# Uhrenvergleich auf der Femtosekundenskala

Der Vergleich von optischen Frequenzen und Radiofrequenzen ermöglicht hochpräzise Zeitmessung. Femtosekunden-Laser haben das Verfahren revolutioniert.

Thomas Udem, Ronald Holzwarth und Theodor W. Hänsch

Das Zählen eines periodischen Vorgangs ist die Aufgabe eines jeden Uhrwerks. Für die Genauigkeit einer Uhr ist die Frequenz des periodischen Vorgangs entscheidend: Je höher diese ist, desto genauer kann die Uhr sein, desto schneller muss aber auch das Zählwerk sein. Die mechanischen Zählwerke der Vergangenheit wurden im letzten Jahrhundert zunächst durch elektronische Zähler und dann durch sehr viel schnellere optische Zähler ersetzt, die es erlauben, mehr als 10<sup>15</sup> Schwingungen pro Sekunde zu verfolgen. Der Bau einer optischen Uhr ist jedoch bisher durch die Komplexität dieser Zähler verhindert worden. Wir beschreiben hier eine neue, wesentlich einfachere und kompaktere Methode. Mit einem optischen Zähler lassen sich auch Übergangsfrequenzen in Atomen und Molekülen sehr genau messen. Die neue Methode erlaubt es daher auch kleineren Labors, hochpräzise spektroskopische Untersuchungen durchzuführen.

etrachtet man die erreichbare Messgenauigkeit verschiedener physikalischer Größen, so stellt 🖊 man fest, dass sich Zeitspannen und Frequenzen derzeit am genauesten bestimmen lassen. Für andere physikalische Größen wie etwa Länge, Masse oder Ladung verfügen wir nur über sehr viel ungenauere Messgeräte. Eine Frequenz ist die Anzahl der Zyklen einer periodisch veränderlichen Größe pro Zeiteinheit, und ihre Messung besteht demnach aus einem Zählvorgang und einer Zeitmessung. Wenn man sich nicht verzählt, dann ist eine Frequenzmessung also im Prinzip so genau, wie sich die Zeitspanne, während der die Oszillationen gezählt werden, bestimmen lässt. Damit ist eine Frequenzmessung einer Zeitmessung völlig äquivalent. Um das große Potenzial der Zeit- bzw. Frequenzmessung zu nutzen, versucht man, auch andere physikalische Größen auf eine Zeit oder Frequenz zurückzuführen. Das einfachste Beispiel einer solchen Rückführung ist die Neudefinition des Meters über die Lichtgeschwindigkeit im Jahre 1983.<sup>1)</sup> Damals wurde der Wert der Vakuumlichtgeschwindigkeit c<sub>0</sub> per Definition festgelegt und damit die Bestimmung der Wellenlänge  $\lambda$  einer elektromagnetischen Welle auf eine Messung der Frequenz  $\omega$  zurückgeführt. Durch diesen Kunstgriff lässt sich die Länge  $\lambda = 2\pi c_0/\omega$  aus der Frequenz  $\omega$  ableiten, ohne dass bei dieser Umrechnung die





Auf einen Quadratmeter passt das "Uhrwerk" zur präzisen Bestimmung optischer Frequenzen von einigen 10<sup>14</sup> Hz. Ein Titan-Saphir-Femtosekundenlaser (links, Gehäuse oben offen) erzeugt dazu einen "Frequenzkamm". Dessen rote Flanke wird ins Blaue verdoppelt und dann mit der blauen Seite des Kamms auf einer Photodiode (silberne Kiste vorne links) zur Überlagerung gebracht. Aus dem Schwebungssignal lässt sich die genaue Position jedes Peaks des Frequenzkamms berechnen. Auf diese Weise entsteht ein absolut geeichtes "Lineal" im Frequenzraum.

Unsicherheit der Lichtgeschwindigkeit zu Buche schlagen würde. Dies war schon lange vor der Neudefinition bekannt. Um jedoch eine hohe Genauigkeit zu erreichen, muss eine möglichst kurze Wellenlänge, zum Beispiel die von sichtbarem Licht, verwendet werden, damit sich eine feine Einteilung des Meters ergibt. Realisiert wird solch ein Meterstab dann mithilfe eines Interferometers. Das Meter wurde daher erst neu definiert, als es technisch möglich war, die sehr hohen Frequenzen von Licht (einige hundert Terahertz; 1 THz =  $10^{12}$  Hz) zu zählen. Über die Entwicklung und den Stand der Technik dieser ultraschnellen Zähler berichten wir in diesem Artikel.

Die optischen Zähler lassen sich außerdem für die hochauflösende Spektroskopie einsetzen. Zum Überprüfen der Quantenelektrodynamik wurden hochpräzise Messungen von Übergangsfrequenzen im atomaren Wasserstoff durchgeführt [1]. Die nächste wichtige Anwendung wird sehr wahrscheinlich die Realisierung von optischen Uhren sein. Jede Uhr beruht auf einem periodischen Vorgang, der möglichst gleichmäßig abläuft, und einem Zähler. Die jetzige Definition der SI-Sekunde beruht auf der Cäsiumuhr, bei der die Perioden bei der Präzession des Valenzelektronenspins um den Kernspin gezählt werden. Der Sekundenzeiger ei1) Die Ausnutzung des Josephson-Effekts zur Realisierung von Spannungsnormalen ist ein weiteres Beispiel.

Dr. Thomas Udem, Dr. Ronald Holzwarth, Prof. Dr. Theodor W. Hänsch, Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Straße 1, 85748 Garching www.mpq.mpg.de/ ~haensch/chain/ chain.html

Physik Journal 1 (2002) Nr. 2 1617-9439/02/0202-39 \$17.50+50/0 © WILEY-VCH Verlag GmbH, D-69451 Weinheim, 2002 ner solchen Uhr wird jeweils nach 9 192 631 770 Perioden um eine Einheit vorgestellt. Vergleicht man die verschiedenen Uhrentypen wie etwa Sonnenuhren, Pendeluhren, Quarzuhren und Cäsiumuhren, so fällt auf, dass diese umso genauer gehen, je schneller der zugrunde liegende periodische Vorgang ist. Lässt man systematische Effekte außer Acht, so ist genau dieses Verhalten anschaulich zu erwarten, weil die häufigeren Zeitmarken eine feinere Einteilung des Zeitintervalls erlaubt. Seit den fünfziger Jahren ist man mit der Uhrenfrequenz bei den eben genannten 9,19263177 GHz angelangt, und es wird diskutiert, wie sich die Uhrenfrequenz weiter, zum Beispiel bis zu optischen Frequenzen, steigern lässt. Als "Pendel" für solche Uhren kommen einzelne gespeicherte Ionen in Betracht, die für diesen Zweck 1982 von H. Dehmelt vorgeschlagen wurden. Das Uhrwerk einer solchen Uhr stellte bisher jedoch die größte Herausforderung dar, weil es in der Lage sein muss, diese optischen Schwingungen zu zählen. Für die praktische Realisierbarkeit einer solchen Uhr wird ein kompakter und verlässlich arbeiten-



## Abb. 2:

Die harmonische Frequenzkette, die 1997 zur Messung der 1s-2s-Übergangsfrequenz in atomarem Wasserstoff eingesetzt wurde, füllte zwei große Labors, eines bei der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt in Braunschweig (links) und eines am Max-Planck Institut für Quantenoptik in Garching (rechts) [4, 5]. Das Ausgangssignal bei 9,19263177 GHz einer Cäsium-Atomuhr wird in mehreren Schritten bis zur Wasserstoffresonanz bei 2466,061412 THz multipliziert. Der Aufwand für jeden Schritt entspricht einer Doktorarbeit. Die Frequenzmischer sind mit & symbolisiert. Als Verbindungsstück diente ein Methanstabilisierter Helium-Neon-Laser bei 88,376 THz, der zwischen Braunschweig und Garching transportiert wurde. Die Frequenzlücke von  $\Delta f = 1058,684$  GHz  $\approx 1$  THz auf der rechten Seite wurde mit vier optischen Intervallteilerstufen, bestehend aus sechs weiteren Lasern, in eine Radiofrequenz konvertiert und gezählt. Die gesamte Frequenzkette kann heute durch den Aufbau in Abb. 1 ersetzt werden.

der Zähler und Synthesizer<sup>2)</sup> für optische Frequenzen gebraucht wie er in diesem Artikel beschrieben wird. Die Darstellung der Zeit, wie sie von den Standardinstituten durchgeführt wird, beruht auf Uhren, die auch nach Jahren des kontinuierlichen Betriebs bis auf Bruchteile einer Mikrosekunde synchronisiert bleiben. Für die neuartigen optischen Uhren werden relative Unsicherheiten bis herab zu etwa 10<sup>-18</sup> abgeschätzt. Das ist etwa 1000-mal genauer als die besten bisherigen Cäsiumuhren und entspricht auf der Erdoberfläche einer Gravitationsrotverschiebung zwischen zwei Uhren, die sich in ihrem Abstand zum Erdmittelpunkt um nur einen Zentimeter unterscheiden. Mit einer derartigen Präzision könnten neue, hochgenaue Tests der Quantenelektrodynamik oder der Relativitätstheorie durchgeführt werden. Außerdem würden solche Uhren eine empfindlichere Suche nach einer eventuellen zeitlichen Veränderung von Naturkonstanten erlauben, wie sie von einigen Theoretikern diskutiert wird.

# Der traditionelle Weg

Die ersten Experimente, bei denen Schwebungssignale zwischen verschiedenen fern-infraroten Lasern und den Harmonischen von Mikrowellen beobachtet wurden, sind bereits Ende der sechziger Jahre von A. Javan und Mitarbeitern durchgeführt worden [2]. Abbildung 2 zeigt ein Beispiel einer solchen harmonischen Frequenzkette. Weil die Kette der Oszillatoren das gesamte elektromagnetische Spektrum von 100 MHz bis zum Ultravioletten überstreicht, wird in jedem Schritt eine grundsätzlich andere Technologie bezüglich der verwendeten Oszillatoren und der nichtlinearen Bauteile benötigt. Der Aufwand für jeden Schritt entspricht im Wesentlichen einer Doktorarbeit. Idealerweise wird jeder Oszillator (außer der Erste, die Atomuhr) auf eine harmonische Frequenz seines Vorgängers in der Phase stabilisiert. Dies geschieht mit einem Phasenregelkreis, der die relative Phase der Oszillatoren regelt.<sup>3)</sup> Außer der Komplexität hatten diese harmonischen Frequenzketten den großen Nachteil, dass man sie nur für eine einzige optische Frequenz verwenden konnte. Dies wäre zwar für eine Uhr keine starke Einschränkung, schon aber, wenn in einem Forschungslabor verschiedene optische Übergangsfrequenzen genau vermessen werden sollen.

Als K. M. Evenson und Mitarbeiter 1973 den ersten schnellen Zähler für optische Frequenzen in Form einer harmonischen Frequenzkette gebaut hatten [3], war dies sicher eines der schwierigsten optischen Experimente jener Zeit. Solche Ketten füllten mehrere Labors und funktionierten nur sporadisch, und dann auch nur für wenige Minuten oder Sekunden störungsfrei. Somit waren diese Zähler völlig ungeeignet für eine hochgenaue Uhr, die man über einen längeren Zeitraum kontinuierlich betreiben muss. Die Hauptanwendung bestand darin, eine möglichst gut reproduzierbare optische Referenzfrequenz zu kalibrieren, um sie anderen Labors zugänglich zu machen. Die optischen Referenzfrequenzen waren dann immerhin genau genug, die erwähnte Neudefinition des Meters zu rechtfertigen.

Unglücklicherweise änderte sich an dieser Technologie bis Ende der neunziger Jahre kaum etwas, sodass nur wenige Labore weltweit es sich leisten konnten, eine harmonische Frequenzkette zu unterhalten. Diese arbeiteten mit in Reihe geschalteten Frequenzvervielfachern, welche die aus einer Atomuhr abgeleitete

technik ist ein Synthesizer ein Gerät, dass Frequenzen phasengerecht ineinander konvertiert, also zum Beispiel aus der erwähnten Cäsium-Hyperfeinaufspaltung von 9,192... GHz genau 10 MHz erzeugt oder umgekehrt. Ein optischer Synthesizer kann demnach optische Frequenzen ineinander oder in eine Radiofrequenz konvertieren.

2) In der Radiofrequenz

3) vgl. Phys. Bl., November 1998, S. 1007 Radiofrequenz in eine optische Frequenz konvertiert. Dank der phasenstarren Verbindung zwischen den beiden Frequenzdomänen reicht es, die langsamere der beiden (die Radiofrequenz) genau zu zählen, um die schnellere optische Frequenz abzuleiten. Die Grundlage der Frequenzvervielfachung bilden dabei verschiedene nichtlineare Effekte, die Oberschwingungen zu einer harmonischen Schwingung hinzufügen. Weil die Nichtlinearitäten, insbesondere für höhere Frequenzen, schwach sind, wird nach jedem Verdopplungsschritt ein Verstärker (sog. Transferoszillator) benötigt, um genügend Leistung für die nächste Stufe zur Verfügung zu stellen.

## Neue Ansätze

Ende der achtziger Jahre kam die Idee für eine konzeptionell ganz anders geartete Frequenzkette auf [6]. Diese beruht auf der Messung großer Frequenzlücken. Die Messung einer absoluten optischen Frequenz  $\omega$ wird dabei durch das Messen einer Frequenzdifferenz ersetzt. Man stelle sich vor, statt  $\omega$  den Abstand zwischen dieser Frequenz und seiner eigenen Harmonischen  $2\omega$  zu messen. Wegen  $2\omega - \omega = \omega$  ist die Größe dieser Lücke identisch mit der zu messenden Frequenz. Die technische Herausforderung ist damit erst einmal nur verlagert, nicht aber reduziert, es sei denn, es gibt bessere Techniken zur Messung von großen Frequenzlücken. Ein kleiner Frequenzabstand zwischen zwei Lasern lässt sich relativ einfach vermessen, indem die beiden Strahlen auf einer Photodiode überlagert werden. Man registriert auf diese Weise ein Schwebungssignal, das mit einem Radiofrequenzzähler ausgewertet werden kann. Dieses Verfahren ist aber ungeeignet, um Frequenzlücken von einigen 100 THz zu messen, weil die schnellsten Radiofrequenzzähler nur etwa 100 GHz bewältigen. Um diese trotzdem messbar zu machen, wurden so genannte Intervallteilerstufen vorgeschlagen.<sup>3)</sup> Bei einer optischen Intervallteilerstufe wird die Summenfrequenz der beiden Eingangslaser bei der Frequenz  $\omega_1 + \omega_2$  in einem nichtlinearen Kristall erzeugt. Die zweite Harmonische eines dritten Lasers  $2\omega_3$  wird auf die Summenfrequenz phasenstabilisiert, sodass auch die Frequenzen identisch sind, also  $2\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ oder  $\omega_3 = (\omega_1 + \omega_2)/2$  gilt. Damit oszilliert der dritte Laser ( $\omega_3$ ) genau in der Mitte des Frequenzintervalls, das von den ersten beiden Lasern aufgespannt wird ( $\omega_1$ und  $\omega_2$ ) und teilt somit dieses Intervall in zwei gleiche Teile. Eine Kette von n solcher Intervallteilerstufen reduziert die ursprüngliche Frequenzlücke um einen Faktor 2<sup>n</sup>, sodass zwölf Intervallteilerstufen ausreichen würden, um eine Frequenzlücke von beispielsweise 300 THz ( $\lambda = 1 \mu m$ ) auf messbare 73 GHz herunterzuteilen. Nun ist eine Kette von zwölf Intervallteilern auf den ersten Blick nicht weniger komplex als eine harmonische Frequenzkette mit zum Beispiel zwölf Frequenzverdoppelungen. Hierbei ist jedoch zu bedenken, dass bei den Intervallteilern alle Laserfrequenzen innerhalb einer optischen Oktave liegen, sodass im Wesentlichen dieselbe Technik für alle Teilerstufen zum Einsatz kommen kann (zum Beispiel ausschließlich Diodenlaser).

#### Frequenzkämme

Eine wichtige Rolle beim Messen von immer größeren Frequenzintervallen spielen optische Frequenzkämme [7, 8]. Wie Abb. 3 zeigt, besteht ein Frequenzkamm aus einer Vielzahl von Moden, die einen konstanten Abstand zueinander haben. Mit diesem Kamm lassen sich große Frequenzlücken wie mit einem Lineal im Frequenzraum messen, indem man Schwebungssignale zwischen zwei Dauerstrich-Lasern<sup>4)</sup>, die die Lücke aufspannen, und der jeweils nächsten Mode des Frequenzkamms erzeugt. Die Frequenzlücke ergibt sich aus der Summe der beiden Schwebungsfrequenzen und einem ganzzahligen Vielfachen des Modenabstands. Kennt man die Frequenzen der beiden Dauerstrich-Laser besser als einen Modenabstand, zum Beispiel durch die grobe Messung mit einem Wellenlängenmeter, dann lässt sich die Anzahl der Moden in der Frequenzlücke eindeutig bestimmen.

In den neunziger Jahren wurden die größten Frequenzintervalle von einigen THz mit sehr schnellen und effizienten elektro-optische Modulatoren überbrückt.<sup>3)</sup> Durch Phasenmodulation werden dabei einem Dauerstrich-Laser Frequenzseitenbänder im Abstand





von Vielfachen der verwendeten Modulationsfrequenz aufgeprägt. Mit einem solchen Frequenzkammgenerator reduzierte sich die Anzahl der notwendigen Teilerstufen schon auf etwa vier oder fünf. In einigen Labors wurde daraufhin die Arbeiten an verschiedenen Varianten von Teilerstufenketten begonnen [9, 10]. Gleichzeitig wurde versucht, die größte direkt messbare Frequenzlücke weiter zu erhöhen, das heißt den Kamm breiter zu machen. Mit jedem Faktor 2, der gewonnen werden konnte, sparte man eine Intervallteilerstufe ein. Interessanterweise wuchs die größte messbare Frequenzlücke schneller als die Arbeiten an den Teilerstufenketten voran gingen.

## Der Durchbruch: Femtosekunden-Pulse

Noch breitere Frequenzkämme lassen sich durch die Verwendung von modengekoppelten Lasern erzeugen. Dabei schwingt der Laser gleichzeitig auf vielen Moden, die in einer festen Phasenbeziehung zueinander stehen. Man erzeugt einen sehr kurzen Puls, der zwischen den Endspiegeln des Laserresonators umher läuft. Nach jedem Umlauf erhält man eine Kopie des Pulses am Auskoppelspiegel. Solch ein gespeicherter Puls würde normalerweise durch die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD)  $\partial^2 k / \partial \omega^2$  in den optischen Komponenten des Resonators kontinuierlich verformt werden und daher binnen kürzester Zeit zerfallen. Bei einem Kerr-Linsen-modengekoppelten Titan:Saphir-Laser ist der Puls aber ein so genanntes Soliton, also ein nichtzerfließende Wellenpaket. Die GVD 4) Ein Laser, der nur eine optische Frequenz emittiert, heißt Dauerstrich-Laser oder continous wave (cw) Laser.

#### Abb. 3:

Eine große optische Frequenzlücke kann mit einem Frequenzkamm (orange) vermessen werden, indem man die Anzahl der Moden *n* in der Lücke mit dem Modenabstand  $\omega_r$  multipliziert, und die Schwebungsfrequenzen  $\omega_{b1}$  und  $\omega_{b2}$  mit den die Lücke aufspannenden Lasern (blau) bestimmt:  $\Delta \omega = n\omega_r + \omega_{b1} + \omega_{b2}$ . Wichtig ist hierbei, dass die Moden möglichst äquidistant im Frequenzraum sind.

> Abb. 4: Ein Soliton gleicht einer Gruppe von verschieden schnellen Läufern. die normalerweise "zerfließen" würde (Dispersion). Weil der Untergrund jedoch weich ist (intensitätsabhängiger Brechungsindex), laufen die schnellen Läufer ständig bergauf und die langsamen bergab - die Gruppe bleibt zusammen.



#### Abb. 5:

Umlauf eines sehr kurzen Pulses in einem Laserresonator mit linearer Dispersion. Während sich die Einhüllende mit der Gruppengeschwindigkeit  $v_g = \partial \omega / \partial k|_{\omega_c}$  bewegt, läuft die Trägerwelle (blau) mit der Phasengeschwindigkeit  $v_p = \omega_c / k$  um, sodass sich nach jedem Umlauf die relative Phase zwischen der Trägerwelle und der Einhüllenden um einen Winkel  $\Delta \varphi$  vergrößert. Durch die Fourier-Transformation der periodischen Einhüllenden ergibt sich das im unteren Teil dargestellte Spektrum. Es besteht aus Moden im Abstand der Pulswiederholrate  $\omega_r$  die um  $\omega_o = \Delta \varphi / T$  von den Harmonischen von  $\omega_r$  verschoben sind, wobei  $T = 1/\omega_r$  die Pulsumlaufzeit angibt. Die Puls-zu-Puls-Phasenverschiebung  $\Delta \varphi$  lässt sich zwar interferometrisch messen [11], allerdings nicht mit der für metrologische Anwendungen geforderten Genauigkeit.

wird dabei vom intensitätsabhängigen Brechungsindex  $n(I) = n_0 + n_2 I$  (optischer Kerr-Effekt) des Laserkristalls kompensiert. Die Laserintensität *I* stellt sich unter bestimmten Bedingungen automatisch so ein, dass diese Kompensation sehr exakt ist. Man beobachtet kein Zerfließen des Pulses mehr. Dieser Effekt ist in Abb. 4 durch eine Analogie veranschaulicht. Weil die mathematische Beschreibung von Solitonen sehr kompliziert ist, soll dieses Bild zur Beschreibung genügen. Man darf jedoch nicht zuviel hinein interpretieren.

Die Frequenz der einzelnen Moden ergibt sich aus der Umlaufbedingung  $2k_nL = n2\pi$  mit der Resonatorlänge *L*, der Anzahl der Halbwellen einer Mode im Resonator *n* und der Wellenzahl  $k_nc_0 = \omega_n$ . Um die Dispersion zu berücksichtigen, wird die Wellenzahl in der Nähe der Pulsträgerfrequenz (Zentralfrequenz)  $\omega_c$  in eine Taylor-Reihe entwickeln:

$$k_n = k_{\rm c} + \frac{\partial k}{\partial \omega} \Big|_{\omega_{\rm c}} (\omega_n - \omega_{\rm c}) + \frac{1\partial^2 k}{2\partial\omega^2} \Big|_{\omega_{\rm c}} (\omega_n - \omega_{\rm c})^2 + \dots$$
(1)

Unabhängig von der Wahl von  $\omega_c$  erkennt man, dass der Modenabstand  $\omega_{n+1}-\omega_n = (k_{n+1}-k_n)c_0$  genau dann konstant, das heißt unabhängig von *n* ist, wenn die GVD und alle Terme höherer Ordnung verschwinden.

Die äquidistante Kammstruktur lässt sich auch unabhängig von ihrer Erzeugung verstehen, wenn man annimmt, dass die (komplexe) Pulseinhüllende A(t)streng periodisch ist und die Pulswiederholrate  $\omega_r = 2\pi/T$  durch A(t) = A(t+T) definiert ist. Das elektrische Feld mit der Trägerfrequenz  $\omega_c$  des Pulses ist im Allgemeinen nicht periodisch wie die Abb. 5 erläutert. Die Einhüllende lässt sich in eine Fourier-Reihe entwickeln:

$$E(t) = A(t)e^{-i\omega_{\rm c}t} = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} A_n e^{-i(n\omega_{\rm r}+\omega_{\rm c})t}$$
(2)

Die Summe enthält genau die Frequenzen  $\omega_n = n\omega_r + \omega_c$ und damit wieder den äquidistanten Modenabstand, welches die einzige Eigenschaft des Frequenzkamms ist, die wir benötigen. Diesen Sachverhalt drücken wir gewöhnlich durch

$$\omega_n = n\omega_r + \omega_0 \tag{3}$$

aus, wobei wir die Modenzahl *n* so wählen, dass  $0 \le \omega_0 \le \omega_r$  gilt, und  $\omega_0$  eine vorerst unbekannte Offset-Frequenz ist. Die Fourier-Transformation ergibt auch eine Abschätzung für die Breite des Kamms. Wegen der Pulsdauer-Frequenz-Unschärfe ist diese in etwa durch die inverse Pulsdauer gegeben. Pulse mit einer Dauer von weniger als 10 fs, die mittlerweile routinemäßig erzeugt werden können, ergeben also einen etwa 1/(10 fs) = 100 THz breiten Frequenzkamm.

Die Idee, modengekoppelte Laser als Frequenzkamm-Generatoren zu verwenden, stammt eigentlich schon aus den siebziger Jahren [7]. Zu dieser Zeit reichten die verfügbaren Pulsdauern jedoch bei weitem nicht für optische Frequenzmessungen aus. Nach der Einführung der Kerr-Linsen-Modenkoppelung Anfang der neunziger Jahre waren die Kämme schon sehr viel breiter. Die entscheidende Frage war zunächst, ob das geschilderte vereinfachte Modell die Realität hinreichend gut beschreibt, um Femtosekunden-Laser für Messungen mit der höchsten Präzision einsetzen zu können. So gibt es verschiedene Fluktuationen, die die Phasenkohärenz aufeinander folgender Pulse zerstören könnten. Außerdem schien es denkbar, dass sich mit der Radiofrequenz auch dessen Rauschen auf dem Weg ins optische vervielfacht und somit die beschriebene Kammstruktur völlig verhindert. Wegen dieser Einwände waren einige Kollegen zunächst skeptisch gegenüber dieser neuen Technologie.

#### Abb. 6:

Die erste phasenkohärente Femtosekunden-Frequenzkette. Um die Kette zu betreiben, wird zunächst von einem infraroten HeNe-Laser bei der Frequenz f(3,39  $\mu$ m) durch zweifache Frequenzverdoppelung die vierte Harmonische 4fgebildet. Auf diese Frequenz wird dann eine Mode des Frequenz wird dann eine Mode des Frequenzkamms phasenstabilisiert. Die Pulswiederholrate (Modenabstand) wird auf ein Signal von einer Cäsium-Atomuhr phasenstabilisiert. Eine weitere Mode in der Nähe von 3,5fwird dann zu etwa 7f frequenzverdoppelt. Dann wird eine optische Intervallteilerstufe (ovales Symbol) verwendet, um die Frequenzen f, 4f und 7f auf exakt dieses Verhältnis festzulegen, indem der infrarote HeNe-Laser so phasenstabilisiert wird, dass  $f+7f=2 \times 4f$  gilt. Damit ist der Kreis geschlossen und es gibt keinen freilaufenden Laser mehr. Die Frequenzlücke 4f-3,5f=0,5f ist dann auf die Atomuhr stabilisiert. Mit 0,5f sind auch fsowie alle Moden des Frequenzkamms, die sich ja genau um Vielfache der Pulswiederholrate von f unterscheiden, auf die Atomuhr phasenstabilisiert. Nun kann die Laserstrahlung bei 485 nm als optischer Frequenzstandard oder für die Spektroskopie verwendet werden.



Doch selbst ohne die Möglichkeit, die Offset-Frequenz  $\omega_0$  zu messen, waren die Kerr-Lens-modengekoppelten Laser vielversprechende Kammgeneratoren. Bei der ersten Messung mit Femtosekunden-Frequenzkämmen wurde ein Frequenzabstand von 18 THz von einer unbekannten optischen Frequenz zu einer optischen Referenzfrequenz gemessen [12]. Beim ersten absolut stabilisierten Frequenzkamm [13] wurde wie eingangs erwähnt die Frequenzlücke zwischen Harmonischen desselben Lasers gemessen. Das Problem bestand darin, dass der Kamm "lediglich" 44 THz überspannte und deswegen nicht die Lücke zwischen  $\omega$  und  $2\omega$  gemessen werden konnte. Der zunächst verwendete, noch recht aufwändige Apparat ist in Abb. 6 skizziert.

# Photonische Kristallfasern

Während die eben beschriebenen Experimente durchgeführt wurden, kam es zu einem Durchbruch auf einem ganz anderen Gebiet. Eine Gruppe an der University of Bath [14] und ein Team bei Lucent Technologies [15] hatten spezielle Glasfasern, so genannte photonische Kristallfasern<sup>5)</sup>, hergestellt. Der in Abb. 7 dargestellte Ouerschnitt einer solchen Faser zeigt neben dem Faserkern mit Luft gefüllte Kanäle, die einen Teil des Lichts als evaneszente Welle führen. Durch die Größe der Kanäle lassen sich die Dispersionseigenschaften der Faser innerhalb gewisser Grenzen einstellen, so dass die Pulse eines Titan:Saphir-Lasers sehr viel langsamer zerfließen als in gewöhnlichen singlemode-Fasern. Die hohe Spitzenintensität bleibt nämlich auf einem längeren Faserstück erhalten, und die ohnehin schon hohe Intensität im Faserkern führt zur effizienten Selbstphasenmodulation, eine Auswirkung des intensitätsabhängigen Brechungsindex. Nach der Faserlänge *l* ergibt sich im idealisierten Fall, unter Vernachlässigung der Dispersion, eine Phasenverschiebung von

$$\Phi_{\rm NL}(t) = -n_2 I(t) \omega_c l/c \quad \text{mit} \quad I(t) = |A(t)|^2 \tag{4}$$

Die optische Weglänge der Faser hängt also von der momentanen Intensität ab und führt zu einer zeitabhängigen Phasenverschiebung  $\Phi_{\rm NL}(t)$ . Aus dieser zeitabhängigen Phasenverschiebung  $\Phi_{\rm NL}(t)$ . Aus dieser zeitausten von  $\dot{\Phi}_{\rm NL}(t)$ . Bei Quarzglas mit  $n_2 > 0$ produziert die ansteigende Pulsflanke neue Freeuenzen auf der roten Seite des Frequenzkamms ( $\dot{\Phi}_{\rm NL}(t) < 0$ ) und die fallende Flanke auf der blauen Seite. Dies erzeugt zusätzliche Modulationsseitenbänder um jede Mode des ursprünglichen Kamms und im Abstand vom Vielfachen der Modulationsfrequenz  $\omega_r$ . Wie in Abb. 8 dargestellt, erweitert dieser Prozess den bestehenden Kamm, ohne seine Struktur (Gl. 3) zu ändern.

Die Selbstphasenmodulation modifiziert die Pulseinhüllende wie folgt:

$$A(t) \to A(t)e^{i\Phi_{\rm NL}(t)}.$$
(5)

Weil  $\Phi_{NL}(t)$  dieselbe Periodizität wie A(t) hat, ist die obige Ableitung der Modenstruktur auch für die in der Faser verbreiterten Pulse gültig. Auch andere Effekte wie Dispersion oder höhere Ordnungen der Nichtlinearität sollten an dieser Periodizität nichts ändern, falls diese sich für alle Pulse gleich auswirken. Allerdings war auch bei diesem einfachen Modell zunächst Skepsis angebracht, wenn es um die denkbar höchste Präzision geht. In der Tat gibt es eine ganze Reihe von Effekten, die zusätzliches Rauschen auf der Kammstruktur bewirken können. Neben den photonischen Kristallfasern gibt es mittlerweile auch noch andere Methoden, sehr breite Frequenzkämme effizient zu erzeugen, etwa mit verdünnten Standardfasern [16] und, ohne Faser, durch hohe Intensitäten innerhalb eines Laserresonators [17].

# Oktavenbreite Frequenzkämme

Ähnliche spektrale Verbreiterungen waren schon vor der Einführung der photonischen Kristallfasern mit weniger effizientem Material, jedoch nur mit wesentlich intensiveren Pulsen möglich, die sich nur mit relativ niedriger Wiederholrate erzeugen lassen Das Verfahren zur Erzeugung von intensiven Pulsen, das so genannte "chirped pulse amplification", konzentriert die Energie von vielen Pulsen in einige wenigen und hat





Elektronenmikroskop-Aufnahme des Faserquerschnitts einer photonischen Kristallfaser. Auf der rechten Seite erkennt man die vergrößerte Kernzone, in der das Licht läuft. Mit den Luftröhrchen, die parallel zum Faserkern verlaufen und zum Teil in diesen hineinreichen, lässt sich die Gruppengeschwindigkeitsdispersion  $\partial^2 k/\partial \omega^2$  beeinflussen. Mit freundlicher Genehmigung von J. Knight/University of Bath (England).



Abb. 8: Spektrale Verbreiterung des Modenkamms auf über eine Oktave in einer photonischen Kristallfaser wie sie in Abb. 7 gezeigt ist. Beide Spektren haben einen Modenkamm, der jedoch nicht aufgelöst ist.

5) Der Lichtleiteffekt bei

diesen Faser beruht

nicht auf der Bragg-

Reflexion an den Luftkanälen, wie der Name

möglicherweise sugge-

demnach eine sehr niedrige Pulswiederholfrequenz. Der resultierende dichte Frequenzkamm erschwert die optische Frequenzmessung deutlich.

Die Erzeugung von Frequenzkämmen, die eine ganze optische Oktave überspannen und eine genügend hohe Pulswiederholrate aufweisen, war der entscheidende Schritt zur Realisierung eines Apparats, der als der erste praktikable optische Synthesizer bezeichnet werden kann [13, 18-20]. Abbildung 9 verdeutlicht das Prinzip. Nach Gleichung 3 ermöglicht eine volle Oktave die einfache Bestimmung der Offset-Frequenz  $\omega_0$  und damit die einfache Rückführung der optischen Frequenzen  $\omega_n$  auf die beiden Radiofrequenzen  $\omega_r$  und  $\omega_0$ . Nachdem der oktavenbreite Frequenzkamm auf eine Atomuhr phasenstabilisiert ist, lassen sich alle darin enthaltenen Moden zur optischen Frequenzmessung nutzen. Diese Apparatur ist demnach nicht nur wesentlich einfacher als die alten harmonischen Frequenzketten, sondern auch für fast alle optische Frequenzen

vesentnzketen

Physik Journal 1 (2002) Nr. 2 riert.

einsetzbar. Sie hat, wie Abb. 1 zeigt, auf etwa einem Quadratmeter Platz. Damit sind die optischen Uhren in greifbare Nähe gerückt. In der Tat arbeiten die Standardinstitute der meisten Industrieländer derzeit an einer solchen Uhr.

Ausschlaggebend für diese Aktivität war sicher, dass es sehr vielversprechende Ergebnisse der Femtosekunden-Metrologie gab [12, 20, 21]. Der bislang fundierteste Test ist der Vergleich der beiden optischen Synthesi-



#### Abb. 9:

Die einfachste und zugleich vielseitigste Variante einer Femtosekunden-"Frequenzkette" überspannt eine ganze optische Oktave. Wird die Mode *n* des Frequenzkamms frequenzverdoppelt und mit der Mode 2*n* zur Schwebung gebracht, so ergibt sich nach Gl. 3 die gesuchte Frequenz  $\omega_0 = 2(n\omega_r + \omega_0) - (2n\omega_r + \omega_0)$ . In der Praxis lässt sich die hohe Intensität ausnutzen, um eine ganze Reihe von Moden in der Nähe von *n* sehr effizient zu verdoppeln und sie dann mit einer gleichen Anzahl von Moden in der Nähe von 2*n* zur Schwebung zu bringen. Auf diese Weise lässt sich das Signal verstärken.

# Abb. 10:

Die Ergebnisse aus dem Vergleich der beiden optischen Synthesizer aus den Abbildungen 9 und 6. Die statistische Unsicherheit nimmt mit zunehmender Zähler-Gate-Zeit ab, weil diese die Dauer des kohärenten Vergleichs bestimmen. Das gewichtete Mittel der dargestellten Messwerte ergibt eine Abweichung von der erwarteten Frequenz bei 353,5 THz von 71 mHz ± 179 mHz. Das ist eine relative Unsicherheit von  $5,1 \times 10^{-16}$ . Kein systematischer Effekt ist oberhalb dieser Grenze sichtbar.

6) Bei dieser Art handelt es sich um die genauesten Cäsium-Uhren.



zer, die in den Abbildungen 6 und 9 dargestellt sind. Zu diesem Zweck wurde ein Laserstrahl bei 4f (353,5 THz oder 848 nm) (Abb. 6) mit der nächstliegenden Mode des Frequenzkamms aus Abb. 9 zur Schwebung gebracht. Beide Apparate multiplizieren einen gemeinsam verwendeten Quarzoszillator von 10 MHz direkt in das Optische. Sollten sie dabei keine Fehler machen, so sollten auch die optischen Frequenzen identisch sein bzw. einen genau definierten Abstand voneinander haben. Nach mehr als 4,5 Stunden Mittelungszeit ergab sich eine Abweichung von  $0,071 \text{ Hz} \pm 0,179 \text{ Hz}$  bei einer Frequenz von 353,5 THz, wie in Abb. 10 dargestellt. Das ist eine relative Unsicherheit von  $5.1 \times 10^{-16}$ , deutlich besser als die derzeit genauesten Atomuhren. Um diese Grenze unter die prognostizierten Unsicherheiten von zukünftigen optischen Uhren zu drücken, müssen noch weitere Test unternommen werden. Es bleibt zu hoffen, dass durch einen Vergleich zweier optischer Synthesizer, wie er in Abb. 10 dargestellt ist, diese Grenze noch weiter reduziert werden kann. Ein noch ungelöstes Problem ist die Stabilität der Übertragung, die im Wesentlichen angibt, wie lange gemittelt werden muss, um die statistische Unsicherheit auf einen bestimmten Wert zu reduzieren. Mit dem jetzigen Stand der Technik würden sich teilweise unrealistisch lange Mittelungszeiten ergeben.

## **Optische Uhren**

Die ersten Ansätze für eine realistische optische Uhr sind bereits sichtbar [22-24]. Am National Institute of Standards and Technoloy (NIST) in Boulder/Colorado wird z.B. seit langem an einem optischen Standard gearbeitet, der auf einem einzelnen gefangenen Quecksilber-Ion beruht. Der verwendete Übergang hat eine Frequenz von 1064 THz und eine natürliche Linienbreite von 6.7 Hz. Im letzten Jahr wurde dort ein optischer Synthesizer installiert und der Quecksilber-Uhrenübergang zunächst mit der NIST-Zeitskala, bestehend aus einem Ensemble von Wasserstoffmasern und einer Cäsium-Fontänenuhr<sup>6)</sup>, genau vermessen [25]. Die Messungen waren durch die Genauigkeit der NIST-Zeitskala, die zu den besten der Welt gehört, limitiert. Um zu zeigen, dass die optische Quecksilberuhr besser als alle anderen Uhren ist, muss erst eine Zweite gebaut werden, mit der sie verglichen werden kann. Weil derzeit keine zweite Quecksilberuhr zur Verfügung steht, wurde zunächst ein nicht ganz so genauer optischer Kalzium-Frequenzstandard zu Vergleichen herangezogen [22].

Von gleicher Genauigkeit sind die Ergebnisse, die bei der Physikalisch Technischen Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig mit einem gespeicherten Ytterbium-Ion [23] erzielt wurden. Neben anderen interessanten Kandidaten erscheinen einzelne gespeicherte Indium-Ionen als besonders vorteilhaft [24]. Anders als bei den untersuchten Übergängen der bisher angesproche-

> nen Ionen hat der Uhrenübergang im Indium keine so genannte Quadrupolverschiebung, die möglicherweise die anderen Ionen in ihrer Reproduzierbarkeit begrenzen wird. Ein direkter Vergleich des Indium-Uhrenübergangs mit einer Fontänenuhr steht jedoch noch aus.

## Anwendung in der Grundlagenforschung Auch die Grundlagenforschung

profitiert von der neuen Technologie. In unserem Labor in Garching wurde eine Mode des Frequenzkamms aus dem in Abb. 6 dargestellten Aufbau in der Nähe von 7f genutzt, um die in Abb. 2 eingezeichnete Laserdiode bei 352,445 THz und mit ihr die gesamte Frequenzkette, mit Ausnahme des Wasserstoffspektrometers, zu ersetzen. Dadurch wurde es möglich, die 1s-2s-Übergangsfrequenz im Wasserstoffatom phasenkohärent mit einer Atomuhr zu vergleichen, und nicht wie bis dato nur mit dem kalibrierten HeNe-Standard. Um das ganze Potenzial der neuen Methode auszunutzen, wurde diese Messung in Zusammenarbeit mit der Gruppe von A. Clairon vom Laboratoire Primaire du Temps et des Fréquences (LPTF) in Paris durchgeführt, die zu diesem Zweck ihre Cäsium-Fontänenuhr nach Garching gebracht haben. Auf diese Weise gelang es, die Unsicherheit dieser fundamentalen Frequenz um mehr als eine Größenordnung zu reduzieren. Mit präzisen Frequenzmessungen am Wasserstoffatom lassen sich die Lamb-Verschiebungen der einzelnen Niveaus bestimmen, die einen der genauesten Test der Quantenelektrodynamik erlauben. Außerdem erhält man auf diese Weise einen Wert für die Rydberg-Konstante. Durch die Messungen am Wasserstoff ist die Rydberg-Konstante die am genauesten bekannte Naturkonstante. Weil sie aus anderen Konstanten zusammengesetzt ist, liefert sie einen wichtigen Eckpunkt für die Ausgleichsrechnung, die die wahrscheinlichsten Werte aller Naturkonstanten bestimmt.

## Weitere denkbare Anwendungen

Die kürzesten Pulse, die heute in der Ultrakurzzeitspektroskopie eingesetzt werden, bestehen nur noch aus wenigen optischen Zyklen. Der obere Teil der Abb. 5 stellt einen solchen Pulszug dar, bei dem der Spitzenwert der elektrischen Feldstärke um einige Prozent schwankt, je nach relativer Phase zwischen der Trägerwelle und der Einhüllenden. Gewisse Effekte, die in nicht-linearer Weise von der elektrischen Feldstärke abhängen, sollten demnach von dieser relativen Phase abhängen, und in der Tat sind erste Hinweise auf eine solche Abhängigkeit gefunden worden [26].

Eine weitere mögliche Anwendung ergibt sich in der Datenübertragung mit optischen Glasfasern. Hier wird schon seit einiger Zeit ein regelmäßiges Gitter von optischen Tägerfrequenzen verwendet. Mit zunehmender Datendichte wird die Anzahl der verwendeten Trägerfrequenzen weiter zunehmen. Außerdem werden die Stabilitätsanforderungen an die einzelnen Kanäle, die bisher nur durch eine aufwändige Stabilisierung der einzelnen Laser erfüllt werden können, weiter wachsen, um eine möglichst dichte Besetzung des elektromagnetischen Spektrums zu erreichen. Beide Anforderungen erfüllen die optischen Frequenzkämme in nahezu perfekter Weise

# Dank

Die hier beschriebenen Arbeiten, soweit sie an unserem Institut durchgeführt wurden, wären ohne die Mithilfe der übrigen Mitglieder unserer Gruppe Markus Niering, Jörg Reichert und Martin Weitz undenkbar gewesen. Außerdem gilt unser Dank Jonathan Knight, William Wadsworth und Philip Russell von der University of Bath/England, die uns ihre photonische Kristallfaser zur Verfügung gestellt haben und Pierre Lemonde, Giorgio Santarelli, Michel Abgrall, Philippe Laurent, Christophe Salomon und André Clairon vom LPTF/Paris, die ihre Cäsium-Fontänenuhr in unserem Labor aufgebaut haben.

#### Literatur

- [1] M. Niering et al., Phys. Rev. Lett. 84, 5496 (2000)
- [2] Einen Überblick über die Errungenschaften bis 1971 gibt der folgende Artikel: A. Javan, Fundamental and Applied Laser Physics, Proceedings of the Esfahan Symposium, hrsg. von M. S. Feld, A. Javan und N. A. Kurnit, John Wiley & Sons, New York 1973, S. 295-334
- [3] K. M. Evenson et al., Appl. Phys. Lett. 22, 192 (1973). Je nachdem welche Frequenz man als optisch bezeichnen möchte, ist die hier beschriebenen Messung bei 88 THz (3,39 μm) die erste optische Frequenzmessung. 1967 reichte diese Kette bis 871 GHz und wurde dann in der Folge zu immer höheren Frequenzen verlängert.
- [4] *Th. Udem* et al., Phys. Rev. Lett. **79**, 2646 (1997)
- H. Schnatz, B. Lipphardt, J. Helmcke, F. Riehle und G. Zinner, Phys. Rev. Lett. 71, 18 (1997)
- [6] T. W. Hänsch in: The Hydrogen Atom, hrsg. von G. F. Bassani, M. Inguscio und T. W. Hänsch, Springer Verlag, Heidelberg 1989
- [7] J. N. Eckstein, A. I. Ferguson und T. W. Hänsch, Phys. Rev. Lett. 40, 847 (1978)

- [8] M. Kourogi, B. Widiyatomoko, Y. Takeuchi und
   M. Ohtsu, IEEE I. Ouantum Electron, 31, 2120 (1995)
- [9] A. N. Luiten, R. P. Kovacich und J. J. McFerran, IEEE Trans. Instrum. Meas. 48, 558 (1999)
- [10] T. Ikegami, S. Slyusarev, S. Ohshima und E. Sakuma, Proceedings of the Fifth Symposium on Frequency Standards and Metrology, hrsg. von J. C. Bergquist (World Scientific, Singapore 1996) S. 333
- [11] L. Xu, Ch. Spielmann, A. Poppe, T. Brabec, F. Krausz und T. W. Hänsch, Opt. Lett. **21**, 2008 (1996)
- [12] Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth und T. W. Hänsch, Opt. Lett. 24, 881 (1999)
- [13] J. Reichert et al., Phys. Rev. Lett. 84, 3232 (2000)
- [14] W. J. Wadsworth et al., Electron. Lett. **36**, 53 (2000) [15] J. K. Ranka, R. S. Windeler und A. J. Stentz, Opt.
- Lett. 25, 25 (200)
- [16] T. A. Birks, W. J. Wadsworth und P. St. J. Russell, Opt. Lett. 25, 1415 (2000)
- [17] U. Morgner et al., Phys. Rev. Lett. 86, 5462 (2001)
- [18] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall und S. T. Cundiff, Science 288, 635 (2000)
- [19] S. A. Diddams et al., Phys. Rev. Lett. 84, 5102 (2000)
- [20] R. Holzwarth et al., Phys. Rev. Lett. 85, 2264 (2000)
- [21] S. A. Diddams, L. Hollberg, L. S. Ma und L.
- Robertsson, bei Opt. Lett. eingereicht
- [22] S. A. Diddams et al., Science **293**, 825 (2001) [23] J. Stenger, Ch. Tamm, N. Haverkamp, S. Weyers
- und H. R. Telle, Opt. Lett., im Druck. Siehe auch arXiv.org physics/0103040.
- [24] Th. Becker et al., Phys. Rev. A 63 051802(R) (2001)
- [25] Th. Udem et al., Phys. Rev. Lett. 86, 4996 (2001)
- [26] G. G. Paulus et al., Nature 414, 182 (2001)

## **Die Autoren**

Thomas Udem promovierte 1997 am Max-Planck-Institut für Quantenoptik in Garching (MPQ) über optische Frequenzmessungen am Wasserstoffatom und an Cäsium. Während seiner Zeit als Postdoc am MPQ und am National Institute of Standards and Technology in Boulder, Colorado, wurden die hier beschriebenen Ideen erstmals in die Tat umgesetzt und getestet.





Ronald Holzwarth promovierte im März 2001 am MPQ über Lichtfrequenzmessungen mit Femtosekundenlasern. Im Zuge dieser Arbeiten führte er die hier vorgestellten Wasserstoffmessungen durch und entwickelte den optischen Frequenzsynthesizer. Im vergangenen Jahr gründete er mit Theodor Hänsch und einem weiteren Kollegen die Firma Menlo Systems (www.menlosystems.com) zur Vermark-

tung der inzwischen zum Patent angemeldeten Frequenzkammtechnik.

Theodor Hänsch gilt als Erfinder der Laserkühltechnik, mit deren Hilfe eine Vielzahl von neuen Experimenten, bis hin zur Bose-Einstein-Kondensation, ermöglicht wurde. Nach 16 Jahren an der kalifornischen Stanford University kehrte er 1986 nach Deutschland zurück, wo er seitdem als Professor an der Ludwig-Maximilians-Universität in München lehrt und als Direktor am MPQ die Abteilung



Überblick