}$$

Aus den Matrixelementen in Gleichung 6.1 und den thermischen Besetzungen der Oszillatorniveaus lassen sich im LDB die Stärken verschiedener Seitenbänder berechnen. Für den Träger und die erste Ordnung der Seitenbänder ergibt sich [145]:

$$S_0 = 1 \tag{6.5}$$

$$S_{-1} = \eta^2 \langle n \rangle \tag{6.6}$$

$$S_{+1} = \eta^2(\langle n \rangle + 1) \tag{6.7}$$

Diese Gleichungen liefern im LDB einen Zusammenhang zwischen der Höhe von spektroskopisch zugänglichen Seitenbändern eines Übergangs und der mittleren Besetzungszahl, was, wie in Kapitel 6.3 beschrieben wird, zur Bestimmung der Temperatur ausgenutzt werden kann. Dabei gilt dieser Zusammenhang nicht nur für die Seitenbänder des Kühlübergangs, sondern für jeden Übergang mit $\Gamma \ll \omega$ - im Fall von In⁺ also auch für den Referenzübergang.

Die mittlere Besetzungszahl $\langle n \rangle$ hängt über Gleichung 6.1 im Allgemeinen kompliziert von der Linienbreite Γ , der Säkularfrequenz ω , der Laserverstimmung δ und der Rabifrequenz ω_R ab [139]. Im betrachteten LDB können aber folgende einfache Grenzfälle abgeleitet werden [23]:

1. Bei schwacher Anregung ($\omega_R \ll \Gamma$) des ersten Seitenbandes ($\delta = -\omega$) und bei gut aufgelösten Seitenbändern ($\omega \gg \Gamma$) erzielt man optimale Kühlung und es gilt:

$$\langle n \rangle = (\kappa + \frac{1}{4}) \frac{\Gamma^2}{4\omega^2} \tag{6.8}$$

 κ ist ein von der Geometrie abhängiger Faktor und von der Größenordnung eins. Dieser Ausdruck findet sich auch in [20,142]. Für $\eta \ll 1$ ist die Rückstoßenergie $E_R = (\hbar k)^2/2m$, die das Ion bei der Spontanemission eines Photons der Wellenzahl k gewinnt, klein gegen das Schwingungsquant $\hbar\omega$. Gleichung 6.8 stellt das theoretische Limit der Seitenbandkühlung dar. Für die Parameter des In⁺-Experiments errechnet sich daraus ein theoretisches Kühllimit von $\langle n \rangle = 0,04$.

2. Bei Anregung des ersten Seitenbandes ($\delta = -\omega$) mit starker Sättigung ($\omega_R \gg \Gamma$) ergibt sich $\langle n \rangle$ proportional zur Laserintensität:

$$\langle n \rangle \approx \frac{\omega_R^2}{8\omega^2}$$
 (6.9)

Dieser Fall ist im Experiment von großer Bedeutung, da man entsprechen Gleichung 6.9 bei hinreichend kaltem Ion noch ein ausreichend großes Fluoreszenzsignal erhält.

3. Im Fall großer Laserverstimmung ($\delta \gg \omega, \omega_R, \Gamma$) ergibt sich $\langle n \rangle$ proportional zur Verstimmung:

$$\langle n \rangle \approx \frac{\kappa + 1}{4} \frac{\delta}{\omega}$$
 (6.10)

Hier werden die unteren Schwingungsniveaus von der Laseranregung nicht mehr entleert.

6.2 Kühlung von In⁺

Zur Seitenbandkühlung von In⁺ wird die $5s^2$ $^1S_0 \rightarrow 5s5p$ 3P_1 Interkombinationslinie bei 230, 6 nm verwendet. Im Fall reiner LS-Kopplung wäre dieser Übergang als elektrischer Dipolübergang durch die Auswahlregeln verboten. Mit seiner relativ großen Masse liegt Indium jedoch im Bereich der intermediären Kopplung - im

Übergangsbereich zwischen LS- und jj-Kopplung. Dem 3P_1 -Zustand ist ein Anteil des 1P_1 -Zustands beigemischt, so dass eine Wechselwirkung mit elektrischer Dipolstrahlung möglich wird. Diese Beimischungen spielen auch eine entscheidende Rolle beim Verständnis des $^1S_0 \rightarrow {}^3P_0$ Referenzübergangs (siehe Kapitel 2.1). Die Lebensdauer des 3P_1 -Zustands beträgt 0,44 μ s [36], was eine natürliche Linienbreite des Übergangs von $\Gamma/2\pi=360$ kHz ergibt. Damit lassen sich die Seitenbänder der Säkularbewegung von rund 1 MHz in der Falle prinzipiell spektroskopisch auflösen und man ist im Regime der starken Bindung.

Der ${}^{3}P_{1}$ -Zustand spaltet in drei Hyperfeinniveaus mit F = 7/2, 9/2 und 11/2 auf; die in [36,62] gemessenen Wellenzahlen der drei möglichen Übergänge sind in Tabelle 6.1 aufgelistet.

Hyperfeinkomponente	Wellenzahl
$F \to F'$	[1/cm]
$9/2 \rightarrow 7/2$	43349,30(2)
$9/2 \rightarrow 9/2$	43350, 36(2)
$9/2 \to 11/2$	43351,62(2)

Tabelle 6.1: Wellenzahlen der drei möglichen Hyperfeinkomponenten des $^1S_0 \rightarrow ^3P_1$ Übergangs.

Ein großer Vorteil für die Kühlung von In⁺ besteht darin, dass ein effektives 2-Niveau-System präpariert werden kann, und damit nur ein einziges Lasersystem zur Kühlung benötigt wird. Dies erreicht man, indem man den $F=9/2 \rightarrow F=11/2$ Übergang mit σ^+ -polarisiertem Licht bei verschwindendem Magnetfeld anregt [36,62]. Dabei wird die komplette Besetzung optisch in die extremalen Zeemann-Niveaus gepumpt und damit das höchstmögliche Fluoreszenzsignal erreicht. Alle in dieser Arbeit gezeigten Einzelionenspektren wurden unter diesen Bedingungen gewonnen. Alternativ kann bei noch nicht vollständig kompensiertem Magnetfeld zur Optimierung des Signals ein starkes Magnetfeld in Richtung der Laserachse angelegt werden.

Die Kompensation transversaler Magnetfelder erfolgt über den Kühlübergang, indem man den Hanle-Effekt [146] des Grundzustands ausnutzt. Die Magnetfelder in Laserstrahlrichtung werden in Radiofrequenz-optischer Doppelresonanz ebenfalls mit Hilfe des Kühlübergangs kompensiert. Beide Kompensationsverfahren werden in [99] eingehend beschrieben.

Die Laserkühlung erfolgt in allen drei Raumrichtungen gleichzeitig, da der Laser so in die Falle eingestrahlt wird, dass sein Wellenvektor nichtverschwindende

Projektionen entlang der drei Haupachsen der Falle besitzt und die Differenzen zwischen den drei Säkularfrequenzen ($\omega_x/2\pi=880$ kHz, $\omega_y/2\pi=940$ kHz, $\omega_z/2\pi=1360$ kHz) vergleichbar groß bzw. sogar kleiner als die Linienbreite des Kühlübergangs sind. Im Ergebnis konnten so einzelne In⁺-Ionen und Coulomb-Kristalle [138, 147] aus zwei In⁺-Ionen bis nahe an den Fallengrundzustand gekühlt werden [23]

Für die Einzelionenspektroskopie wird das Isotop 115 In⁺ verwendet, das über 95% des natürlichen Isotopengemisches ausmacht. Es existiert aber noch ein weiteres stabiles Isotop, 113 In⁺, das sowohl stabil gespeichert als auch spektroskopiert werden konnte [60]. Der $^{1}S_{0} \rightarrow {}^{3}P_{1}$ Übergang von 113 In⁺ ist im Vergleich zu 115 In⁺ zu höheren Frequenzen verschoben, was eine spektroskopische Isotopentrennung ermöglicht [148]. Ausgehend von einer gespeicherten Ionenwolke, in der beide Isotope vertreten sind, strahlt man dazu den Kühllaser mit einer Frequenz ein, die zwischen beiden Kühlresonanzen liegt. Damit heizt man 115 In⁺ aus der Falle, während man 113 In⁺ kühlt. Die Isotopieverschiebung des Kühlübergangs wurde in [60] zu (696, 6 ± 0 , 7) MHz bestimmt.

6.3 Temperaturbestimmung

Die Gleichungen 6.5 bis 6.7 stellen einen Zusammenhang zwischen der mittleren Besetzungszahl $\langle n \rangle$ des gespeicherten Ions und den Amplituden von Säkularseitenbändern eines Übergangs mit $\Gamma \ll \omega$ her. Experimentell kann die Temperatur des Ions damit über die Spektroskopie der Seitenbänder des Kühl- oder des Referenzübergangs bestimmt werden. Vergleicht man die Höhe des Trägers mit der Höhe der Seitenbänder, so muss zur Gültigkeit der Gleichungen 6.5 bis 6.7 sichergestellt sein, dass sowohl die Seitenbänder als auch der weitaus stärkere Träger unterhalb der Sättigung liegen. Ein Vergleich der beiden Seitenbänder erster und minus erster Ordnung umgeht dieses Problem. Unterhalb der Sättigungsleistung hängt die Anregungsrate linear von der Höhe der Seitenbänder ab, wodurch eine Temperaturauswertung möglich wird.

Für gespeicherte einzelne In⁺-Ionen und Coulomb-Kristalle wurde in einer bichromatischen Kühlmethode die Temperatur anhand der Stärke der Säkularseitenbänder des Kühlübergangs bestimmt [23]. Dazu wurde die Höhe des ersten niederfrequenten Säkularseitenbands mit der Höhe des Trägers verglichen. Prinzipiell steht man bei einer Temperaturbestimmung über eine Spektroskopie des Kühlübergangs jedoch vor dem Problem, dass die zu messende Temperatur von der Verstimmung und der Stärke des Kühllasers abhängt. Jeder Messpunkt im

Spektrum des Kühlübergangs stellt einen eigenen Gleichgewichtszustand mit zugehöriger Temperatur dar. Deutlich wird das Problem im Fall positiver Laserverstimmung: Weil dort keine effektive Kühlung möglich ist, entzieht sich das erste hochfrequente Säkularseitenband des Kühlübergangs einer solchen Spektroskopie. Eine Anregung des Referenzübergangs dagegen beeinflusst die Temperatur nicht. Eine Spektroskopie der Säkularseitenbänder erster Ordnung über den Referenzübergang in optisch-optischer Doppelresonanz stellt daher die zu bevorzugende Methode zur Bestimmung der Temperatur des Ions dar.

Die Doppelresonanz-Spektroskopie des Referenzübergangs erfolgt unter sequentieller Einstrahlung von Referenz- und Kühllaser (siehe Kapitel 2.2). Während der Anregungsphase mit dem Referenzlaser ist das Ion dabei 20 ms ohne Laserkühlung. Durch die in Kapitel 3.2.2 diskutierten parasitären Heizprozesse ändert sich in dieser Zeit die mittlere Besetzungszahl des Ions zu höheren $\langle n \rangle$. Da die gemessene Breite des Anregungsspektrums des Referenzübergangs nicht fourierlimitiert ist, sondern von der Linienbreite des anregenden Lasers $\Gamma_{Laser} \gg \Gamma$ bestimmt wird, sind die Anregungen im Intervall von 20 ms praktisch gleichverteilt. Damit misst man in Doppelresonanz die Temperatur eines Ions nach einer mittleren Heizzeit von 10 ms. Durch eine Variation der Länge der Anregungszeiten ließe sich die minimal erreichbare Temperatur und die Heizrate in Doppelresonanz bestimmen. Die Heizrate der verwendeten Paul-Straubel-Falle wurde jedoch in [60] anhand der Fluoreszenz des Kühlünergangs schon eingehend untersucht. Sie liegt im Bereich von 10^2 bis $10^3 \langle n \rangle/s$, offenbar abhängig von Parametern in der Fallenregion, wie z.B. der Bedampfung der Fallenelektrode mit Indium.

Aus Gleichungen 6.5 bis 6.7 ergibt sich aus der Asymmetrie der beiden Säkularseitenbänder erster Ordnung die mittlere Besetzungszahl zu:

$$\langle n \rangle = \frac{S_{-1}/S_{+1}}{1 - S_{-1}/S_{+1}} \tag{6.11}$$

Je größer die Asymmetrie zwischen rotem und blauem Seitenband ist, desto näher liegt $\langle n \rangle$ am Grundzustand.

Abbildung 6.2 zeigt das experimentelle Ergebnis der Spektroskopie des Trägers und der ersten Ordnung der Säkularseitenbänder bei $\omega_z/2\pi=1363$ kHz des Referenzübergangs. Die Parameter der Messung entsprechen den für die hochauflösende Spektroskopie üblichen: Der Kühllaser wurde mit 50 μ W weit oberhalb der Sättigungsleistung bei $\delta/2\pi=-11$ MHz, also leicht rotverstimmt vom ersten niederfrequenten Mikrobewegungsseitenband, eingestrahlt. Die Leistung des Referenzlasers lag mit etwa 1 μ W oberhalb der Sättigungsleistung des Trägers, wie im Spektrum jedoch erkennbar ist, weit unterhalb der Sättigung der Seitenbänder.

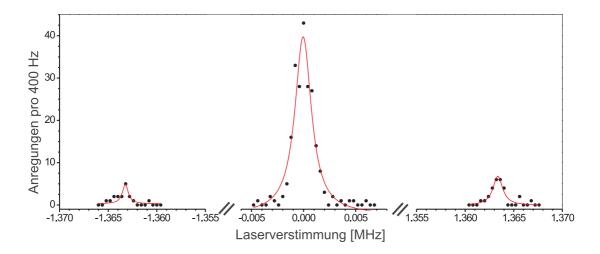


Abbildung 6.2: Temperaturbestimmung in optisch-optischer Doppelresonanz. Aus der Asymmetrie der beider Säkularseitenbänder erster Ordnung des Referenzübergangs lässt sich die mittlere Besetzungszahl $\langle n \rangle$ bestimmen. Dargestellt ist die Anzahl der Anregungen in 400 Hz breiten Intervallen der Frequenz des Referenzlasers und die jeweils angepassten Lorentz-Kurven.

Aus der Asymmetrie der beiden Seitenbänder ergibt sich für die Säkularbewegung in z-Richtung eine mittlere Besetzungszahl von $\langle n \rangle_z = 1, 7^{+2,1}_{-0,7}$ bei einer mittleren Heizzeit von 10 ms, was einer Temperatur von $T = (140^{+140}_{-50})~\mu K$ entspricht. Die Ausdehnung der Wellenfunktion $\Delta z = \sqrt{(\langle n \rangle_z + 1/2)\hbar/m\omega_z}$ des Ions liegt damit mit $\Delta z < 17nm < \lambda/10$ nm weit unter der optischen Wellenlänge des anregenden Laserlichts und demnach weit im LDB. Berücksichtigt man die Heizrate von 10^2 bis 10^3 Schwingungsquanten pro Sekunde [60], so lässt sich aus dieser Messung bestätigen, dass Seitenbandkühlung bis nahe an den Fallengrundzustand realisiert wurde [23]. Analoge Messungen in den beiden anderen Dimensionen der Bewegung des Ions sind damit vereinbar.

6.4 Seitenbandkühlung unter Einfluss der Mikrobewegung

Für die theoretische Beschreibung der Seitenbandkühlung wurde bisher ein statisches Potential angenommen, das reale Potential in einer Paulfalle dagegen ist jedoch explizit zeitabhängig. Die Bewegung eines gespeicherten Ions besitzt daher neben der Säkularbewegung im zeitgemittelten Pseudopotential eine schnel-

lere Mikrobewegung bei der angelegten Fallenfrequenz. Durch das kompliziertere Bewegungsspektrum ergeben sich wesentliche Modifikationen der Dynamik der Seitenbandkühlung. Der Zusammenhang zwischen kinetischer Energie des Ions und der Verstimmung des anregenden Lasers wird dabei erheblich komplexer.

Für den Bereich der starken Bindung wies darauf erstmals eine theoretische Analyse von Cirac et al. hin [149]. Dort wurde der Einfluss der Mikrobewegung auf die Dynamik der Seitenbandkühlung innerhalb des LDB in einer rein quantenmechanischen Rechnung untersucht. Später folgte ein semiklassisches Modell, das auch außerhalb des LDB Gültigkeit besitzt [23]. Darin gelang eine detaillierte Erklärung der komplexen Struktur der Anregungsspektren des Kühlübergangs eines einzelnen gespeicherten In⁺-Ions. Dadurch konnten die experimentellen Parameter der Kühlung an die Anforderungen der Spektroskopie angepasst werden, die für die hochauflösende Doppelresonanz an einem Einzelion genügend Kühlfluoreszenz bei gleichzeitig niedrigen Temperaturen verlangt [23, 60, 99, 145].

Beide angeführten Untersuchungen [23,149] stimmen darin überein, dass sie Seitenbandkühlung auch bei einer Laserverstimmung oberhalb der Resonanz, d.h. für positive Verstimmung vorhersagen. Dies steht im Widerspruch zu den Vorhersagen der üblichen Theorie der Seitenbandkühlung in einem statischen harmonischen Potential, die Kühlung ausschließlich für Laserfrequenzen unterhalb der Resonanz erwarten lassen [20,139–141]. Für schwach gebundene Ionen mit nichtaufgelösten Seitenbänder ($\Gamma \gg \omega$) ist bei starker Mikrobewegung eine ähnliche Inversion von Kühlung und Heizung in Abhängigkeit von der Laserverstimmung möglich, wie für gespeicherte Coulomb-Kristalle gezeigt werden konnte [150,151].

Das semiklassische Modell der Kühlung unter Einfluss der Mikrobewegung [23] erlaubt eine Simulation der experimentellen Situation [152], die als Vorrausssetzung für einen experimentellen Nachweis der Kühlung bei positiver Verstimmung dienten [152]. Dieses Modell wir im Folgenden beschrieben und angewendet.

6.4.1 Semiklassisches Modell

Gleichung 3.5 beschreibt die Bewegung des Ions im Quadrupolpotential der Paulfalle. Danach setzt sich das Bewegungsspektrum aus drei Frequenzen zusammen: Eine Resonanz bei der Säkularfrequenz ω , mit der Amplitude r_0 , und zwei bei Summen- bzw. Differenzfrequenzen $\Omega \pm \omega$ (Ω ist dabei die Fallenantriebsfrequenz) mit einer Amplitude, die um den Faktor q/4 kleiner ($q \approx 0, 2$) als der Term bei ω . Letzterer Ausdruck stellt die gewöhnliche Mikrobewegung dar.

Die Bewegung des Ions führt zu einer Frequenzmodulation des eingestrahlten Laserlichts und bei der Wechselwirkung zu einem Kamm von Seitenbändern für jede der drei Frequenzen. Neben dem Träger zeigt das Absorptionsspektrum des Ions Seitenbänder bei den Verstimmungen $j\omega$, $j^{\pm}(\Omega\pm\omega)$, $(j,j^{\pm}=0,\pm1,...)$. Bei einer gegebenen Verstimmung kann eine Absorption durch Seitenbänder unterschiedlicher Ordnung für verschiedene Modulationsfrequenzen stattfinden. Alle Prozesse mit einer Absorption aus einem niederfrequenten Säkularseitenband j<0 führen zu Kühlung, die aus einem hochfrequenten Säkularseitenband j>0 dagegen zu Heizung. Die Änderung der kinetischen Energie der Säkularbewegung des Ions durch diese unterschiedlichen Anregungen erhält man aus dem Produkt der jeweiligen Streurate und der Verstimmung. Zusätzlich erhöht jedes gestreute Photon durch seine Rückstoßenergie $E_R=\hbar^2k^2/2m$ die Bewegungsenergie des Ions.

Das Ion wird nun semiklassisch als Oszillator mit der Amplitude r_0 bei der Frequenze ω und der Amplitude $r_0q/4$ bei den Frequenzen $\Omega \pm \omega$ betrachtet. Die Stärken der Seitenbänder, die zur Modulation der Ordnung j bei ω , der Ordnung j^+ bei $\Omega + \omega$ und der Ordnung j^- bei $\Omega - \omega$ gehören, sind durch das Produkt der Quadrate der Bessel-Funktionen $J_j^2(\beta)J_{j+}^2(\beta q/4)J_{j-}^2(\beta q/4)$ gegeben, wobei $\beta = 2\pi r_0/\lambda$ der Modulationsindex der Säkularbewegung ist. Aus der Amplitude der Säkularbewegung berechnet sich die zugehörige mittlere kinetische Energie des Ions zu $E = mr_0^2\omega^2/2$, ausgedrückt in Einheiten der Schwingungsenergie $\hbar\omega$.

Wirkt auf das Ion zusätzlich eine statische Kraft, z.B. durch nichtkompensierte statische Streufelder, die das Ion aus der Fallenmitte in eine neue Gleichgewichtslage r_1 verschieben, so gilt die modifizierte Bewegungsgleichung 3.7. In diesem Fall erscheinen im Anregungsspektrum des Ions zusätzlich Seitenbänder bei der Fallenantriebsfrequenz Ω und ganzzahligen Vielfachen davon. Der Modulationsindex dieser Seitenbänder ist nicht mit der Amplitude der Säkularbewegung verknüpft, wie im Fall der gewöhnlichen Mikrobewegung. Die Amplituden der Seitenbänder dieser zusätzlichen Mikrobewegung sind daher konstant und können durch die Laserkühlung nicht verringert werden. Die zusätzliche Mikrobewegung kann folglich durch eine zusätzliche Modulation der Laserfrequenz bei Ω einfach in das bestehende Modell integriert werden.

Für jeden Wert der Laserverstimmung kann die Absorption von Photonen aus verschiedenen Seitenbändern - sowohl der Säkularbewegung als auch der Mikrobewegung - unterschiedlicher Ordnungen zu konkurrierenden Heiz- und Kühlprozessen führen. Innerhalb des LDB ist eine qualitative Analyse besonders einfach, da dann die Seitenbänder niedrigster Ordnung dominieren. In diesem Fall erwartet man effiziente Kühlung rotverstimmt gegenüber einem beliebigen Mikrobewegungsseitenband und Heizung blauverstimmt gegenüber einem Mikrobewegungsseitenband. Dieses Ergebnis gilt sowohl mit als auch ohne zusätzliche Mikrobewegung bei Ω aufgrund einer statischen Verschiebung des Ions. Die scheinbar paradoxe Si-

tuation, dass bei bestimmten Laserverstimmungen anti-Stokes Streuung an einem Ion für Photonen möglich ist, die schon oberhalb der Übergangsfrequenz liegen, kann dadurch aufgelöst werden, dass man das frequenzmodulierte Laserspektrum im Ruhesystem des Ions betrachtet. Aus dem Kamm der Seitenbänder des Lasers selektiert das Ion vorzugsweise Photonen niedriger Energie und emittiert diese anschließend bei verschobenen Frequenzen gemäß der anti-Stokes-Streuung. Im Grenzfall großer Schwingungsamplituden dagegen haben durch den großen Modulationsindex viele Seitenbänder etwa die gleiche Stärke. Ob Kühl- oder Heizprozesse dominieren hängt dann wieder im Wesentlichen vom Vorzeichen der Laserverstimmung ab, hier geht das Modell über in den bekannten Fall der Kühlung in einem statischen Potential. Deshalb lässt sich effiziente Seitenbandkühlung bei positiver Verstimmung nur über einen begrenzten Bereich der Schwingungsamplitude erwarten.

Abbildung 6.3 zeigt eine Berechnung der Kühlleistung in Abhängigkeit von der mittleren Besetzungszahl im vorgestellten semiklassischen Modell für eine positive Laserverstimmung von $\delta/2\pi = +7$ MHz. Die Parameter der Rechnung entsprechen denen des In⁺-Experiments: $\Omega/\omega = 10$, q = 0, 2, $\Gamma/\omega = 0, 36$, $E_R/\omega = 0, 032$, $\omega/2\pi = 1$ MHz. Analog zum Experiment geht der Kühlübergang als stark gesättigt mit $I_{Laser} = 50I_{Sat}$ ein. Um den Einfluss der Mikrobewegung auf die Dynamik der Kühlung darzustellen, sind drei verschiedene Modulationsindizes β_M der zusätzlichen Mikrobewegung simuliert, die im Experiment über eine Veränderung der Kompensationsspannungen realisiert werden können. In die schwarz dargestellte Kurve geht eine signifikante Mikrobewegung von $\beta_M \approx 2$ ein. Der rote Graph simuliert eine perfekte Kompensation der zusätzlichen Mikrobewegung, die dem experimentellen Spektrum in Abbildung 6.5 entspricht. Die blaue Kurve simuliert eine Amplitude zwischen den beiden anderen ($\beta_M = 1$).

Der oszillatorische Charakter der Besselfunktion, die in die Berechnung der Amplituden der verschiedenen Seitenbänder eingeht, führt erkennbar zu Oszillationen der Kühlrate als Funktion der mittleren Besetzungszahl $\langle n \rangle$. Die Kühlkurven zeigen jeweils mehrere Nullstellen, wobei diejenigen mit einer positiven Steigung stabile Zustände sind. Der Einfangbereich eines stabilen Zustands reicht jeweils bis zu den beiden benachbarten Nullstellen mit negativer Steigung. Offensichtlich zeigt dieses System Multistabilität, wie in [23] erkannt und in [60] ausführlich diskutiert wurde. Eine Kühlung zu den kleinst möglichen Temperaturen ist nur dann möglich, wenn die Anfangsenergie des Ions genügend klein ist, um innerhalb des Einfangbereichs des energetisch niedrigsten stabilen Zustands zu sein. Für die Parameter der schwarzen Simulationskurve gilt dies für $\langle n \rangle < 700$. Verringert man die Amplitude der zusätzlichen Mikrobewegung in der Simulation (blau, rot), so

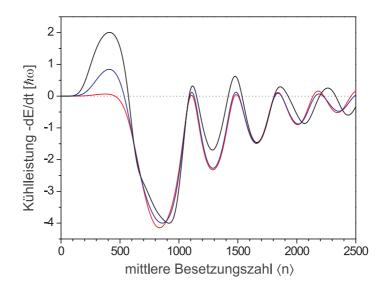


Abbildung 6.3: Kühlrate als Funktion der mittleren Besetzungszahl $\langle n \rangle$ für eine positive Laserverstimmung von $\delta/2\pi = +7$ MHz bei verschieden starker zusätzlicher Mikrobewegung im semiklassischen Modell. Schwarz simuliert eine signifikante Mikrobewegung mit $\beta_M \approx 2$ (analog der experimentellen Parameter in Abbildung 6.6), rot ohne zusätzliche Mikrobewegung (perfekte Kompensation), blau liegt dazwischen ($\beta_M = 1$). Der Einfangbereich des untersten stabilen Kühlbereichs zeigt sich abhängig von der Amplitude der zusätzlichen Mikrobewegung.

liegt ein geringerer Anteil der Kühlkurve oberhalb der Nulllinie und der Einfangbereich des energetisch niedrigsten stabilen Zustands verkleinert sich. Gleichzeitig nimmt die Kühlleistung deutlich ab. Insgesamt wird demnach Kühlung bei blauer Verstimmung mit abnehmender Mikrobewegung weniger stabil und effektiv. Die im Experiment wählbare Amplitude der zusätzlichen Mikrobewegung ermöglicht daher die experimentelle Demonstration von Kühlung bei positiver Verstimmung.

Um die mögliche Effizienz der Kühlung bei positiver Verstimmung einschätzen zu können, bietet sich ein Vergleich der Kühlraten bei positiver und negativer Laserverstimmung an. Abbildung 6.4 zeigt die Kühlkurven für korrespondierende Laserverstimmungen bei $\delta/2\pi = -11$ MHz und $\delta/2\pi = +9$ MHz, also jeweils ein Säkularseitenband rotverstimmt gegenüber dem jeweiligen Mikrobewegungsseitenband erster Ordnung. In die semiklassische Simulation gehen eine starke Mikrobewegung von $\beta_M \approx 2$ und sonst gleiche Parameter wie oben ein.

Der Graph in Abbildung 6.4 zeigt, dass bei positiver Verstimmung im Bereich kleiner Bewegungsenergie des Ions äquivalente Kühlung wie bei üblicher negativer Verstimmung möglich ist: Beide Kühlkurven fallen im Einfangbereich des

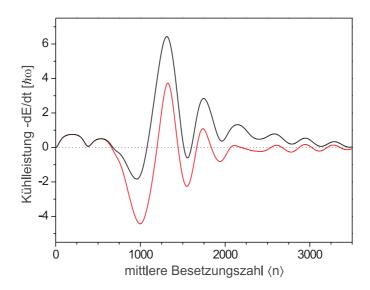


Abbildung 6.4: Gegenüberstellung der simulierten Kühleistungen bei positiver Verstimmung $\delta/2\pi = +9$ MHz (rot) und negativer Verstimmung $\delta/2\pi = -11$ MHz (schwarz) bei starker Mikrobewegung ($\beta_M \approx 2$). Bei den gewählten Parametern zeigen im Bereich kleiner Bewegungsamplituden beide Kühlmethoden die gleiche Effizienz.

ersten stabilen Zustands ($\langle n \rangle < 700$) übereinander, d.h., in diesem Bereich sind beide Kühlmethoden gleich effizient, gleich stabil und führen - innerhalb der Vorhersagekraft des semiklassischen Modells - zur gleichen Endtemperatur. Dies liegt neben der starken Mikrobewegung auch an den gewählten Laserverstimmungen. Bei $\delta/2\pi = -11$ MHz und starker zusätzlicher Mikrobewegung ist der dominierende Kühlprozess die Absorption aus dem ersten niederfrequenten Mikrobewegungsseitenband. Analog der in Kapitel 6.1.2 als Fälle 1 und 2 beschriebenen Situation erreicht die Kühlung hier zwar tiefe Temperaturen, die Kühlleistung dagegen ist mit $\hbar\omega$ pro dominierendem Absorptions-Emissionsprozess nicht sehr hoch. Für $\delta/2\pi = +9$ MHz ist bei starker zusätzlicher Mikrobewegung der dominierende Kühlprozess die Absorption aus dem ersten höherfrequente Mikrobewegungsseitenband. Bei den gewählten Parametern übertrifft dieser Kühlprozess den dominierenden Heizprozess, eine Absorption aus dem Träger, und es ergibt sich insgesamt bei kleiner Anfangsenergie des Ions eine effektive Kühlung. Außerhalb des niederenergetischen Bereichs in Abbildung 6.4 ist Kühlung bei negativer Verstimmung erkennbar deutlich effektiver und stabiler: Nur ein kleiner Teil der roten Kurve liegt oberhalb der Nullinie und kühlt damit.

6.4.2 Experimentelle Kontrolle der Mikrobewegung

Eine möglichst weitgehende Kontrolle der Mikrobewegung ist aus spektroskopischer Sicht wünschenswert, da durch eine Reduktion der Bewegungsamplitude des Ions mögliche systematische Linienverschiebungen des Referenzübergangs verringert werden können (siehe Kapitel 2.3). Dabei ist die zusätzliche Mikrobewegung durch eine Positionierung des Ions in die Fallenmitte direkt beeinflussbar. Die zeitlich gemittelte Energie der gewöhnlichen Mikrobewegung ist gleich der Energie der Säkularbewegung und lässt sich daher indirekt durch die Laserkühlung reduzieren. Auf die zusätzliche Mikrobewegung besitzt die Laserkühlung jedoch keinen Einfluss.

Durch Anlegen einer Gleichspannung an die Endkappen der Falle und an zwei eigens deshalb in Fallennähe angebrachten radialen Kompensationselektroden (siehe Abbildung 3.6) kann das Ion präzise in die wechselfeldfreie Fallenmitte positioniert werden und damit die zusätzliche Mikrobewegung nahezu vollständig kompensiert werden. Der Nachweis der zusätzlichen Mikrobewegung erfolgt äußerst sensitiv über die Spektroskopie der Mikrobewegungsseitenbänder des Kühlübergangs. Durch eine starke Sättigung des Kühlübergangs (bis zu 1000-fache Sättigungsintensität des Kühlübergangs steht zur Verfügung) können Bewegungen des Ions bei der Fallenantriebsfrequenz bis zu Amplituden im Bereich von einigen nm nachgewiesen werden. Um eine Kompensation in allen drei Raumrichtungen sicherzustellen, stehen 2 orthogonale Kühllaserachsen zur Verfügung, entlang denen spektroskopiert werden kann. Nur eine Mikrobewegung senkrecht zu beiden Beobachtungsrichtungen entginge dieser Detektion. Da aber in der Falle keine Feldlinien rein in dieser verbleibenden Achse existieren, ist eine mögliche Mikrobewegung entlang dieser Richtung auch immer mit einer Bewegung verbunden, die entlang einer der zwei Beobachtungsachsen nachgewiesen werden kann.

Abbildung 6.5 zeigt ein Spektrum des Kühlübergangs eines einzelnen In⁺-Ions mit nahezu vollständig kompensierter Mikrobewegung. Die eingestrahlte Kühllaserleistung liegt mit 10 μ W bei etwa 10-facher Sättigungsleistung. Die Fluoreszenz wurde jeweils in Intervallen von 0,5 s gemittelt, jeder Messpunkt entspricht damit einem stabilen Zustand der Kühlung für die gegebene Laserverstimmung.

Aufgrund der sorgfältigen Kompensation sind im Spektrum 6.5 keine Seitenbänder bei der Fallenantriebsfrequenz zu erkennen. Die leichte Erhöhung der Fluoreszenz oberhalb von $\delta/2\pi = -10$ MHz ist ein Zeichen von Heizprozessen bei negativer Verstimmung [23] (siehe auch Abbildung 6.6). Die daraus bestimmbare obere Grenze der Restamplitude der zusätzlichen Mikrobewegung liegt unterhalb von $\lambda/20$, also im Bereich von unter etwa 10 nm, und besitzt damit nur einen

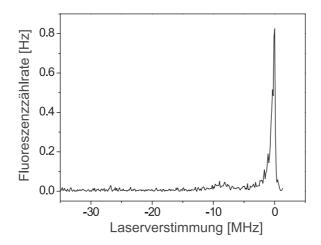


Abbildung 6.5: Spektrum des Kühlübergangs. Neben dem Träger ist lediglich eine leicht erhöhte Fluoreszenz oberhalb einer Verstimmung von $\delta/2\pi=10$ MHz aufgrund von Heizprozessen bei negativer Verstimmung zu erkennen, jedoch kein Mikrobewegungsseitenband. Eine verbleibende Amplitude der Mikrobewegung liegt unterhalb von $\lambda/20$.

geringen Einfluss auf systematische Linienverschiebungen bei einer Spektroskopie des Referenzübergangs. Mit der durch die Seitenbandkühlung erzielte Reduktion der Säkularbewegung auf eine Amplitude von unter $\lambda/10$ (siehe Kapitel 6.3) sind insgesamt die durch eine Bewegung des Ions zu erwartenden systematischen Linienverschiebungen des Referenzübergangs in einem Bereich von 10^{-18} (siehe Kapitel 2.3).

Der Träger des Kühlspektrums zeigt ein asymmetrisches Linienprofil. Für kleine Werte positiver Verstimmung fällt die Fluoreszenz abrupt ab, da das Ion durch nichtresonante Anregung blauer Säkularseitenbänder stark geheizt wird. Das Ion verbleibt zwar in der Falle, doch bei hohen Schwingungsquantenzahlen wird die Laseranregung ineffizient und das Fluoreszenzsignal verschwindet. Die niederfrequente Seite des Trägers zeigt eine sättigungsverbreiterte Lorentz-Linie, wie man sie für ein Ion mit vernachlässigbarer Bewegungsamplitude erwartet. Mögliche Säkularseitenbänder bei kleiner negativer Verstimmung liegen unterhalb der Nachweisgrenze, tragen also nicht nennenswert zur Streurate bei. Dies deutet auf eine niedrige mittlere Schwingungsquantenzahl und eine gute Lokalisation des Ions, weit innerhalb des LDB, hin. Eine mittlere Besetzungszahl von $\langle n \rangle = 3$, entsprechend einer Temperatur von etwa 0,2 mK, führt bei dem im In⁺-Experiment verwendeten Lamb-Dicke-Parameter von $\eta \approx 0$,2 zu Säkularseitenbändern erster Ordnung mit einer Amplitude von 10 % des Trägers.

6.4.3 Kühlung bei positiver Verstimmung

Der experimentelle Nachweis von Kühlung bei positiver Verstimmung lässt sich anhand von Kühlspektren erbringen. Um den Einfangbereich dieser Kühlung zu vergrößern, wurde die Amplitude der zusätzlichen Mikrobewegung erhöht, indem das Ion mit den statischen Potentialen der Kompensationselektroden aus der Fallenmitte geschoben wurde. Ein Modulationsindex der zusätzlichen Mikrobewegung von $\beta_M \approx 2$ wurde so erzeugt. Abbildung 6.6 zeigt unter diesen Bedingungen erhaltene Absorptionsspektren des Kühlübergangs.

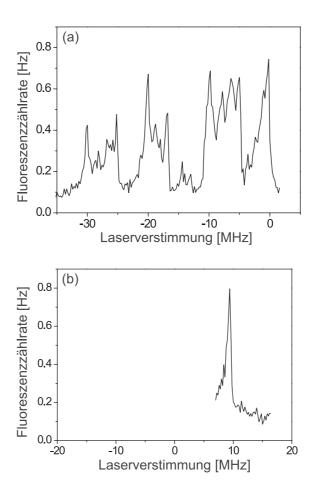


Abbildung 6.6: Spektren des Kühlübergangs bei einer signifikanten zusätzlichen Mikrobewegung mit $\beta_M \approx 2$. (a) Für $\delta < 0$ sind drei Ordnungen von Mikrobewegungsseitenbänder mit typischer Struktur zu erkennen. (b) nach einem Sprung der Laserverstimmung von $\delta/2\pi = -3$ MHz zu $\delta/2\pi = +7$ MHz zeigt das Spektrum eine schmale Resonanz bei $\delta/2\pi = +10$ MHz. Dies beweist die Kühlung bei positiver Verstimmung.

In Teilbild 6.6a ist neben dem Träger die typische Seitenbandstruktur aufgrund der Mikrobewegung erkennbar. Bei Vielfachen der Fallenantriebsfrequenz $\Omega/2\pi=10$ MHz zeigen sich drei Ordnungen von Seitenbänder und eine erhöhte Fluoreszenz jeweils oberhalb davon, bis etwa zum halben Abstand zum nächsthöheren Seitenband. Diese Struktur lässt sich aufgrund von Heizprozessen bei negativer Verstimmung verstehen [23, 99, 145].

Für Laserverstimmungen unterhalb eines Mikrobewegungsseitenbands ist die Kühlung sehr effektiv, da die dominierenden Prozesse, Anregungen aus dem Träger und dem Mikrobewegungsseitenband, Kühlprozesse sind. In diesem Bereich wird das Ion nahe an den Fallengrundzustand gekühlt und die Seitenbänder der Säkularbewegung sind nur schwach angeregt. Daraus ergibt sich zur niederfrequenten Seite eines Mikrobewegungsseitenbands ein schmales, lorentzförmiges Halbprofil, analog zum Träger. In den Bereichen erhöhter Fluoreszenz, jeweils auf der blauen Seite eines Mikrobewegungsseitenbands, ist die Säkularbewegung dagegen stärker angeregt. Die negative Verstimmung gegenüber dem Träger sorgt für Kühlung, während die positive Verstimmung gegenüber dem Mikrobewegungsseitenband Heizprozesse anregt. Jeder gemessene Fluoreszenzpunkt stellt für eine bestimmte Verstimmung den stabilen Zustand aus beiden Teilbeiträgen dar, der bei mittleren Schwingungsenergien von einigen hundert $\hbar\omega$ liegt. In diesem Energiebereich steigt die Fluoreszenz mit zunehmendem $\langle n \rangle$, wodurch die erhöhte Fluoreszenz zu verstehen ist.

Teilbild 6.6b zeigt ein Kühlspektrum bei positiver Laserverstimmung. Um dieses Fluoreszenzsignal zu erhalten, wurde das Ion zuerst unterhalb des Trägers, bei einer Verstimmung von $\delta/2\pi = -3$ MHz in einen stabilen Zustand nahe des Fallengrundzustands gekühlt. Damit sollte gewährleistet sein, dass die Bewegungsenergie des Ions klein genug ist, um anschließend bei positiver Verstimmung innerhalb des ersten stabilen Einfangbereichs der Kühlung zu sein (siehe Abbildung 6.4). Danach wurde die Laserfrequenz mit Hilfe eines AOMs direkt zu +7 MHz geschaltet, unterhalb des ersten positiven Mikrobewegungsseitenbands, und von diesem Punkt aus kontinuierlich zu höheren Frequenzen durchgestimmt. Das Springen über den Bereich einiger MHz direkt oberhalb des Trägers hinweg ist notwendig, da Heizprozesse dort dominieren. Selbst wenn das Ion bei kontinuierlichem Durchstimmen der Laserfrequenz in der Falle verbleibt, ist seine Temperatur dann zu hoch, um in den Einfangereich stabiler Kühlung bei positiver Verstimmung zu gelangen. Das Anregungsspektrum in Abbildung 6.6b zeigt eine schmales, lorentzförmiges Halbprofil, analog dem Träger in Abbildung 6.5, was auf eine effiziente Kühlung zu tiefen Temperaturen schließen lässt. Das Zentrum der Linie liegt allerdings bei einer positiven Laserverstimmung von $\delta/2\pi = +10$ MHz.

Dies stellt den experimentellen Nachweis für Seitenbandkühlung bei positiver Verstimmung dar.

Das gezeigte experimentelle Resultat kann im semiklassischen Modell erklärt werden. Durch die signifikante zusätzliche Mikrobewegung mit Seitenbändern von der Höhe des Trägers überwiegen bei einer Verstimmung von +6 MHz
 $\delta/2\pi < +10$ MHz die Prozesse der Kühlung die der Heizung. Heizprozesse stammen dabei von Anregungen der blauverstimmten Säkularseitenbänder gegenüber dem Träger, Kühlprozesse dagegen von der Anregung rotverstimmter Säkularseitenbänder gegenüber dem Mikrobewegungsseitenband bei +10 MHz. Die Kühlprozesse überwiegen dabei, weil das Mikrobewegungsseitenband erster Ordnung stark genug und die anfängliche Bewegungsenergie des Ions klein genug ist. Eine quantitative Analyse der Bewegungsenergie des Ions abhängig von der Verstimmung liefert Abbildung 6.7. Hier ist für die oben experimentell gewählten Parameter die kinetische Energie des niedrigsten stabilen Zustands in der semiklassischen Simulation für die jeweilige Laserverstimmung aufgetragen.

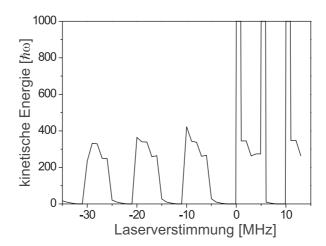


Abbildung 6.7: Numerische Berechnung der mittleren kinetischen Energie als Funktion der Laserverstimmung im semiklassischen Modell. Für jede Verstimmung wurde der energetisch niedrigste erreichbare stabile Zustand gewählt.

Abbildung 6.7 bietet einen Vergleich der Effizienz der Kühlung in verschiedenen Bereichen der Verstimmung. Bei einer positven Verstimmung von +6 MHz< $\delta/2\pi$ <+10 MHz ist eine Kühlung zu ähnlich tiefen Temperaturen wie bei einer negativen Verstimmung von -4 MHz< $\delta/2\pi$ <0 MHz möglich. Unter gegebenen Bedingungen kann Kühlung bei blauer Verstimmung folglich also tatsächlich sehr effizient sein. Die quantenmechanische Rechnung [149] zeigt, dass dabei sogar ähnlich niedrige kinetische Energien wie im Limit der Kühlung bei δ < 0 erreichbar

sind. Die Kurve in Abbildung 6.7 zeigt außerdem Kühlbereiche zu $\langle n \rangle$ im Bereich von einigen hundert $\hbar\omega$: bei negativer Verstimmung liegen diese Bereiche jeweils oberhalb eines Mikrobewegungsseitenbands. Bei positiver Verstimmung liegen sie unterhalb eines Seitenbandes - zwischen 2 Bereichen, in denen, wie bei positiver Verstimmung zu erwarten, die Heizung dominiert und zu einem unbegrenzten Anstieg von $\langle n \rangle$ führt. Die gezeigte Form der Abhängigkeit der kleinstmöglichen Bewegungsenergie von der Laserverstimmung findet sich auch in den Spektren des Kühlübergangs wieder. In Abbildung 6.8 ist eine Simulation der Fluoreszenz des Kühlübergangs dargestellt.

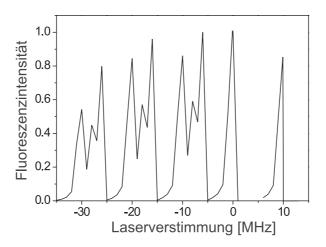


Abbildung 6.8: Numerische Berechnung der Fluoreszenz im semiklassischen Modell. Die Simulation stimmt mit dem experimentellen Spektrum (siehe 6.6a) in seiner Struktur überein.

Die gezeigte Simulation gibt das experimentelle Spektrum in Abbildung 6.6a sehr gut wieder. Die experimentell erhaltene Struktur lässt sich demnach vollständig durch den Einfluss der Mikrobewegung im semiklassischen Modell erklären, auch die Fluoreszenz bei $\delta/2\pi = +10$ MHz, die die Kühlung bei positiver Verstimmung demonstriert.

Zusammengefasst ergibt sich, dass sich unter bestimmten experimentellen Parametern Seitenbandkühlung bei positiver Verstimmung erzielen lässt. Dabei liegen die erreichbaren Endtemperaturen nicht unter denen der üblichen Kühlung bei negativer Verstimmung. Da der Einfangbereich der Kühlung der neuen Methode zusätzlich beschränkt ist, wird sie kaum die traditionelle Kühlung ersetzen. Eine interessante praktische Anwendung der Kühlung bei positiver Verstimmung könnte jedoch in der erhöhten Flexibilität der experimentellen Parameter liegen. Die

vorgestellte Methode nutzt speziell die sonst störende Mikrobewegung in einer Radiofrequenzfalle, die bei der Speicherung mehrerer Ionen und Coulomb-Kristallen eine entscheidenende Rolle spielt und daher bei Experimenten im Hinblick auf die Realisierung eines Quantencomputers auf Basis gespeicherter Ionen [65,66] relevant ist. So wäre es beispielsweise möglich, zwei verschiedene, gespeicherte Isotope mit unterschiedlichen Übergangsfrequenzen mit nur einer Laserfrequenz simultan zu kühlen: Stimmt man den Laser auf die Mittenfrequenz beider Kühlübergänge ab, und ist die Fallenantriebsfrequenz eine Sub-Harmonische der Isotopieverschiebung, so könnte ein Isotop bei negativer Verstimmung und gleichzeitig das zweite bei positiver Verstimmung gekühlt werden.

Kapitel 7

Ausblick

Die nächsten Schritte in Richtung der Realisierung eines optischen Frequenznormals auf der Basis eines einzelnen Indium-Ions sind durch die erreichten Ergebnisse klar vorgezeichnet: Nach der Demonstration der spektroskopischen Beherrschbarkeit des Systems [22] bis zum Limit der dabei eingesetzten Lasersysteme, erlauben die in dieser Arbeit vorgestellten experimentellen Aufbauten nun zukünftig, das Potential an Genauigkeit der Referenzfrequenz weiter auszuschöpfen. Die Fertigstellung des kontinuierlich betreibbaren Kühllasersystems [100], kombiniert mit der neuen Technik der Photoionisation, sollte die Einzelionen-Spektroskopie über praktisch beliebig lange Mittelungszeiten ermöglichen, was eine Grundvorraussetzung für eine Steigerung der Genauigkeit in Bereiche der systematischen Linienverschiebungen von 10⁻¹⁸ darstellt. Parallel zu diesen Arbeiten wurde ein neues Referenzlasersystem entwickelt [33], dessen Referenzresonator auf einer aktiv schwingungsdämpfenden Plattform sitzt. Damit konnte eine Linienbreite von 4 Hz im Infraroten bei Mittelungszeiten von bis zu 26 s erreicht werden. Zukünftig ist mit solchen Lasersystemen eine signifikante Erhöhung der spektroskopischen Auflösung des Referenzübergangs zu erwarten. Die Stabilisierung des Referenzlasers auf die atomare Übergangsfrequenz des gespeicherten Ions mit Hilfe einer aktiven Rückkopplung würde dann den Übergang von der reinen Spektroskopie zum Frequenznormal bedeuten, deren erwartete systematische Ungenauigkeiten dann experimentell bestätigt werden müssen. Dazu ist es unerlässlich, die Referenzfrequenzen zweier unabhängiger In⁺-Systeme gegeneinander zu vergleichen. Im Hinblick darauf wurde bereits begonnen, das Kühllasersystem zu kopieren und ein zweites Referenzlasersystem aufzubauen. Zwei Ionenfallen existieren bereits, wobei der Aufbau einer kleinen, transportablen Falle mit sehr langer Speicherzeit wünschenswert wäre.

Mit einer Erhöhung der spektroskopischen Genauigkeit erlangen Frequenzverglei-

che mit anderen Frequenznormalen Bedeutung im Hinblick auf die Frage der zeitlichen Konstanz der Naturkonstanten. Ein weiterer Vergleich der In⁺-Referenzfrequenz mit der im Nachbarlabor in Garching spektroskopierten $1S \to 2S$ Wasserstofflinie mit Hilfe eines Frequenzkamms bietet sich dazu an, nach einer zeitlichen Variation der Feinstrukturkonstante zu suchen, da sich die Referenzfrequenz von In⁺ mit α ändert, die Wasserstofflinie dagegen nahezu unabhängig von α ist [43].

Die im Indium-Experiment verwendeten Festkörper- und Diodenlaser-Systeme sind bereits weitestgehend transportabel aufgebaut. Damit bestünde mit einer kleinen, kompakten Ionenfalle die Möglichkeit, den gesamten Frequenzstandard transportierbar zu entwerfen. Dies würde einen direkten Vergleich zwischen verschiedenen derzeit untersuchten, hochpräzisen optischen Frequenznormalen ermöglichen, was potentiell einen enormen Gewinn darstellen kann: Als Beleg und Vergleich der erreichbaren Genauigkeiten optischer Frequenznormale einerseits, und andererseits im Hinblick auf die Suche nach einer zeitlichen Veränderung der Feinstrukturkonstante, die in die Referenzfrequenzen der verschiedenen untersuchten Systeme unterschiedlich eingeht [17].

Das im Rahmen dieser Arbeit aufgebaute Lasersystem [100] überzeugt durch seine vielseitige Verwendbarkeit, die in der hohen Leistung im blauen Spektralbereich, der weiten Durchstimmbarkeit und der hohen Frequenzstabilität begründet ist. Die erreichte Frequenzstabilität relativ zum Referenzresonator von unter 100 Hz stellt dabei keineswegs eine Grenze dar, und eine modifizierte Stabilisierungselektronik sollte eine deutlich bessere Anbindung an den Referenzresonator ermöglichen. Im Hinblick auf ein zukünftiges Indium-Frequenznormal sollte daher die Möglichkeit der Nutzung eines solchen Systems auch als Referenzlaser in Betracht gezogen werden, da die dafür notwendige Wellenlänge leicht erzeugt werden kann. In der Weiterführung der Frequenzstabilisierung des Diodenlasersystems und der Entkopplung des Referenzresonators von mechanischen Vibrationen durch eine aktiv schwingungsdämpfende Plattform könnte folglich eine interessante Perspektive liegen.

Für ein Studium der Seitenbandkühlung stellt Indium ein ideales Modellsystem dar: Da effektiv ein Zwei-Niveau-System präpariert wird, definiert ein einzelner, kontinuierlich eingestrahlter Laser die Gleichgewichtstemperatur aus Kühlung und Heizung. Damit bieten sich experimentelle Untersuchungen der theoretischen Kühlgrenzen der Seitenbandkühlung, wie auch der Modifikationen der Seitenbandkühlung durch die Mikrobewegung in der RF-Falle an, exemplarisch durchgeführt an einzelnen In⁺-Ionen. Wie im Falle der Kühlung bei positiver Laserverstimmung [152] könnten sich damit weitere interessante und überraschende Effekte entdecken lassen.

Literaturverzeichnis

- [1] N. Bohr, Nature **92**, 213 (1913).
- [2] W. E. Lamb und R. C. Retherford, Phys. Rev. **72**, 241 (1947).
- [3] M. Niering, R. Holzwarth, J. Reichert, P. Pokassov, T. Udem, M. Weitz, T. W. Hänsch, P. Lemonde, G. Santarelli, M. Abgrall, P. Laurent, C. Salomon, und A. Clairon, Phys. Rev. Lett 84, 5496 (2000).
- [4] A. Bauch und H. R. Telle, Rep. Prog. Phys. 68, 1 (2002).
- [5] A. A. Madej und J. E. Bernard, in *Frequency Measurement and Control*, *Topics in Applied Physics*, *Bd.* 79, Hrsg.: A. Luiten (Springer, Singapore, 2000).
- [6] W. Paul, O. Osberghaus, und E. Fischer, Ein Ionenkäfig, Bd. 415 von Forschungsberichte des Wirtschafts- und Verkehrsministeriums Nordrhein-Westfalen (Westdeutscher Verlag, Köln, 1958).
- [7] D. Wineland und H. Dehmelt, Bull. Am. Phys. Soc. **20**, 637 (1975).
- [8] T. W. Hänsch und A. L. Schawlow, Opt. Commun. 13, 68 (1975).
- [9] R. H. Dicke, Phys. Rev. 89, 472 (1953).
- [10] H. Dehmelt, Bull. Am. Phys. Soc. 18, 1521 (1973).
- [11] H. Dehmelt, Bull. Am. Phys. Soc. **20**, 60 (1975).
- [12] H. Dehmelt, IEEE Trans. Instrum. Meas. **31**, 83 (1982).
- [13] G. Wilpers, T. Binnewies, C. Degenhardt, U. Sterr, J. Helmcke, und F. Riehle, Phys. Rev. Lett. 89, 230801 (2002).
- [14] C. Oates, E. Curtis, und L. Hollberg, Opt. Lett. 25, 1603 (2000).

- [15] H. Katori, M. Takamoto, V. G. Pal'chikov, und V. D. Ovsiannikov, Phys. Rev. Lett. 91, 173005 (2002).
- [16] J.-P. Uzan, Rev. Mod. Phys. **75**, 403 (2003).
- [17] diverse Beiträge, in Astrophysics, Clocks and Fundamental Constants, Hrsg.: S. G. Karshenboim und E. Peik (Springer, Heidelberg, 2004).
- [18] S. Bize, S. A. Diddams, U. Tanaka, C. E. Tanner, W. H. Oskay, R. E. Drullinger, T. E. Parker, T. P. Heavner, S. R. Jefferts, L. Hollberg, W. M. Itano, und J. C. Bergquist, Phys. Rev. Lett. 90, 150802 (2003).
- [19] E. Peik, B. Lipphardt, H. Schnatz, T. Schneider, C. Tamm, und S. G. Karshenboim, eprint physics/0402132 (2004).
- [20] D. J. Wineland und W. M. Itano, Phys. Rev. A **20**, 1521 (1979).
- [21] T. J. Quinn, Metrologia 40, 103 (2003).
- [22] T. Becker, J. von Zanthier, A. Y. Nevsky, C. Schwedes, M. N. Skvortsov, H. Walther, und E. Peik, Phys. Rev. A 63, 051802 (2001).
- [23] E. Peik, J. Abel, T. Becker, J. von Zanthier, und H. Walther, Phys. Rev. A 60, 439 (1999).
- [24] W. M. Itano, J. Res. NIST **105**, 829 (2000).
- [25] P. J. Blythe, S. A. Webster, K. Hosaka, und P. Gill, J. Phys. B: At. Mol. Opt. 36, 981 (2003).
- [26] W. Nagourney, J. Sandberg, und H. Dehmelt, Phys. Rev. Lett. 56, 2797 (1986).
- [27] T. Sauter, W. Neuhauser, R. Blatt, und P. E. Toschek, Phys. Rev. Lett. 57, 1696 (1986).
- [28] J. C. Bergquist, R. G. Hulet, W. M. Itano, und D. J. Wineland, Phys. Rev. Lett. 57, 1699 (1986).
- [29] G. Hollemann, E. Peik, A. Rusch, und H. Walther, Opt. Lett. 20, 1871 (1995).
- [30] R. J. Rafac, B. C. Young, J. A. Beall, W. M. Itano, D. J. Wineland, und J. C. Bergquist, Phys. Rev. Lett. 85, 2462 (2000).

- [31] J. Stenger, C. Tamm, N. Haverkamp, S. Weyers, und H. R. Telle, Opt. Lett. 26, 1589 (2001).
- [32] M. Eichenseer, Aufbau und Charakterisierung eines hochstabilen Nd:YAG Lasers für ein Indium Frequenznormal (Dissertation der Ludwig-Maximilians-Universität, München, 2003).
- [33] A. Y. Nevsky, M. Eichenseer, J. von Zanthier, und H. Walther, Opt. Commun. 210, 91 (2002).
- [34] W. M. Itano, J. C. Bergquist, J. J. Bollinger, J. M. Gilligan, D. J. Heinzen, F. L. Moore, M. G. Raizen, und D. J. Wineland, Phys. Rev. A 47, 3554 (1993).
- [35] T. Becker, M. Eichenseer, A. Y. Nevsky, E. Peik, C. Schwedes, M. N. Skvortsov, J. von Zanthier, und H. Walther, in *The Hydrogen Atom*, Hrsg.: S. G. Kashenboim, F. S. Pavone, G. F. Bassani, M. Inguscio, und T. W. Hänsch (Springer, Berlin, 2001).
- [36] E. Peik, G. Hollemann, und H. Walther, Phys. Rev. A 49, 402 (1994).
- [37] C. Tamm, T. Schneider, und E. Peik, in *Laser Spectroscopy XVI*, Hrsg.: P. Hannaford, A. Sidorov, H. Bachor, und K. Baldwin (World Scientific, Singapore, 2004).
- [38] R. Holzwarth, T. Udem, T. W. Hänsch, J. C. Knight, W. J. Wadsworth, und P. S. J. Russel, Phys. Rev. Lett. 85, 2264 (2000).
- [39] S. A. Diddams, D. J. Jones, J. Ye, S. T. Cundiff, J. L. Hall, J. K. Ranka, R. S. Windeler, R. Holzwarth, T. Udem, und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 84, 5102 (2000).
- [40] J. Reichert, M. Niering, R. Holzwarth, M. Weitz, T. Udem, und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 84, 3232 (2000).
- [41] J. von Zanthier, T. Becker, M. Eichenseer, A. Y. Nevsky, C. Schwedes, E. Peik, H. Walther, R. Holzwarth, J. Reichert, T. Udem, T. W. Hänsch, P. V. Pokassov, M. N. Skvortsov, und S. N. Bagaev, Opt. Lett. 25, 1729 (2000).
- [42] M. Fischer, N. Kolachevsky, M. Z. and R. Holwarth, T. Udem, T. Hänsch, M. Abgrall, J. Grünert, I. Maksimovic, S. Bize, H. Marion, F. P. D. Santos, P. Lemonde, G. Santarelli, P. Laurent, A. Clairon, C. Salomon, M. Haas, U. Jentschura, und C. Keitel, eprint physics/0312086 (2003).

- [43] V. A. Dzuba und V. V. Flambaum, Phys. Rev. A **61**, 034502 (2000).
- [44] D. J. Wineland, W. M. Itano, und R. S. V. Dyck, in Advances in Atomic and Molecular Physics, Hrsg.: D. R. Bates und B. Bederson (Academic, New York, 1983), Bd. 19.
- [45] R. C. Thompson, in *Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics*, Hrsg.: D. R. Bates und B. Bederson (Academic, San Diego, 1993), Bd. 31.
- [46] F. Diedrich und H. Walther, Phys. Rev. Lett. **58**, 203 (1987).
- [47] D. M. Meekhof, C. Monroe, B. E. King, W. M. Itano, und D. J. Wineland, Phys. Rev. Lett. 76, 1796 (1996).
- [48] U. Eichmann, J. C. Bergquist, J. J. Bollinger, J. M. Gilligan, W. M. Itano, D. J. Wineland, und M. G. Raizen, Phys. Rev. Lett. 70, 2359 (1993).
- [49] Q. A. Turchette, C. S. Wood, B. E. King, C. J. Myatt, D. Leibfried, W. M. Itano, C. Monroe, und D. J. Wineland, Phys. Rev. Lett. 81, 3631 (1998).
- [50] C. A. Sackett, D. Kielpinski, B. E. King, C. Langer, V. Meyer, C. J. Myatt, M. Rowe, Q. A. Turchette, W. M. Itano, D. J. Wineland, und C. Monroe, Nature 404, 256 (2000).
- [51] C. J. Myatt, B. E. King, Q. A. Turchette, C. A. Sackett, D. Kielpinski, W. M. Itano, C. Monroe, und D. J. Wineland, Nature 403, 269 (2000).
- [52] C. Monroe, D. M. Meekhof, B. E. King, und D. J. Wineland, Science 272, 1131 (1996).
- [53] M. A. Rowe, D. Kielpinski, V. Meyer, C. A. Sackett, W. M. Itano, C. Monroe, und D. J. Wineland, Nature 409, 791 (2001).
- [54] F. M. Arscott, *Periodic Differential Equations* (Pergamon Press, Oxford, 1964).
- [55] L. D. Landau und E. M. Lifschitz, *Mechanik (Paragraph 30)* (Akademie-Verlag, Berlin, 1976).
- [56] H. Dehmelt, in *Advances in Atomic and Molecular Physics*, Hrsg.: D. R. Bates und I. Estermann (Academic, New York, 1967), Bd. 3 und 5.
- [57] C. Schrama, E. Peik, W. W. Smith, und H. Walther, Opt. Commun. 101, 32 (1993).

- [58] H. Straubel, Die Naturwissenschaften 42, 506 (1955).
- [59] N. Yu, W. Nagourney, und H. Dehmelt, J. Appl. Phys. **69**, 3779 (1991).
- [60] C. Schwedes, Speicherung und Spektroskopie einzelner gespeicherter Indium-Ionen (Diplomarbeit der Technischen Universität Karlsruhe und des Max-Planck-Instituts für Quantenoptik, München, 2000).
- [61] P. Eckle, Photoinisation von Indium und Berechnungen von Fallenpotentialen für ein optisches Frequenznormal (Diplomarbeit der Technischen Universität und des Max-Plank-Instituts für Quantenoptik, München, 2003).
- [62] E. Peik, Laserspektroskopie an gespeicherten Indium-Ionen (Dissertation der Ludwig-Maximilians-Universität und MPQ Bericht Nr. 181 des Max-Planck-Instituts für Quantenoptik, München, 1993).
- [63] J. Abel, Hochauflösende Spektroskopie an einzelnen gespeicherten Indium-Ionen (Dissertation der Ludwig-Maximilians-Universität, Herbert Utz Verlag, München, 1998).
- [64] Q. A. Turchette, D. Kielpinski, B. E. King, D. Leibfried, D. M. Meekhof, C. J. Myatt, M. A. Rowe, C. A. Sackett, C. S. Wood, W. M. Itano, C. Monroe, und D. J. Wineland, Phys. Rev. A 61, 0063418 (2000).
- [65] D. Kielpinski, C. R. Monroe, und D. Wineland, Nature 417, 709 (2002).
- [66] F. Schmidt-Kaler, H. Häffner, M. Riebe, S. Gulde, G. P. T. Lancaster, T. Deuschle, C. Becher, C. F. Roos, J. Eschner, und R. Blatt, Nature 422, 408 (2003).
- [67] F. Diedrich, J. C. Bergquist, W. M. Itano, und D. J. Wineland, Phys. Rev. Lett. 62, 403 (1989).
- [68] C. R. Monroe, D. M. Meekhof, B. E. King, W. M. Itano, und D. J. Wineland, Phys. Rev. Lett. 75, 4714 (1995).
- [69] B. E. King, C. S. Wood, C. J. Myatt, Q. A. Turchette, D. Leibfried, W. M. Itano, C. Monroe, und D. J. Wineland, Phys. Rev. Lett. 81, 1525 (1998).
- [70] C. Roos, T. Zeiger, H. Rhode, H. C. Nägerl, J. Eschner, D. Leibfried, F. Schmidt-Kaler, und R. Blatt, Phys. Rev. Lett. 81, 4713 (1999).
- [71] C. Tamm, D. Engelke, und V. Bühner, Phys. Rev. A 61, 053405 (2000).

- [72] D. J. Wineland, J. J. Bollinger, W. M. Itano, und D. J. Heinzen, Phys. Rev. A 50, 67 (1994).
- [73] D. J. Wineland, C. Monroe, W. M. Itano, D. Leibfried, B. E. King, und D. M. Meekhof, J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. 103, 259 (1998).
- [74] S. K. Lamoreaux, Phys. Rev. A 56, 4970 (1997).
- [75] D. F. V. James, Phys. Rev. Lett. 81, 317 (1998).
- [76] C. Henkel und M. Wilkens, Europhys. Lett. 47, 414 (1999).
- [77] M. E. Poitzsch, J. C. Bergquist, W. M. Itano, und D. J. Wineland, Rev. Sci. Instrum. 67, 129 (1996).
- [78] P. J. Blythe, S. A. Webster, H. S. Margolis, S. N. Lea, G. Huang, S.-K. Choi, W. R. C. Rowley, P. Gill, und R. S. Windeler, Phys. Rev. A 67, 020501(R) (2003).
- [79] N. Kjaergaard, L. Hornkaer, A. M. Thommesen, Z. Videsen, und M. Drewsen, Appl. Phys. B **71**, 207 (2000).
- [80] S. Gulde, D. Rotter, P. Barton, F. Schmidt-Kaler, R. Blatt, und W. Hoger-vorst, Appl. Phys. B 73, 861 (2001).
- [81] M. Keller, *Quantenoptik mit gespeicherten* ⁴⁰Ca⁺-Ionen (Dissertation der Ludwig-Maximilians-Universität, München, 2004).
- [82] A. A. Radzig und B. M. Smirnov, Reference Data on Atoms, Molecules, and Ions (Springer, Berlin, 1985).
- [83] F. Paschen, Ann. Phys. **32**, 148 (1938).
- [84] J. H. M. Neijzen und A. Dönszelmann, Physica C 98, 235 (1980).
- [85] W. R. S. Garton, Proc. Phys. Soc. 67, 864 (1954).
- [86] P. Bicchi, A. Kopystynska, M. Meucci, und L. Moi, Phys. Rev. A 41, 5257 (1990).
- [87] G. K. James, D. Rassi, K. J. Ross, und M. Wilson, J. Phys. B: At. Mol. Phys. 15, 275 (1982).
- [88] M. A. Baig, I. Ahmed, und J. P. Connerade, J. Phys. B: At. Mol. Phys. 21, 35 (1988).

- [89] J. H. M. Neijzen und A. Dönszelmann, Physica C 106, 271 (1981).
- [90] J. H. M. Neijzen und A. Dönszelmann, Physica C 111, 127 (1981).
- [91] M. Y. Mirza und W. W. Duley, Proc. R. Soc. Lond. A 364, 255 (1978).
- [92] V. S. Letokhov, *Laser Photoionization Spectroscopy* (Academic Press, London, 1987).
- [93] L. Hildebrandt, R. Knispel, S. Stry, J. Sacher, und F. Schael, Appl. Opt. 42, 2110 (2003).
- [94] P. Hannaford, Contemp. Phys. **24**, 251 (1983).
- [95] T. Lubowieka, T. Dohnalik, und L. Frasinski, Acta Phys. Pol. A 54, 369 (1978).
- [96] H. Leinen, D. Gläßner, H. Metcalf, R. Wynands, D. Haubrich, und D. Meschede, Appl. Phys. B **70**, 567 (2000).
- [97] U. Fano, Phys. Rev. **124**, 1866 (1961).
- [98] L. Armstrong, B. L. Beers, und S. Feneuille, Phys. Rev. A 12, 1903 (1975).
- [99] T. Becker, *Hochauflösende Spektroskopie gespeicherter Indium Ionen* (Dissertation der Ludwig-Maximilians-Universität und MPQ Bericht Nr. 276 des Max-Planck-Instituts für Quantenoptik, München, 2002).
- [100] C. Schwedes, E. Peik, J. von Zanthier, A. Y. Nevsky, und H. Walther, Appl. Phys. B 76, 143 (2003).
- [101] C. Wieman und L. Hollberg, Rev. Sci. Instrum. 62, 1 (1991).
- [102] C. Zimmermann, V. Vuletic, A. Hemmerich, und T. W. Hänsch, Appl. Phys. Lett. 66, 2318 (1995).
- [103] G. Ferrari, M. Mewes, F. Schreck, und C. Salomon, Opt. Lett. 24, 151 (1999).
- [104] C. Wilson, J. C. Sharp, C. R. McKenzie, P. J. Manson, und D. M. Warrington, Appl. Opt. 37, 4871 (1998).
- [105] V. Pruneri, R. Koch, P. G. Kazansky, W. A. Clarkson, P. S. J. Russell, und D. C. Hanna, Opt. Lett. 20, 2375 (1995).
- [106] K. Mizuuchi und Y. Yamamoto, Appl. Phys. Lett. 66, 2943 (1995).

- [107] J. P. Meyn und M. M. Fejer, Opt. Lett. **22**, 1214 (1997).
- [108] A. Arie, G. Rosenman, V. Mahal, A. Skliar, M. Oron, M. Katz, und D. Eger, Opt. Commun. 142, 265 (1997).
- [109] V. Pasiskevicius, S. Wang, J. A. Tellefsen, F. Laurell, und H. Karlsson, Opt. Lett. 37, 7116 (1998).
- [110] M. Osinski und J. Buus, IEEE J. Quantum Electron. 21, 1905 (1987).
- [111] L. Ricci, T. Weidemüller, T. Esslinger, A. Hemmerich, C. Zimmermann, V. Vuletic, W. König, und T. W. Hänsch, Opt. Commun. **117**, 541 (1995).
- [112] S. Saito, O. Nilsson, und Y. Yamamoto, Appl. Phys. Lett. 46, 3 (1985).
- [113] H. Li und H. R. Telle, IEEE J. Quantum Electron. 25, 257 (1989).
- [114] R. Lang und K. Kobayashi, IEEE J. Quantum Electron. 16, 347 (1980).
- [115] B. Dahmani, L. Hollberg, und R. Drullinger, Opt. Lett. 12, 876 (1987).
- [116] O. Nilsson, S. Saito, und Y. Yamamoto, Electron. Lett. 17, 589 (1981).
- [117] R. F. Kazarinov und C. H. Henry, IEEE J. Quantum Electron. 23, 1401 (1987).
- [118] A. E. Siegman, Lasers (University Science Books, Mill Valley, CA, 1986).
- [119] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, und H. Ward, Appl. Phys. B 31, 97 (1983).
- [120] A. Schenzle, R. J. DeVoe, und R. G. Brewer, Phys. Rev. A 25, 2606 (1982).
- [121] A. Schoof, J. Grünert, S. Ritter, und A. Hemmerich, Opt. Lett. 26, 1562 (2001).
- [122] H. Stoehr, U. Sterr, G. Wilpers, F. Mensing, und J. Helmcke, Verh. DPG (VI) 37, 2/142 (2002).
- [123] C. Tamm, T. Schneider, und E. Peik, in *Proceeding of the 6th Symposium for Frequency Standards and Metrology*, Hrsg.: P. Gill (World Scientific, Singapore, 2001).
- [124] R. Knappe, K. J. Boller, und R. Wallenstein, Opt. Lett. 20, 1988 (1995).

- [125] L. Goldberg, D. Mehuys, M. R. Surette, und D. C. Hall, IEEE J. Quantum Electron. QE-29, 2028 (1993).
- [126] J. N. Walpole, Opt. Quant. Electron. 28, 623 (1996).
- [127] D. Woll, B. Beier, K. J. Boller, R. Wallenstein, M. Hagberg, und S. O'Brien, Opt. Lett. 24, 691 (1999).
- [128] M. Mikulla, in *High Power Diode Lasers*, Bd. 78 von *Topics in Applied Physics*, Hrsg.: R. Diehl (Springer, Heidelberg, 2000).
- [129] D. Voigt, E. C. Schilder, R. J. C. Spreeuw, und H. B. van Linden van den Heuvell, Appl. Phys. B 72, 279 (2001).
- [130] A. Yariv, Quantum Electronics (Wiley, New York, 1967).
- [131] G. D. Boyd und D. A. Kleinman, J. Appl. Phys. **39**, 3597 (1968).
- [132] M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, und R. L. Byer, IEEE J. Quantum Electron. **QE-28**, 2631 (1992).
- [133] S. Bjurshagen, D. Evekull, und R. Koch, Appl. Phys. B 76, 135 (2003).
- [134] H. Kogelnik und T. Li, Appl. Opt. 5, 1550 (1966).
- [135] N. Hodgson und H. Weber, Optische Resonatoren (Springer, Berlin, 1992).
- [136] T. W. Hänsch und B. Couillaud, Opt. Commun. 35, 441 (1980).
- [137] J. Cariou und P. Luc, Atlas du Spectre d'Absorption de la Molecule de Tellure (Lab. Aime-Cotton CNRS, ADDRESS, 1980).
- [138] F. Diedrich, E. Peik, J. M. Chen, W. Quint, und H. Walther, Phys. Rev. Lett. 59, 2931 (1987).
- [139] J. Javanainen, M. Lindberg, und S. Stenholm, J. Opt. Soc. Am. B 1, 111 (1984).
- [140] M. Lindberg und S. Stenholm, J. Phys. B 17, 3375 (1985).
- [141] S. Stenholm, Rev. Mod. Phys. **58**, 699 (1986).
- [142] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. Toschek, und H. Dehmelt, Phys. Rev. Lett. 41, 233 (1978).

- [143] H. Perrin, A. Kuhn, I. Bouchoule, und C. Salomon, Europhys. Lett. **42**, 395 (1998).
- [144] S. E. Hamann, D. L. Haycock, G. Klose, P. H. Pax, I. H. Deutsch, und P. S. Jessen, Phys. Rev. Lett. 80, 4149 (1998).
- [145] E. Peik, Kalte Atome in Fallen: Quantenoszillatoren und optische Uhren (Habilitationsschrift der Ludwig-Maximilians-Universität, München, 1999).
- [146] W. Hanle, Z. Phys. **30**, 93 (1924).
- [147] D. J. Wineland, J. C. Bergquist, W. M. Itano, J. J. Bollinger, und C. H. Manney, Phys. Rev. Lett. 59, 2935 (1987).
- [148] R. Blümel, E. Peik, W. Quint, und H. Walther, in *Quantum Optics V*, Bd. 41 von *Springer Proceedings in Physics*, Hrsg.: J. D. Harvey und D. F. Walls (Springer, Berlin, 1989), .
- [149] J. I. Cirac, L. J. Garay, R. Blatt, A. S. Parkins, und P. Zoller, Phys. Rev. A 49, 421 (1994).
- [150] R. G. DeVoe, J. Hoffnagle, und R. G. Brewer, Phys. Rev. A 39, 4362 (1989).
- [151] R. Blümel, C. Kappler, W. Quint, und H. Walther, Phys. Rev. A 40, 808 (1989).
- [152] C. Schwedes, T. Becker, J. von Zanthier, H. Walther, und E. Peik, Phys. Rev. A 69, 053412 (2004).

Zusammenfassung

Die Spektroskopie eines verbotenen optischen Übergangs eines einzelnen Ions verspricht ein optisches Frequenznormal mit einer Genauigkeit im Bereich von 10^{-18} zu ermöglichen. Die Vorraussetzungen dafür sind neben außergewöhnlich geringen systematischen Frequenzverschiebungen des Referenzübergangs ein hohes Maß an Kontrolle der Bewegung des Ions, realisiert durch die Speicherung und Laserkühlung in einer Quadrupolfalle und die daraus resultierende, praktisch unbegrenzte Beobachtungszeit.

Diese Arbeit beschreibt Experimente im Hinblick auf die Realisierung eines der aussichtsreichsten Kandidaten für ein optisches Frequenznormal, einem gespeicherten Indium-Ion. Zunächst wird in Kapitel 2 das Konzept einer Indium-Uhr, der bisher experimentell erreichte Stand der Spektroskopie, mit einer relativen Auflösung von $1, 3 \cdot 10^{-13}$, und eine Abschätzung der limitierenden Verschiebungen des $^1S_0 \rightarrow {}^3P_0$ Referenzübergangs dargestellt. Kapitel 3 führt danach in das Prinzip der Speicherung und die konkrete Umsetzung im In⁺-Experiment ein, behandelt dabei auftretende Probleme und liefert mögliche Lösungen.

In Kapitel 4 wird die neu implementierte Methode der Photoionisation der Indium-Atome vorgestellt, die mit nur einem Laser bei 410 nm über eine Zweiphotonen-Anregung zur Ionisierung führt. Gegenüber der bislang verwendeten Elektronenstoßmethode konnte damit die Ionisierungseffizienz um zwei Größenordnungen gesteigert, und so Probleme, die einen kontinuierlichen Betrieb des Frequenznormals behindern, vermieden werden.

Im Hinblick auf eine Erhöhung der Mittelungszeit wurde ein kontinuierlich betreibbares Kühllasersystem aufgebaut, das in Kapitel 5 beschrieben wird. Ein gitterstabilisierter Diodenlaser bei 922 nm wird zunächst in seiner Frequenz auf unter 100 Hz relativ zu einem Referenzresonator stabilisiert. Nach dem Durchgang durch einen frequenztreuen Trapezverstärker werden in einer ersten Frequenzverdopplung mit Hilfe eines periodisch gepoltem KTP-Kristalls mehr als 200 mW blaues Licht bei 461 nm erzeugt. Eine zweite Frequenzverdopplung mit BBO führt nachfolgend zu etwa 1 mW bei 231 nm, der Wellenlänge des $^1S_0 \rightarrow ^3P_1$ Kühlübergangs von In⁺. Neben der demonstrierten Nutzung im Indium-Experiment bietet sich dieses System durch seine große Leistung im blauen Spektralbereich, die weite Durchstimmbarkeit und die hohe Frequenzstabilität für viele Anwendungen in der Atomphysik und Quantenoptik an.

Kapitel 6 beschreibt Ergebnisse der Seitenbandkühlung, für deren Umsetzung Indium ein einzigartiges Modellsystem darstellt. Anhand einer spektroskopischen

Temperaturbestimmung in optisch-optischer Doppelresonanz wird die praktisch erreichte Grundzustandskühlung bestätigt. Es ergibt sich eine Temperatur unterhalb von 300 μ K, entsprechend einer Amplitude der Säkularbewegung von unter $\lambda/10$. Durch die zusätzliche Kontrolle der Mikrobewegung unter $\lambda/20$ sind damit insgesamt relative Frequenzverschiebungen des Referenzübergangs aufgrund einer Bewegung des Ions im Bereich von 10^{-18} zu erwarten. Die Mikrobewegung besitzt einen starken Einfluss auf die Kühldynamik, der in einem erweiterten Modell der Seitenbandkühlung semiklassisch beschrieben wird. Es ergibt sich, dass eine Kühlung für Laserfrequenzen auch oberhalb der Resonanzfrequenz des ruhenden Ions möglich ist. Kühlrate und Einfangbereich dieser Kühlung werden simuliert. Die präzise Kontrolle der zusätzlichen Mikrobewegung erlaubt eine Prüfung der Vorhersagen im Experiment. Durch Spektroskopie am Kühlübergang konnte Kühlung bei positiver Laserverstimmung experimentell demonstriert werden.

Veröffentlichungen

1. Laser sideband-cooling with positive detuning

Ch. Schwedes, Th. Becker, J. von Zanthier, H. Walther, and E. Peik, Physical Review A **69**, 053412 (2004).

2. Narrow-bandwidth diode-laser-based blue and ultraviolet light source

Ch. Schwedes, E. Peik, J. von Zanthier, A. Yu. Nevsky, and H. Walther Applied Physics B **76**, 143 (2003).

3. Towards an Indium single-ion optical frequency standard

M. Eichenseer, A. Yu. Nevsky, Ch. Schwedes, J. von Zanthier, and H. Walther

Journal of Physics B: Atoms, Molecules and Optics 36, 553 (2003).

4. High-resolution spectroscopy of a single In⁺-ion: Progress towards an optical frequency standard

Th. Becker, J. von Zanthier, A. Yu. Nevsky, Ch. Schwedes, M.N. Skvortsov, H. Walther and E. Peik

Physical Review A **63**, 051802(R) (2001).

5. Absolute frequency measurement of the In⁺ clock transition with a mode-locked laser

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 and S.N. Bagayev Laser Physics **11**, 1117 (2001).

6. Absolute frequency measurement of the In⁺ clock transition with a mode-locked laser

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 and S.N. Bagayev Optics Letters **25**, 1729 (2000).

Lebenslauf

Name: Christian Schwedes Geboren: 31.12.1974 in Bruchsal

Familienstand: ledig

1981-1985 Grundschule Helmsheim

1985-1994 Melanchthon-Gymnasium Bretten

Juni 1994 Abitur

1994-1999 Studium der Physik an der Universität Karlsruhe

1999-2000 Diplomarbeit am Max-Planck-Institut für Quanten-

optik, München

Januar 2000 Diplom in Physik

seit April 2000 Doktorarbeit am Max-Planck-Institut für Quanten-

optik, München

Danksagung

Mein erster Dank geht an Prof. H. Walther für die Möglichkeit, an einem begeisternden Experiment mitwirken zu können. Sein mir entgegengebrachtes Vertrauen und sein experimentelles Gespür ermöglichten eine fruchtbare Arbeit in einer stimulierenden Umgebung.

Ein ganz besonderer Dank an meinen Mentor Ekkehard Peik, von dem ich über Indium, aber auch über Physik und wissenschaftliches Arbeiten allgemein sehr viel lernen konnte, und dessen Rat mir immer wichtig und willkommen war.

Ganz herzlichen Dank an Alexander Nevsky. Es war immer eine Freude mit ihm zusammen zu arbeiten und von ihm zu lernen. Sein direktes, konkretes Umsetzen von Ideen war mitreissend und begeisternd.

Vielen Dank an Joachim von Zanthier für die vielen fruchtbaren Diskussionen bei der Betreunug der Arbeit, die immer wieder Neues zu Tage brachten.

Herzlichen Dank auch an Petrissa Eckle für ein angenehmes und abwechslungsreiches Jahr im Labor.

Den weiteren derzeitigen oder ehemaligen Mitarbeitern der Indium-Gruppe, Thomas Becker, Mario Eichenseer, Tobias Schneider und Erika Prime danke ich für das motivierende Arbeitsklima beim Indium und den Spaß beim Experimentieren.

Wolfgang Lange und seinem Ionenspeicherteam mit Matthias Keller, Birgit Lange und Steffen Köhler danke ich für die stete Hilfsbereitsschaft und die offene, kollegiale Zusammenarbeit.

Danke an Wolfgang Krieger für die erheiternden und angenehmen Mittagspausen - ein Dank auch an Jiannis Pachos und Almut Beige für die mittäglichen Diskussionen über wirklich unterschiedlichste Themen.

Herrn Strobel und den Mitarbeitern der Werkstatt bin ich sehr dankbar für viele mechanischer Teile, die sie stets mit höchster Präzision und immer in kürzester Zeit anfertigten.

Herrn Horn und Herrn Brückner danke ich für ihre vielfältige Hilfe bei elektronischen Arbeiten. Herrn Schönauer danke ich für das Anfertigen professioneller technischer Zeichnungen und sein know-how bei mechanischen Problemen.

Allen Mitarbeitern der Gruppe Walther und Hänsch danke ich für die ausserordentlich stimulierende und motivierende Atmosphäre, die sie am Max-Planck-Institut für Quantenoptik geschaffen haben.