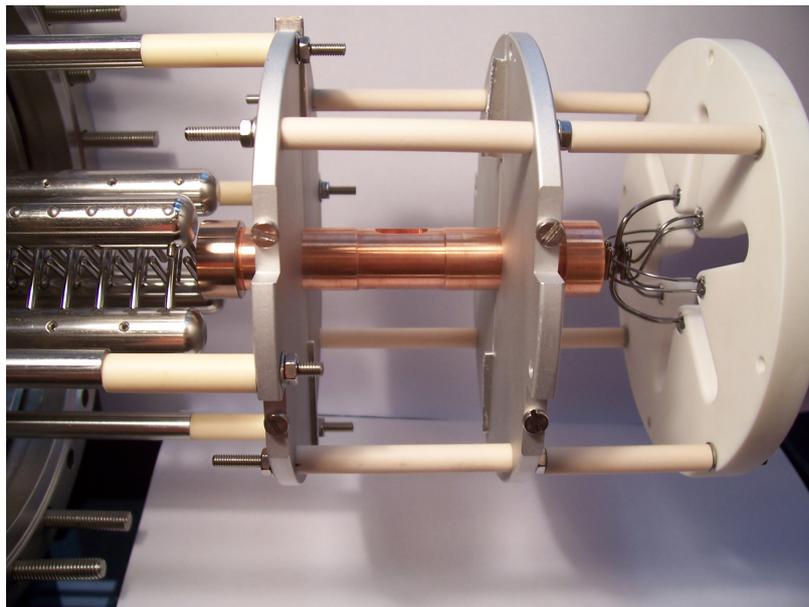


Diplomarbeit

Eine Mikrowellenlinse für polare Moleküle

Simon Merz



Fritz-Haber-Institut
Freie Universität Berlin - Fachbereich Physik

Betreuer: Prof. Dr. Gerard Meijer
Dr. Melanie Schnell
Abgabetermin: 28.10.2009

Das Titelbild zeigt die Mikrowellenlinse direkt nach dem Einbau (siehe auch Kapitel 5.1).

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
2	Grundlagen zu kalten Molekülen	11
2.1	Kalte Moleküle	11
2.2	Überschallexpansion	12
2.3	DC-Stark-Effekt	13
2.3.1	DC-Stark-Effekt von Ammoniak	15
2.4	AC-Stark-Effekt	18
2.4.1	AC-Stark-Effekt von Ammoniak	21
2.5	Starkabbremsler	24
3	Resonatoren & Wellenleiter	29
3.1	Theoretische Grundlagen zu Wellenleitern	31
3.2	Wellenleiter	37
3.2.1	Zylindersymmetrische Wellenleiter	39
3.3	Zylindersymmetrische Hohlraumresonatoren	41
3.4	Offene Resonatoren	45
3.5	Experimentelle Realisierung einer Mikrowellenlinse	50
4	Trajektorienrechnung	53
5	Experimenteller Aufbau	55
5.1	Mikrowellenlinse	56

5.2	Detektion von Ammoniak	61
6	Ergebnisse	65
6.1	Abbremsexperimente mit $^{14}\text{NH}_3$	65
6.2	Fokussierexperimente	68
6.2.1	Fokuslänge - Vergleich mit einer Hexapollinse	74
7	Zusammenfassung und Ausblick	79

Kapitel 1

Einleitung

Die Physik ist eine grundlegende Naturwissenschaft in dem Sinne, dass ihre Gesetze das Ziel haben, alle Systeme der Natur zu beschreiben. Aus diesem Streben nach Erkenntnis entstanden schon relativ früh Theorien über die uns unmittelbar umgebende Materie. Daraus entwickelte sich vor etwa 200 Jahren das, was wir heute Atom- und Molekülphysik nennen. Seitdem nehmen sowohl das Verständnis der untersuchten Systeme, also der Atome und Moleküle, als auch das Verständnis der grundlegenden dynamischen Prozesse stetig weiter zu. Die Molekülphysik umfasst u.a. die strukturelle Aufklärung von Molekülen, sowie die eingehende Untersuchung ihrer Interaktion untereinander oder mit äußeren Feldern [1]. Viele Experimente in der Molekülphysik stützen sich auf spektroskopische Untersuchungen, die die Wechselwirkung der Moleküle mit elektromagnetischer Strahlung und darüber hinaus beispielsweise auch mit statischen externen Feldern studiert. Außerdem finden Stoßexperimente Verwendung, mit denen u.a. intermolekulare Wechselwirkungen untersucht werden können.

Ein noch junges Forschungsgebiet innerhalb der Molekülphysik ist das der „kalten Moleküle“ [2, 3]. Ihre Temperatur ist über $E_{kin} = k_B T$ (k_B : Boltzmann-Konstante) mit der kinetischen Energie verknüpft; kalte Moleküle sind also auch langsame Moleküle und vice versa. Eine besondere Eigenschaft langsamer Teilchen ist, dass die

de-Broglie-Wellenlänge $\Lambda = h / (2\pi m k_B T)^{1/2}$ mit dem Planckschen Wirkungsquantum h , der Teilchenmasse m und der Temperatur T mit abnehmender Energie größer wird. Bei niedrigen Temperaturen wird die de-Broglie-Wellenlänge etwa so groß, wie der interatomare Abstand in einem Molekül. Stöße zwischen zwei derartig kalten Molekülen können nicht mehr wie Stöße zwischen zwei harten Kugeln, sondern als Interferenz zweier Wellen beschrieben werden. Stöße zwischen kalten Molekülen sind also fundamental anders als Stöße zwischen warmen Molekülen. Für Ammoniak beispielsweise beträgt die de-Broglie-Wellenlänge bei Raumtemperatur etwa $\Lambda = 23$ pm, wohingegen sie bei 30mK mit 2,5 nm knapp das Hundertfache beträgt.

Unterhalb einer kritischen Temperatur wird die de-Broglie-Wellenlänge größer als der mittlere Abstand der Teilchen in einem Ensemble. Das gesamte Ensemble weist nun Wellencharakter auf. Eine besondere Eigenschaft kalter bosonischer Atome und Moleküle ist, dass sie bei ausreichend hohen Dichten und ausreichend niedrigen Temperaturen in ein Regime gelangen, in dem alle Teilchen denselben Quantenzustand besitzen. Man nennt diesen Zustand Bose-Einstein-Kondensat (BEC); nach Satyendra Nath Bose und Albert Einstein, die dieses Verhalten von kalten Atomen schon 1924 theoretisch vorhersagen konnten [4]. Erst 71 Jahre später, also 1995, konnten Bose-Einstein-Kondensate mit Rubidiumatomen experimentell realisiert werden [5, 6]. Hochinteressante Anwendungen atomarer BECs sind Atominterferometrie [7] und Atomlaser [6]. Für atomare BECs hat sich die Laserkühlung, mit anschließender Verdampfungskühlung, als Werkzeug zum Reduzieren der kinetischen Energie der Atome durchgesetzt. Die Voraussetzung für Laserkühlung beruht auf dem häufigen Durchlaufen desselben geschlossenen Absorptions-Emissions-Zyklus. Moleküle besitzen jedoch, im Gegensatz zu Atomen, aufgrund ihrer komplizierteren Struktur zusätzliche Vibrations- und Rotationsfreiheitsgrade, die zudem noch miteinander gekoppelt sein können und somit in eine Vielzahl von Energieniveaus resultieren. Folglich lässt sich allgemein kein geschlossener Emissions-Absorptions-Zyklus zur Laserkühlung finden [8].

Im letzten Jahrzehnt wurden daher einige alternative Methoden zur Herstellung kalter Moleküle entwickelt [3, 9]. Eine Reihe von Techniken basieren auf einem Ensemble lasergekühlter ultrakalter Atomen mit hoher Dichte, die zu Dimeren zusammengesetzt werden. Für die Bildung von Molekülen aus kalten Atome wird wegen der Energie- und Impulserhaltung ein dritter Partner benötigt. Hierin unterscheiden sich die einzelnen Techniken: Wird als dritter Stoßpartner ein Photon verwendet, so gelingt die Molekülbildung durch Photoassoziation [10–12]. Steht hingegen ein dritter Stoßpartner in Form eines Atoms oder Moleküls zur Verfügung, so kann das Molekül durch Kollision gebildet werden. Die dritte Technik beruht auf dem Durchlaufen einer Feshbach-Resonanz in einem veränderlichen Magnetfeld und resultiert ebenso in einem gebundenen Zustand [13–17]. Erst kürzlich wurden Verfahren entwickelt, um die so erhaltenen, hochangeregten und damit kurzlebigen Dimere in ihre stabilen Rotations- und Schwingungsgrundzustände zu überführen [18–21].

Neben diesen indirekten Methoden existieren auch eine Reihe von Methoden, die die Moleküle direkt kühlen. Zwei arbeiten dabei mit Thermalisierung in Helium. Im ersten Fall werden Teilchen in supraflüssige Heliumtröpfchen eingebracht und nehmen die Temperatur ($T \approx 0,4$ K) der Umgebung an [22–25]. Der zweite Fall, die Puffergaskühlung, ist eine allgemeine Methode, die sowohl für Atome als auch für Moleküle Verwendung findet. Hier werden Stoßprozesse mit sehr kalten Pufferatomen (Helium bei bis zu 550 mK) in einer kryogenen Zelle genutzt, um die zu untersuchende Spezies zu thermalisieren [26–29].

Eine weitere Methode macht sich die Tatsache zu Nutze, dass in jedem thermischen Gas bereits langsame und damit kalte Moleküle enthalten sind. Hier gilt es, nur diese heraus zu selektieren. Eine Möglichkeit hierfür ist ein gebogener Multipol, der den Starkeffekt ausnutzt, um langsame Moleküle aus einer effusiven Quelle herauszufiltern [30].

Abschließend sind noch Methoden zu nennen, die von einem gepulsten Molekülstrahl ausgehen. Neben der Abbremsung mit magnetischen [31–34] und mit optischen Feldern [35–37] hat sich die Starkabbremmung [38] etabliert, die sich den DC-Stark-Effekt polarer Moleküle in elektrischen Feldern zunutze macht. Diese Methode findet auch in dieser Arbeit Anwendung und ist in Kapitel 2.5 näher erläutert. Zustände polarer Moleküle zeigen in elektrischen Feldern im Allgemeinen drei verschiedene Verhaltensweisen. Entweder gewinnen oder verlieren sie potentielle Energie im zunehmenden Feld, oder sie werden wenig bis gar nicht beeinflusst. Bei den ersteren spricht man von sogenannten tieffeldsuchenden bzw. hochfeldsuchenden Zuständen (siehe Abschnitt 2.3). Alle Grundzustände sowie alle Zustände größerer bzw. schwerer Moleküle zeigen hochfeldsuchendes Verhalten. Die Starkabbremmung von Molekülen in tieffeldsuchenden Zuständen ist mittlerweile gut entwickelt (siehe Kapitel 2.5). Für Moleküle in hochfeldsuchenden Zuständen hingegen ist der Abbremsvorgang komplizierter. Grundzustände sind insbesondere wichtig zum Erreichen langer Fangzeiten in Molekülfallen, da sie deutlich stabiler sind als angeregte Zustände. Große Moleküle sind Kandidaten für die hochgenaue Messung des elektrischen Dipolmoments und der Paritätsverletzung in chiralen Molekülen. Moleküle in hochfeldsuchenden Zuständen werden aber in statischen elektrischen Feldern zum Feldmaximum gezogen, das sich immer an den Elektroden befindet. Um auch Moleküle in hochfeldsuchenden Zuständen mit elektrischen Feldern manipulieren zu können, wurden in der näheren Vergangenheit sogenannte Alternierende-Gradienten (AG)-Verfahren, die dynamische Fokussierung benutzen, entwickelt und erfolgreich angewendet. Mit der AG-Abbremsung [39–43] konnten CO, OH, das große Molekül Benzotrinitril, sowie das schwere Molekül YbF erfolgreich abgebremst werden. Mit einem AC-Guide gelang es 3-Aminophenol in seine cis- und trans-Isomere zu trennen. Zudem wurden verschiedene AC-Fallentypen [44–48] entwickelt.

Diese Diplomarbeit untersucht speziell das Verhalten polarer Moleküle in Mi-

krowellenfeldern am Beispiel von Ammoniak, wobei es hier nicht um strukturelle Aufklärung geht. Vielmehr soll ein Werkzeug entwickelt werden, mit dem die Bewegung polarer Moleküle mit Mikrowellenfeldern manipuliert werden kann. Erst kürzlich wurde vorgeschlagen, dass Mikrowellenfelder zum Abbremsen [49] und Fangen [50] polarer Moleküle in hochfeldsuchenden Zuständen verwendet werden können. Da im Prinzip sehr starke Mikrowellen-Verstärker zur Verfügung stehen, können hohe Mikrowellenfeldstärken und damit auch sehr tiefe Fallen von bis zu 1 K realisiert werden. Derartige Experimente wurden allerdings bisher noch nicht erfolgreich demonstriert. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit werden neuartige Experimente durchgeführt, mit denen die transversale Bewegung von polaren Molekülen in AC-hochfeldsuchenden Zuständen manipuliert werden kann.

Es wurde eine positive Linse für polare Moleküle, analog einem elektrostatischen Hexapol oder Quadrupol [51], entwickelt. Allerdings ist mit Mikrowellenfeldern möglich, sowohl Moleküle in DC-tieffeldsuchenden als auch DC-hochfeldsuchenden Zuständen zu manipulieren. Das Experiment wird in der Gasphase durchgeführt, da die Moleküle hier als von der Umgebung isoliert betrachtet werden können. Um möglichst lange Interaktionszeiten zwischen Mikrowellenfeld und Molekülen gewährleisten zu können, gibt es zwei Möglichkeiten: Zum einen kann die Mikrowellenlinse sehr lang konzipiert werden. Dies birgt allerdings fertigungstechnische Probleme, da wie in Kapitel 3.5 beschrieben, die Innenmaße der Linse, insbesondere der Innendurchmesser, höchst präzise und sehr einheitlich gefertigt werden muss. Zum anderen können bei einer kürzeren, handlicheren und einfacher zu fertigenden Linse die Moleküle verlangsamt werden, um Wechselwirkungszeiten zu erhöhen. In dem hier beschriebenen Experiment werden dazu bereits Stark-abgebremste Moleküle verwendet. Die neu gewonnenen Erkenntnisse sollen dazu beitragen, in einem nächsten Schritt Moleküle mit Mikrowellenfeldern ebenfalls abzubremsen und zu fangen.

Die Arbeit ist wie folgt gegliedert. In Kapitel 2 wird eine Einführung in die

Grundlagen zur Herstellung kalter Moleküle mittels Starkabbremmung gegeben. Darüber hinaus wird der AC-Stark-Effekt beschrieben, der die theoretische Grundlage für die Wechselwirkung polarer Moleküle mit Mikrowellenfeldern bildet. Kapitel 3 liefert eine ausführliche Herleitung und Diskussion von elektromagnetischen Feldern in Wellenleitern und Resonatoren und damit eine wichtige Grundlage bezüglich der richtigen Wahl experimenteller Parameter für die Mikrowellenlinse. Kapitel 4 beschreibt die Ansätze zur Simulation von Trajektorien polarer Teilchen in elektromagnetischen Feldern. In Kapitel 5 werden Aufbau des Experiments und alle wichtigen Einstellungen dargelegt. In Kapitel 6 schließlich werden die Ergebnisse diskutiert und in Kapitel 7 neben einer Zusammenfassung weiterführende Konzepte vorgestellt.

Kapitel 2

Grundlagen zu kalten Molekülen

2.1 Kalte Moleküle

Die Maxwellverteilung gibt an, wie groß die Wahrscheinlichkeit ω ist, innerhalb eines Ensembles ein Teilchen der Energie E zu finden, wenn sich das System im Gleichgewicht befindet und die Temperatur T besitzt [52].

$$\omega(E) dE = 2\sqrt{\left(\frac{E}{\pi k_B T}\right)^3} e^{-E/k_B T} dE. \quad (2.1)$$

k_B ist die Boltzmann-Konstante. Setzt man die kinetische Energie $E=p^2/2m$ mit der Masse m und dem Impuls p ein, erhält man die Maxwellsche Geschwindigkeitsverteilung [52], die die Wahrscheinlichkeit, ein Teilchen der Geschwindigkeit $v = \sqrt{v_x^2 + v_y^2 + v_z^2}$ innerhalb des Ensembles anzutreffen, angibt:

$$\omega(v) dv = 4\pi\sqrt{\left(\frac{m}{2\pi k_B T}\right)^3} e^{-mv^2/2k_B T} v^2 dv. \quad (2.2)$$

Aus Gleichung (2.2) folgt für eine niedrige Temperatur eine niedrige mittlere Teilchengeschwindigkeit und zusätzlich eine schmale Geschwindigkeitsverteilung. Speziell für Ammoniak ($^{14}\text{NH}_3$) ergibt sich bei einer Geschwindigkeitsverteilung mit $\Delta v=5$ m/s eine Temperatur von etwa 30 mK. „Kalte Moleküle“ sind also gleichzeitig Moleküle mit einer schmalen Geschwindigkeitsverteilung. In Molekülstrahlexperimenten ist die absolute Geschwindigkeit im Laborbezugssystem zwar relativ

hoch, im Bezugssystem der Moleküle jedoch ist relative Geschwindigkeit aufgrund der schmalen Geschwindigkeitsverteilung sehr klein. Die Moleküle in einem Molekülstrahl befinden sich allerdings nicht in einem thermischen Gleichgewicht, so dass streng genommen keine einheitliche Temperatur definiert werden kann. Sie findet trotzdem als Angabe der kinetischen Energie Verwendung.

2.2 Überschallexpansion

Für die Starkabbremmung werden gepulste Molekülstrahlen mit einer möglichst niedrigen transversalen Geschwindigkeitsverteilung benötigt. Diese einzelnen Pakete des Strahls werden in einer Düse per Überschallexpansion erzeugt. Hier wird das Prinzip der Überschallexpansion am Beispiel von Ammoniak beschrieben. Für weitere Informationen zur Überschallexpansion sei auf die Referenz [53] verwiesen.

Es wird ein kontrolliertes Leck in der Vakuumkammer geschaffen. Auf der einen Seite des „Lecks“ befindet sich der Gasbehälter mit Ammoniak bei $p=2$ bar, auf der anderen Seite Hochvakuum mit $p=10^{-8}$ mbar (siehe Abb. 2.1). In Abständen von 100 ms (10 Hz) öffnet sich die Düse für 100-200 μs , so dass eine kleine Menge des Gasgemisches durch das „Leck“ in die Vakuumkammer expandiert. Aufgrund der geringen Lochgröße kommt es zu einer signifikanten Anzahl von Stößen zwischen den Ammoniakmolekülen als auch zwischen den Ammoniakmolekülen und den Trägergasmolekülen (Xenon). Bei diesen inelastischen Prozessen werden sowohl die Rotations- als auch die Translationsfreiheitsgrade abgekühlt. Nach der Expansion befinden sich fast alle Moleküle sowohl im elektronischen Grundzustand als auch im Vibrationsgrundzustand. Ein anschließender Skimmer filtert Moleküle mit hoher transversaler Geschwindigkeit heraus (Abbildung 2.1). Das Resultat sind Moleküle, bei denen der Großteil der kinetischen Energie longitudinal gerichtet ist. Mit einem schweren Trägergas wie Xenon ist die Geschwindigkeit des resultierenden Molekülstrahls noch einmal deutlich niedriger und die Geschwindigkeitsverteilung schmaler als bei einem reinen Ammoniakstrahl (siehe Abbildung 2.1). Für eine Mischung aus

5% NH_3 und 95% Xenon haben die Molekülpakete eine Geschwindigkeit von etwa 330 m/s. Wird die Düse zusätzlich auf -70°C gekühlt, so kann die longitudinale Geschwindigkeit bis auf 280 m/s reduziert werden und im Anschluss mithilfe eines Starkabbremers weiter verringert werden (Abbildung 2.2 und Abschnitt 2.5). Eine genauere Rechnung für die Energien und Dichten vor und nach einer Überschalllexpansion am Beispiel von ND_3 ist in Referenz [54] zu finden.

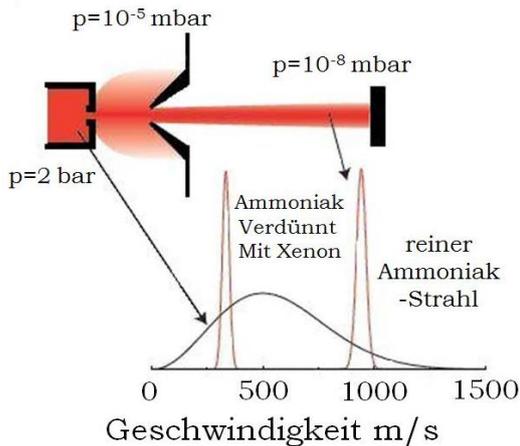


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der Erzeugung eines gepulsten Molekülstrahls mittels Überschalllexpansion. Zusätzlich ist die Verteilung der Geschwindigkeiten im Gasreservoir, im reinen Ammoniakstrahl als auch im mit Xenon verdünnten Ammoniakstrahl angegeben.

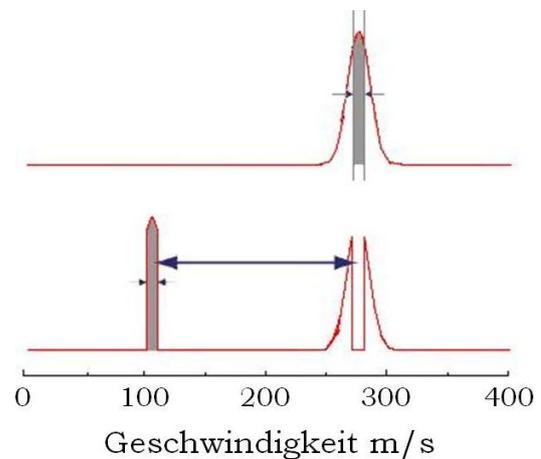


Abbildung 2.2: Darstellung der Wirkung eines Starkabbremers auf ein per Überschalllexpansion erzeugtes Molekülpaket.

2.3 DC-Stark-Effekt

Als Stark-Effekt bezeichnet man die Verschiebung und Aufspaltung von Energieniveaus in einem Atom oder Molekül aufgrund der Wechselwirkung zwischen seinem Dipolmoment mit einem äußeren elektrischen Feld. Man unterscheidet allgemein zwischen dem Stark-Effekt in statischen Feldern (DC-Stark-Effekt), der unter anderem in den Starkabbremern (Abschnitt 2.5) ausgenutzt wird, und dem für die Mikrowellenlinse interessanten Stark-Effekt in Wechselfeldern (AC-Stark-Effekt).

Nimmt man das Molekül als einen symmetrischen, ungestörten Kreisel an, dann sieht der Hamilton-Operator unter Vernachlässigung aller Freiheitsgrade bis auf die Rotation folgendermaßen aus:

$$\hat{H}_0 = B\hat{J}^2 + (C - B)\hat{J}_z^2. \quad (2.3)$$

B und C stehen für die Rotationskonstanten des Systems und hängen von den Hauptträgheitsmomenten des Moleküls ab, \hat{J} bezeichnet den Gesamtdrehimpulsoperator und \hat{J}_z die Projektion des Gesamtdrehimpulsoperators auf die Molekülachse. Die Energie eines solchen Zustands kann mithilfe der Eigenwerte J und K von \hat{J} und \hat{J}_z dargestellt werden:

$$W = BJ(J + 1) + (C - B)K^2. \quad (2.4)$$

Unter dem Einfluss eines äußeren elektrischen Feldes hat der Gesamtdrehimpuls eine Vorzugsrichtung V. Zur Beschreibung des Systems muss ein neuer Operator \hat{J}_V mit dem Eigenwert M eingeführt werden, der der Projektion des Gesamtdrehimpulses auf die Vorzugsrichtung entspricht.

Für hinreichend kleine Felder kann das elektrische Feld als eine kleine Störung des Systems betrachtet werden. Nach erster Ordnung Störungstheorie wird der Hamilton-Operator folgendermaßen angegeben:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 - \vec{\mu} \cdot \vec{E}. \quad (2.5)$$

Bei Molekülen ohne ein permanentes Dipolmoment bewirkt das äußere elektrische Feld eine Polarisierung des Moleküls proportional zum E-Feld selbst. Abhängig von der elektrischen Polarisierbarkeit des Moleküls α wird ein Dipolmoment induziert:

$$\vec{\mu}_{ind}(\vec{E}) = \alpha\vec{E}. \quad (2.6)$$

Dieses induzierte Dipolmoment führt zu einer Verschiebung der Energieniveaus, die quadratisch von der Feldstärke E abhängt:

$$\Delta W = -\alpha \int_0^{\vec{E}} \vec{\mu}_{ind} \cdot \vec{E} \, d\vec{E} = -\frac{1}{2}\alpha\vec{\mu}_{ind} \cdot \vec{E}^2 \quad (2.7)$$

Man spricht daher vom **quadratischen Stark-Effekt**.

Besitzt das Molekül hingegen ein permanentes Dipolmoment und ist die Projektion des Gesamtdrehimpulses auf die Molekülachse von Null verschieden, dann lautet das mittlere Dipolmoment in Richtung des elektrischen Feldes:

$$\bar{\mu}_E = \mu_J \frac{M}{\sqrt{J(J+1)}} \quad , \text{ mit } \mu_J = \mu \frac{K}{\sqrt{J(J+1)}}. \quad (2.8)$$

Daraus ergibt sich die Starkenergie erster Ordnung zu:

$$W = W_0 - \mu \frac{KM}{J(J+1)} E \quad (2.9)$$

Nach Gleichung (2.9) spaltet ein im Nullfeld entarteter Zustand in $2J+1$ Niveaus auf, deren energetische Abstände mit zunehmender Feldstärke linear zunehmen.

Man spricht vom linearen Stark-Effekt oder vom **Stark-Effekt erster Ordnung**.

Je nachdem, ob ein Zustand $MK < 0$ oder $MK > 0$ erfüllt, gewinnt oder verliert er mit zunehmendem elektrischen Feld Stark-Energie. Man spricht auch von tieffeldsuchenden ($MK < 0$) und hochfeldsuchenden ($MK > 0$) Zuständen. Diese Eigenschaft ist essentiell für die Manipulation von polaren Molekülen mit statischen elektrischen Feldern.

Aus Gleichung (2.9) erfolgt keine Aufspaltung für $K=0$ und lineare Moleküle in $^1\Sigma$ -Zuständen, weil das Dipolmoment senkrecht zur Rotationsachse steht. Mit einer Störungsrechnung zweiter Ordnung, die auch die Wechselwirkung zwischen benachbarten Energieniveaus berücksichtigt, kann auch für $K=0$ eine Aufspaltung bestimmt werden. Diese geht jedoch mit dem Quadrat der Feldstärke (**Stark-Effekt zweiter Ordnung**) ein und ist im Allgemeinen deutlich schwächer als die Aufspaltung aus dem Stark-Effekt erster Ordnung. Eine detaillierte Beschreibung des DC-Stark-Effekts bis zur zweiten Ordnung ist in den Referenzen [55] und [56] gegeben.

2.3.1 DC-Stark-Effekt von Ammoniak

Ammoniak ist eines der einfachsten symmetrischen Kreiselmoleküle und zeichnet sich dadurch als Lehrbuchbeispiel für den Stark-Effekt erster Ordnung aus. Cha-

rakteristisch für Ammoniak ist das Doppelminimumpotential, das aus der Pyramidenstruktur resultiert. Das Stickstoffatom bildet die Spitze der Pyramide über der Ebene der Wasserstoffatome und ist in der Lage, durch diese hindurch zu tunneln. Die Tunnelbarriere bewirkt eine Aufspaltung aller Energieniveaus gemäß ihrer Parität in symmetrische und antisymmetrische Zustände, wie sie in Abbildung 2.3 zu sehen sind. Hier stehen die horizontalen Linien für die Vibrationsmoden der ν_2 -Regenschirmschwingung, die durch die Tunnelbarriere aufgespalten werden. Für das $\nu_2=0$ - Niveau beträgt diese Aufspaltung $0,79 \text{ cm}^{-1}$ [55]. Für detaillierte Angaben zu den Eigenschaften von Ammoniak in elektrischen Feldern sei auf Referenz [57] verwiesen. Für die hier beschriebenen Abbrems- und Fokussierexperimente wird das

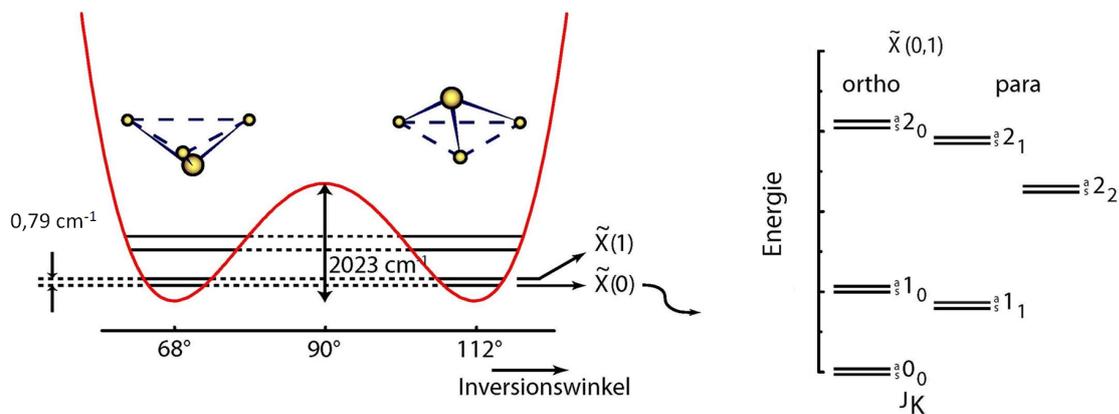


Abbildung 2.3: Inversionsdoppelminimumpotential (links) und Rotations-Energieniveauschema (rechts) für ortho- und para- NH_3 . Die Inversionsbewegung sorgt für eine Aufspaltung der Rotationsenergieniveaus in symmetrische (s) und anti-symmetrische (a) Zustände.

nach der Überschallexpansion zu rund 60% besetzte Ammoniakisotopolog $^{14}\text{NH}_3$ im $|J, K\rangle = |1, 1\rangle$ -para-Grundzustand verwendet [58]. Ein äußeres elektrisches Feld führt zu Wechselwirkungen der symmetrischen und antisymmetrischen Komponenten, die sich daraufhin abstoßen, wie in Abbildung 2.4 für den $J=K=1$ -para-Grundzustand gezeigt wird. Dieser Zustand ist im Nullfeld zum einen Inversionsaufgespalten, zum anderen sind die beiden inversionsaufgespaltenen Niveaus 2-fach entartet. Diese Entartung wird im äußeren elektrischen Feld aufgehoben und ist abhängig von Ori-

entierung des Moleküls zum Feld ($M = -1, 0, 1$). Diese insgesamt vier Niveaus sind gegen die Feldstärke (bis 150 kV/cm) aufgetragen. Ab einer bestimmten Feldstärke

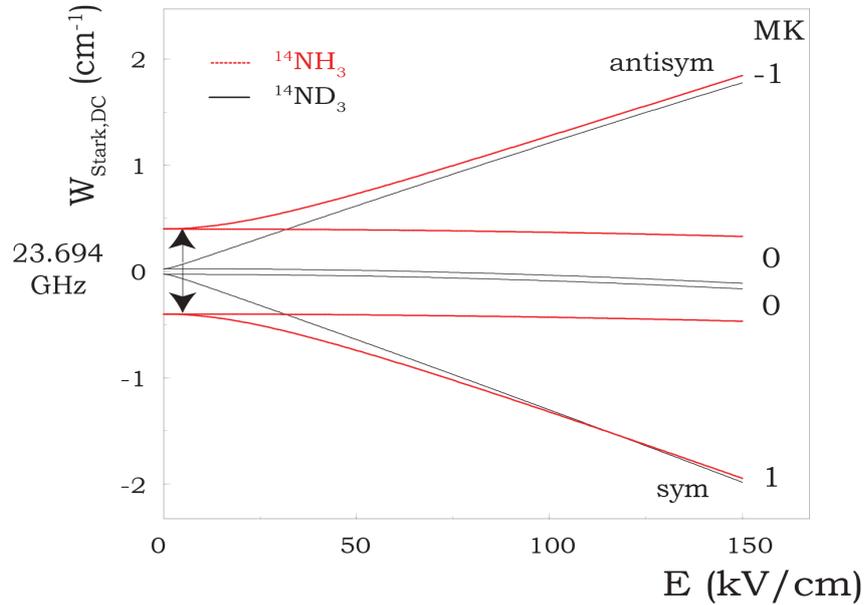


Abbildung 2.4: Stark-Energien für *para*- $^{14}\text{NH}_3$ und *para*- $^{14}\text{ND}_3$ im $|J, K\rangle = |1, 1\rangle$ -Zustand

kann die Starkenergie zunehmend als linear beschrieben werden. Diese Feldstärke ist je nach Isotopolog verschieden und hängt für den gleichen Zustand ausschließlich von der Inversionsaufspaltung ab. Für $^{14}\text{ND}_3$ mit $W_{inv}=0,05 \text{ cm}^{-1}$ tritt diese Linearisierung schon bei wenigen kV/cm ein, bei $^{14}\text{NH}_3$ mit $W_{inv}=0,79 \text{ cm}^{-1}$ hingegen wird der Stark-Effekt erst ab etwa 50 kV/cm linear [55].

Die Inversionsaufspaltung ist klein im Hinblick auf die Rotationskonstanten, groß jedoch in Bezug auf die Hyperfeinaufspaltung der Rotationsniveaus, die aus der Quadrupolkopplung des Stickstoff-Kernspins $I(^{14}\text{N})=1$ mit den Hüllelektronen und der Spin-Rotationskopplung der Hüllelektronen mit den Wasserstoffkernspins $I(^1\text{H})=1/2$ herrührt. Deswegen kann die Hyperfeinstruktur vernachlässigt werden, so dass die von der Störung durch das elektrische Feld betroffenen Komponenten des Inversionsdoublets aus $MK < 0$ und $MK > 0$ als Zwei-Niveau-System betrachtet werden können. Die Matrixdarstellung des Hamilton-Operators, der die Wechselwirkung

mit dem elektrischen Feld berücksichtigt, hat dann folgende Form:

$$H = \begin{pmatrix} W_{inv} & -\mu \frac{KM}{J(J+1)} E \\ -\mu \frac{KM}{J(J+1)} E & 0 \end{pmatrix}$$

mit der Inversionsaufspaltung W_{inv} des betroffenen Zustandspaares im Nullfeld (siehe Abbildung 2.4). Die Eigenenergien $\epsilon_{1,2}$ von H , und damit die energetische Abhängigkeit der beiden Inversionsniveaus vom elektrischen Feld, ergeben sich aus der charakteristischen Gleichung

$$\begin{aligned} \epsilon_{1,2}^2 - \epsilon_{1,2} W_{inv} - \left(\mu E \frac{MK}{J(J+1)} \right)^2 &= 0 \\ \epsilon_{1,2} = W_{Stark,DC}^1 &= \frac{W_{inv}}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{W_{inv}}{2} \right)^2 + \left(\mu E \frac{MK}{J(J+1)} \right)^2}. \end{aligned} \quad (2.10)$$

Der Term mit der positiven Wurzel beschreibt das Verhalten von Molekülen in tieffeldsuchenden Zuständen (antisymmetrisch), wohingegen der Term mit der negativen Wurzel für Moleküle in hochfeldsuchenden Zuständen (symmetrisch) gilt.

2.4 AC-Stark-Effekt

Die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung für ein polares Teilchen in einem elektromagnetischen Feld lautet (vgl. 2.5):

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = \hat{H}_0 \psi - \vec{\mu} \vec{E} \psi$$

mit dem feldfreien Hamiltonoperator \hat{H}_0 , der elektrischen Feldstärke \vec{E} und dem Dipolmomentoperator $\vec{\mu}$. Nehmen wir das Feld als ein linear polarisiertes, monochromatisches Mikrowellenfeld der Frequenz ω wie bei den in dieser Arbeit beschriebenen Experimenten an, dann gilt an einem bestimmten Ort für die elektrische Feldstärke:

$$E_x = \mathcal{E} \cdot \cos(\omega t).$$

Damit ergibt sich die Formel für die Intensität der Mikrowellenstrahlung zu $I_{MW} = (c/8\pi)\mathcal{E}^2$. Wir nehmen weiterhin an, dass der Wellenvektor der Mikrowelle in Rich-

tung der z-Achse zeigt. Die Dipolwechselwirkung $\hat{V} = -\vec{\mu}\vec{E}$ kann dann folgendermaßen beschrieben werden:

$$\hat{V} = -\frac{\mathcal{E}}{2} (\mu_z e^{-i\omega t} + \mu_z e^{i\omega t}).$$

μ_z bezeichnet die Komponente des Dipolmomentoperators in z-Richtung.

Die Matrixelemente des Dipolmomentoperators können mit der Wigner-Eckart-Formel berechnet werden:

$$\langle n' J' M' | \mu_z | n J M \rangle = (-1)^{J'-M'} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ -M' & 0 & M \end{pmatrix} \langle n' J' || \mu || n J \rangle.$$

Hier ist $\langle n' J' || \mu || n J \rangle$ das reduzierte Matrixelement des Dipoloperators. Die Quantenzahl n bezeichnet die elektronischen Zustände, J und M sind Quantenzahlen für die Rotationszustände. Unter Berücksichtigung der Dipolwechselwirkung wird die Schrödinger-Gleichung geschrieben als

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = \hat{H}_0 \psi - \frac{1}{2} (\hat{\mu}_z e^{i\omega t} + \hat{\mu}_z e^{-i\omega t}) \psi.$$

Die Lösung der Schrödinger-Gleichung kann in eine Fourierreihe aus Harmonischen der Form $e^{im\omega t}$ entwickelt werden:

$$\psi = \sum_{m=-\infty}^{m=+\infty} \sum_n a_{m,n} e^{im\omega t - i\epsilon t/\hbar} \psi_n.$$

Hier sind die ψ_n die Eigenfunktionen des Hamiltonoperators für ein Teilchen im feldfreien Raum $\hat{H}_0 \psi_n = E_n \psi_n$. Für die Amplituden $a_{m,n}$ erhält man:

$$\epsilon \cdot a_{m,n} = (E_n + m\hbar\omega) a_{m,n} - \frac{1}{2} \mathcal{E} \left[\sum_{n'} (\mu_z)_{n,n'} a_{m-1,n'} + \sum_{n'} (\mu_z)_{n,n'} a_{m+1,n'} \right].$$

Den Eigenwert ϵ nennt man Quasienergie. Er bezeichnet die Energie eines Mischzustandes aus dem Partikel und m Photonen des Feldes. In guter Näherung zur nullten Ordnung ergibt sich also $\epsilon = E_n + m\hbar\omega$. Die Matrixelemente $-\frac{1}{2} \mathcal{E} (\mu_z)_{n,n'}$ koppeln die Quasienergieniveaus $E_{n'} + m'\hbar\omega$ und $E_n + m\hbar\omega$ mit $\Delta m = \pm 1$. Eine Veranschaulichung dieses sogenannten „Dressed-State“-Bildes ist in Abbildung 2.5 zu sehen. Das

elektromagnetische Feld verschiebt die Energieniveaus und insbesondere bei kleiner Frequenzverschiebung Δ zwischen dem Molekülübergang und der Frequenz des Feldes können die Energieniveaus $E_{n'}$ und E_n deutlich stärker wechselwirken als im feldfreien Fall. Die Gleichung für die Quasienergie kann nun in eine Matrixschreibwei-

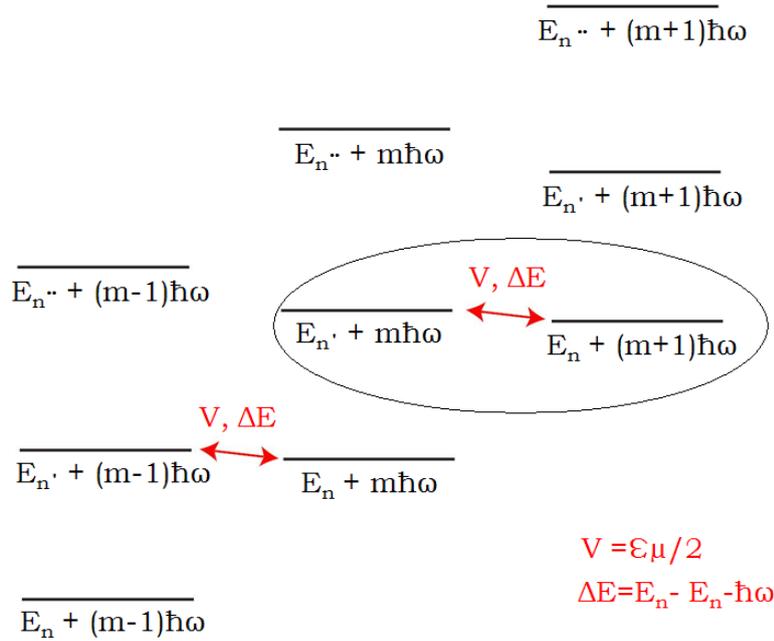


Abbildung 2.5: Quasienergieniveaus nach dem "Dressed-State"-Bild für Quantenpartikel mit einem Dipolmoment in elektromagnetischen Feldern. Vertikal ist die Quasienergie ϵ aufgetragen. Die drei Tripel aus Energiezuständen korrespondieren zu unterschiedlichen Feldern mit $(m-1)$, m und $(m+1)$ Photonen, d.h. die Quasienergiezustände sind um jeweils den Betrag $\hbar\omega$ erhöht. Daraus resultiert eine Kopplung zwischen den Zuständen $[E_{n'} + (m-1)\hbar\omega]$ und $[E_n + (m)\hbar\omega]$, die je nach Frequenzverschiebung zwischen $\hbar\omega$ und $E_{n'} - E_n$ deutlich größer sein kann, als zwischen den ungestörten Energiezuständen $E_{n'}$ und E_n .

se mit dem Amplitudenvektor $\vec{a} = (\dots, a_{m,n}, a_{m,n+1}, \dots, a_{m+1,n}, a_{m+1,n+1}, \dots)$ übersetzt werden:

$$\mathcal{H}\vec{a} = \epsilon\vec{a}$$

mit dem erweiterten Hamiltonoperator

$$\hat{\mathcal{H}} = \begin{bmatrix} \ddots & \vdots & 0 & 0 \\ \cdots & E_n + m\hbar\omega & -\frac{1}{2}\mathcal{E}(\mu_z) & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2}\mathcal{E}(\mu_z) & E_n + (m+1)\hbar\omega & \cdots \\ 0 & 0 & \vdots & \ddots \end{bmatrix}. \quad (2.11)$$

Für eine vollständige Beschreibung des AC-Stark-Effekts bzw. allgemeiner gesprochen des sogenannten Light-Shifts sei auf die Referenzen [59] und [60] verwiesen.

2.4.1 AC-Stark-Effekt von Ammoniak

Für das Zwei-Niveau System aus den Zuständen $|1, 1, s\rangle$ und $|1, 1, a\rangle$ im Ammoniakmolekül vereinfacht sich der erweiterte Hamilton-Operator (2.11) zu

$$\hat{\mathcal{H}} = \begin{bmatrix} 0 & -\frac{1}{2}\mathcal{E}\mu_{perm}\frac{MK}{J(J+1)} \\ -\frac{1}{2}\mathcal{E}\mu_{perm}\frac{MK}{J(J+1)} & \hbar\omega - W_{inv} \end{bmatrix}.$$

Man erhält die Energieeigenwerte, indem die charakteristische Gleichung

$$\epsilon^2 - \text{spur}(\mathcal{H}) \cdot \epsilon - \det(\mathcal{H}) = 0$$

gelöst wird. Das bedeutet

$$\epsilon^2 - (\hbar\omega - W_0) \cdot \epsilon - \left(\frac{\mu\mathcal{E}}{2} \frac{MK}{J(J+1)} \right)^2 = 0. \quad (2.12)$$

Die Lösung der Gleichung (2.12) lautet dann

$$W_{Stark,AC}^1 = \frac{\Delta}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{\Delta}{2}\right)^2 + \left(\mu\mathcal{E}\frac{MK}{2J(J+1)}\right)^2}. \quad (2.13)$$

Δ ist hierbei die Frequenzverschiebung (engl. *detuning*) zwischen Wechselfeld und Molekülresonanz: $\Delta = \hbar\omega - W_{inv}$. Die Quantenzahlen M, K und J, die elektrische Feldstärke E und das Dipolmoment μ sind analog definiert wie in Abschnitt 2.3 zum DC-Stark-Effekt.

Der AC-Stark-Effekt hat mehrere besondere Eigenschaften, die wir uns für unser Experiment zu Nutze machen können. Zum Einen ist die Wechselwirkung zwischen

den einzelnen interagierenden Niveaus nicht von deren Energieunterschied im Nullfeld, also der Tunnelaufspaltung W_{inv} (siehe Abbildung 2.3) wie beim DC-Stark-Effekt abhängig, sondern von der Frequenzverschiebung Δ zwischen elektromagnetischem Feld $\hbar\omega$ und W_{inv} . Damit lassen sich bei geschickter Wahl des *detuning* deutlich höhere Wechselwirkungsenergien als beim DC-Stark-Effekt verwirklichen. Außerdem können je nach Frequenzverschiebung Δ sowohl DC-tiefeldsuchende als auch DC-hochfeldsuchende Zustände eines Moleküls als AC-hochfeldsuchend oder als AC-tiefeldsuchend gewählt werden:

1. Für eine in Bezug auf den molekularen Übergang blau-verschobene elektromagnetische Welle ($\Delta > 0$) ist ein DC-tiefeldsuchender Zustand in einem AC-Feld hochfeldsuchend und vice versa.

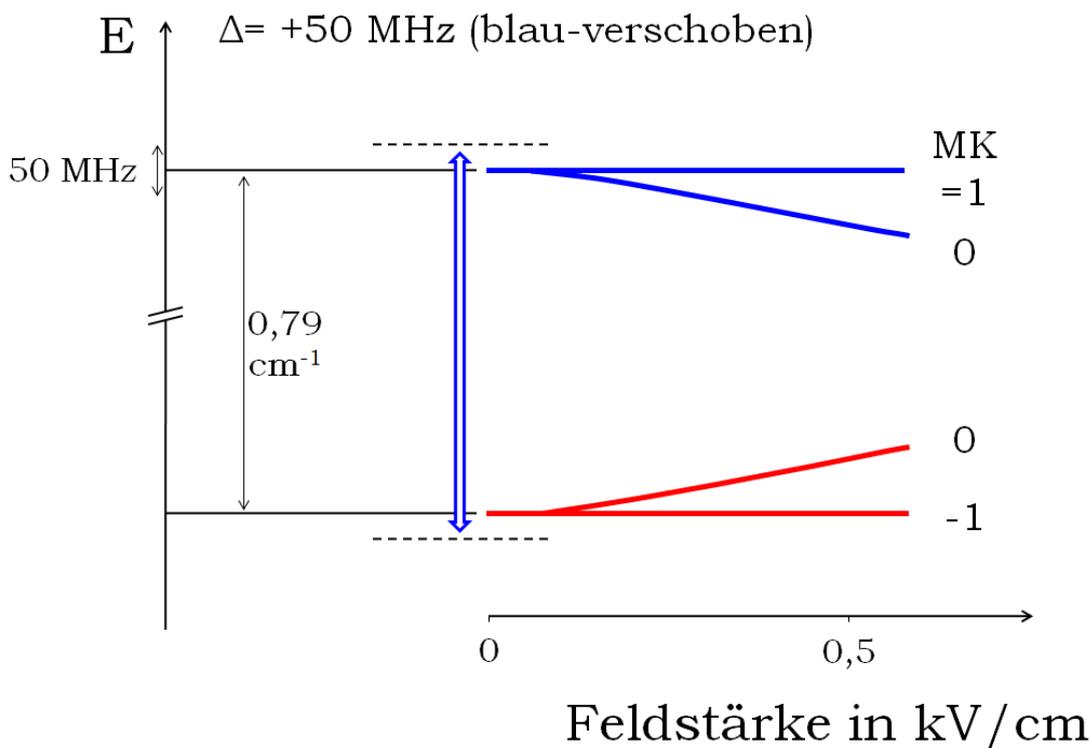


Abbildung 2.6: Grafische Darstellung der AC-Starkenergie von $^{14}\text{NH}_3$ über der Feldstärke für eine blau-verschobene ($\Delta = 50 \text{ MHz}$) Mikrowelle. Dargestellt sind die Starkenergien für den $|J, K\rangle = |1, 1\rangle$ Zustand. Zu beachten ist das Eintreten einer Linearisierung der Starkenergie für die $MK = \pm 1$ -Zustände schon bei etwa $0,25 \text{ kV/cm}$.

2. Für eine in Bezug auf den molekularen Übergang rot-verschobene elektroma-

gnetische Welle ($\Delta < 0$) ist ein DC-tieffeldsuchender (DC-hochfeldsuchender) Zustand ebenfalls AC-tieffeldsuchend (AC-hochfeldsuchend).

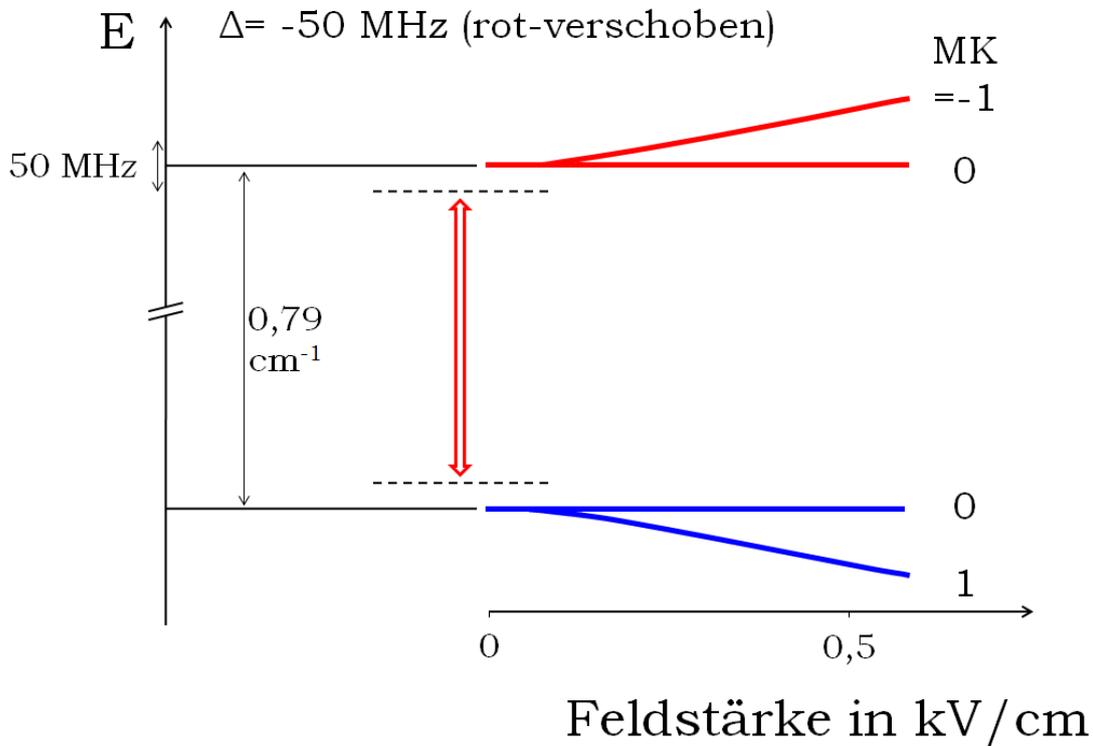


Abbildung 2.7: Grafische Darstellung der AC-Starkenergie von $^{14}\text{NH}_3$ über der Feldstärke für eine rot-verschobene ($\Delta = -50 \text{ MHz}$) Mikrowelle. Dargestellt sind die Starkenergien für den $|J,K\rangle = |1,1\rangle$ Zustand. Zu beachten ist das Eintreten einer Linearisierung der Starkenergie für die $MK = \pm 1$ -Zustände schon bei etwa $0,25 \text{ kV/cm}$.

Diese Tatsache hat Folgen für die Manipulation von Molekülen mithilfe elektromagnetischer Strahlung. Es ist möglich, sowohl Moleküle in DC-tieffeldsuchenden als auch in DC-hochfeldsuchenden Zuständen mit demselben Aufbau zu manipulieren, indem nur das *detuning* verändert wird. Außerdem können insbesondere mit Mikrowellenstrahlung sehr kleine *detuning* realisiert werden, da im Gegensatz zu optischen Übergängen die Lebensdauer der angeregten Rotationszustände im Allgemeinen sehr lang sind. Diese kleinen *detunings* können schon bei relativ niedrigen Feldstärken zu einer Linearisierung des AC-Stark-Effekts führen und damit hohe Wechselwirkungsenergien bei vergleichsweise geringer Feldstärke ermöglichen (siehe Abbildungen 2.6 und 2.7).

2.5 Starkabbremsler

Der Starkabbremsler ist das Analogon eines Linearbeschleunigers für neutrale Teilchen und macht sich den DC-Stark-Effekt zu Nutze (vgl. Kapitel 2.3), um polare Moleküle kinetische Energie zu entziehen und sie somit abzubremsen. Die Methode der Stark-Abbremsung [61, 62] ist mittlerweile etabliert und konnte bisher erfolgreich zur Abbremsung einer Reihe polarer Moleküle verwendet werden, wie z.B. von metastabilem CO ($a^3\Pi$) [61], ND_3 und NH_3 [38, 63], OH [41, 64, 65] und OD [66], metastabilem NH ($a^1\Delta$) [67], H_2CO [68] sowie SO_2 [69] in tieffeldsuchenden Zuständen; außerdem metastabiles CO ($a^3\Pi$) [40], OH [41], YbF [42] und Benzonnitril [43] in hochfeldsuchenden Zuständen.

Im Gegensatz zur Situation in einem homogenen elektrischen Feld (Abbildung 2.8) erfährt ein Dipol in einem inhomogenen Feld (Abbildung 2.9) eine Kraft, die je nach Orientierung des Dipolmoments parallel oder antiparallel zum Feld, zu höheren oder niedrigeren Feldstärken gerichtet ist. Man spricht, wie in Kapitel 2.3 näher beschrieben, von Molekülen in hoch- oder tieffeldsuchenden Zuständen.

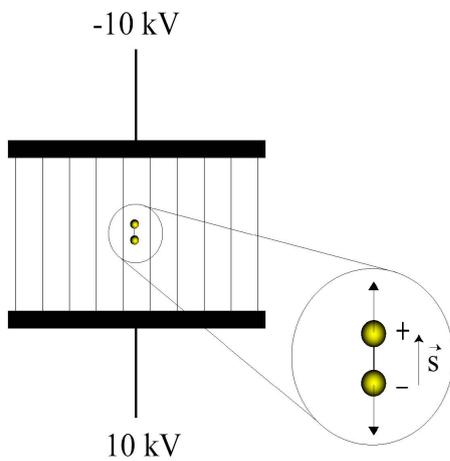


Abbildung 2.8: Polares Molekül im homogenen elektrischen Feld eines planparallelen Plattenkondensators.

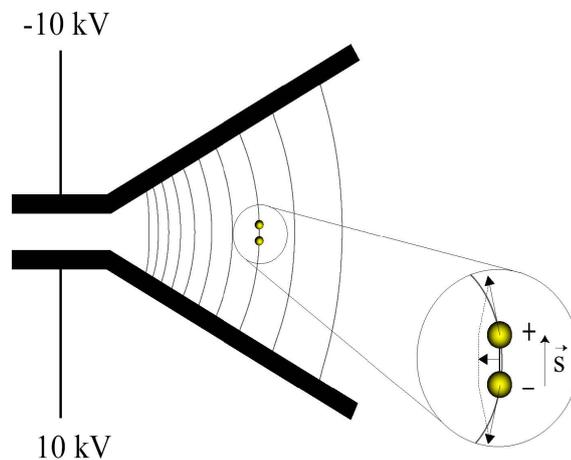


Abbildung 2.9: Polares Molekül im inhomogenen elektrischen Feld eines modifizierten Plattenkondensators.

Der in dieser Arbeit verwendete Starkabbremsler besteht aus einer Reihe von par-

allelen Elektrodenpaaren, die, wie in Abbildung 2.10 dargestellt, senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Molekülstrahls orientiert sind. Die Elektroden besitzen einen Durchmesser von 3 mm und sind innerhalb eines Paares um 2 mm getrennt, während die Elektrodenpaare jeweils mit einem Abstand von 2,5 mm angeordnet sind. Ein polares Molekül, das sich einem Elektrodenpaar auf Hochspannung (*high voltage*, HV) nähert, passiert ein inhomogenes elektrisches Feld, welches umso stärker wird, je näher das Molekül den Elektroden kommt. Ein Molekül in einem tieffeldsuchenden Zustand wandelt einen Teil der kinetischen Energie in Starkenergie (potentielle Energie) um, die letztlich in der Spannungsversorgung abfällt. Blicke die Spannung eingeschaltet, würde das Molekül hinter dem Elektrodenpaar ein abnehmendes elektrisches Feld passieren, die Starkenergie wieder verlieren und beschleunigt werden. Der Nettoeffekt in der Geschwindigkeit wäre dann null.

Schaltet man allerdings das Feld ab, bevor das Molekül die Elektroden passiert und das Feld wieder verlässt, dann gewinnt es die verlorene Energie nicht zurück und ist in Molekülstrahlrichtung abgebremst geworden. Pro Elektrodenpaar verlieren die Moleküle nur wenig kinetische Energie, so dass dieser Vorgang häufig wiederholt werden muss, um Moleküle sehr langsam zu machen oder sogar zum Stillstand zu bringen. In dem hier beschriebenen Experiment mit Ammoniak $^{14}\text{NH}_3$ stehen uns 95 Elektrodenpaare zur Abbremsung zur Verfügung.

Eine wichtige Größe für das Maß der entzogenen kinetischen Energie pro Stufe oder Elektrodenpaar ist der Phasenwinkel ϕ . Dieser gibt an, in welcher Position z sich das Molekül in Bezug auf die Elektroden befindet ($\phi = z\pi/L$), wenn die Spannungen umgeschaltet werden. Der Phasenwinkel ist im unteren Bild der Abbildung 2.10 aufgetragen. Die Position $\phi=0^\circ$ befindet sich genau zwischen dem geerdeten Elektrodenpaar und dem Elektrodenpaar auf $\pm HV$.

Bei einem Phasenwinkel $\phi < 0^\circ$ wird das Molekül effektiv beschleunigt. Für genau $\phi = 0^\circ$ ist der Nettoeffekt null, während für positive Werte das Molekül effektiv abgebremst wird. Als synchrones Molekül definiert man genau das Molekül, für das bei jedem Umschaltzeitpunkt der Phasenwinkel $\phi_0 = c$ konstant ist. Das synchrone

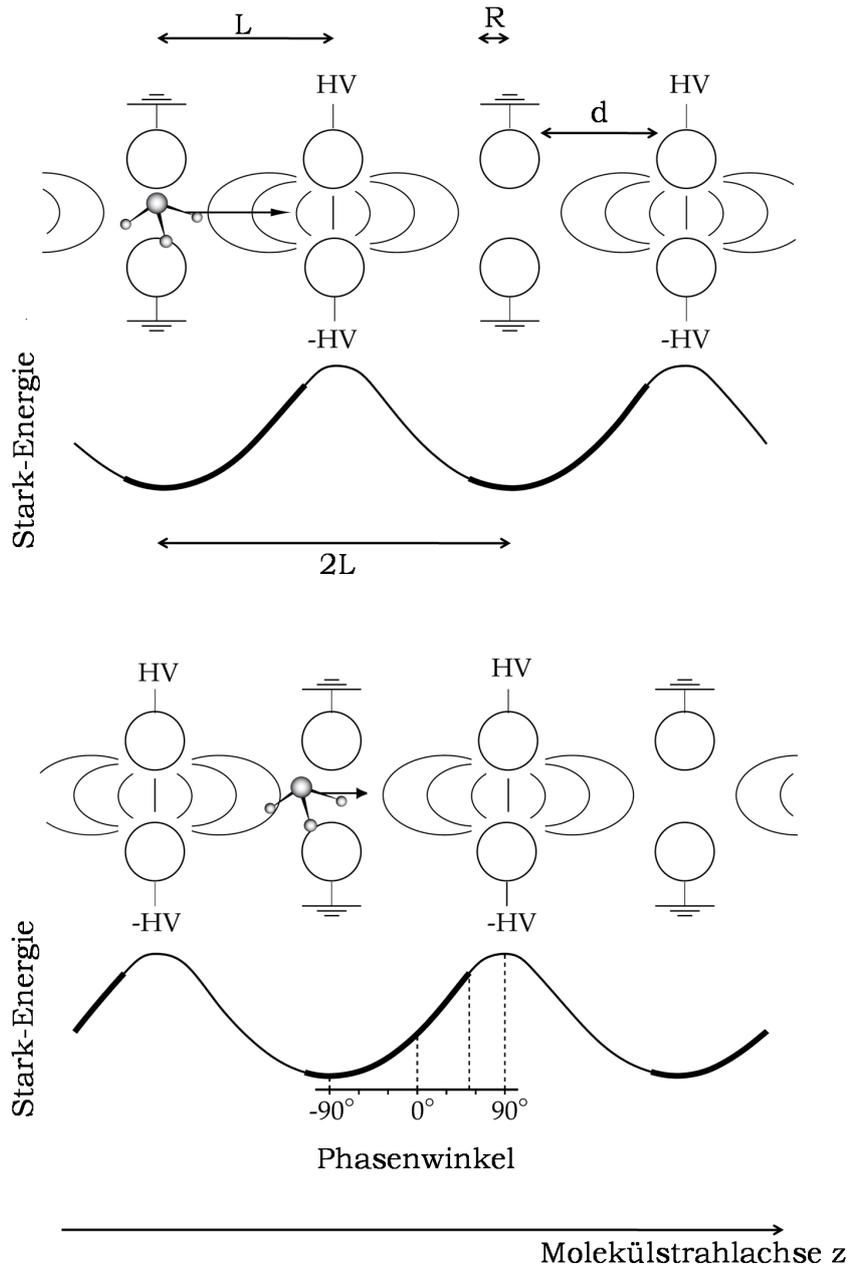


Abbildung 2.10: Schematische Darstellung eines Starkabbremsers, bestehend aus den parallelen Elektrodenpaaren mit Radius R und Abstand $L=2R+d$. Die Elektrodenpaare sind immer abwechselnd geerdet und auf Hochspannung ($\pm HV$) geschaltet. Im oberen Bild ist das erste Elektrodenpaar geerdet, während im unteren das zweite Elektrodenpaar geerdet ist. Zwischen den Elektroden sind einige Linien konstanter Feldstärke aufgetragen.

Zudem ist jeweils die Starkenergie als Funktion des Ortes auf der Molekülstrahlachse z dargestellt. (Man beachte die Periodizität von $2L$.) Der Zeitraum, für den die jeweilige Spannungskonfiguration bei einem Phasenwinkel von 53° für das synchrone Molekül eines Molekülpakets eingeschaltet ist, wurde mit dickeren Linien gekennzeichnet. [70]

Molekül soll pro Stufe also immer gleich viel kinetische Energie verlieren, wodurch die Schaltzeiten im Abbremsprozess von Stufe zu Stufe länger werden.

Betrachten wir ein Molekülpaket mit einer Geschwindigkeitsverteilung um das synchrone Molekül mit der Geschwindigkeit $v = v_0$ im Abbremsers, dann werden die schnelleren (langsameren) Moleküle im Paket dem synchronen Molekül voraus eilen (zurück bleiben). Zu jedem Umschaltzeitpunkt erfahren die schnelleren (langsamere) Moleküle einen größeren (kleineren) Phasenwinkel und werden dementsprechend stärker (weniger stark) abgebremst. Dieser Vorgang entspricht einer longitudinalen Fokussierung und wird als Phasenstabilität bezeichnet. Die Phasenstabilität hängt vom Phasenwinkel des synchronen Moleküls ab und wird umso kleiner, je näher der Phasenwinkel dem Maximum von 90° kommt. Zur longitudinalen Fokussierung im Abbremsers kommt eine transversale Fokussierung für Moleküle in tieffeldsuchenden Zuständen hinzu, da das Feldminimum in transversaler Richtung auf der Strahlachse liegt.

Ein weiterer Effekt im Starkabbremsers ist die Zustandsselektivität. Sie bezieht sich darauf, dass allgemein nur Moleküle in einem ganz bestimmten tieffeldsuchenden Zustand phasensynchron abgebremst werden können. Andere Zustände haben einen anderen Stark-Effekt und bedürfen daher anderer Schaltzeiten im Abbremsprozess. Auch Moleküle in hochfeldsuchenden Zuständen können allgemein nicht abgebremst werden, da nach dem Earnshaw-Theorem kein Feldmaximum im freien Raum existieren kann, sondern immer an den Elektroden liegt. Hochfeldsuchende Moleküle werden also defokussiert und kollidieren im Extremfall sogar mit den Elektroden. Moleküle mit nur vernachlässigbarem Stark-Effekt werden nicht abgebremst bzw. sind unsynchron zu den Schaltzeiten und verlassen den Abbremsers deutlich früher. Für $^{14}\text{NH}_3$ wird also nur der $\tilde{X}, v = 0, |J, K \rangle = |1, 1 \rangle, \text{MK}=-1$ - Zustand effektiv abgebremst, so dass die Experimente mit ausschließlich einem einzelnen Quantenzustand von Ammoniak durchgeführt werden können.

Kapitel 3

Resonatoren & Wellenleiter

Der Begriff Resonator bezeichnet ein Bauteil oder allgemeiner ein System, das Resonanzen besitzt. Eine Resonanz ist nichts anderes als eine Eigenschwingung, die durch Energiezufuhr von außen angeregt wird und mit größerer Amplitude als alle anderen Frequenzen schwingt. Resonatoren gliedern sich in zwei Teilbereiche:

1. Resonatoren für mechanische Schwingungen
2. Resonatoren für elektromagnetische Schwingungen

Ein eindringliches Beispiel für einen mechanischen Resonator und den damit verknüpften Begriff der Resonanzkatastrophe ist die Tacoma-Narrows-Hängebrücke im US-Bundesstaat Washington, die am 7.11.1940 durch starken Wind in eine Torsionsschwingung geriet und schließlich bei Annäherung an die Resonanz zerriss.

Ein Beispiel für einen elektromagnetischen Resonator sind Fabry-Pérot Interferometer. Diese bestehen im Prinzip nur aus zwei hochreflektierenden planaren Spiegeln in einem Abstand L . Gelangt Licht in das Interferometer, dann wird es zwischen den beiden Spiegeln hin und her reflektiert, wobei die Anzahl der Reflexionen von der Reflektivität der Spiegel R abhängt. Die häufigen Reflexionen führen zu einer Überlagerung des eingestrahnten Lichts mit sich selbst, wobei unter Vernachlässigung eventueller Phasensprünge bei der Reflexion

$$\delta = \frac{2\pi}{\lambda} 2L \cos \theta$$

die Phasendifferenz δ in Abhängigkeit vom Einstrahlwinkel θ , der Wellenlänge λ und dem Spiegelabstand L im Vakuum angibt. Phasengleichheit und damit konstruktive Resonanz tritt für $\delta = 2n\pi$, $n = 0, 1, 2, \dots$ auf. Im Falle einer einzigen Reflexion tritt destruktive Interferenz zwar nur bei $\delta = (2 + 1)n\pi$ $n = 0, 1, \dots$ auf, mit zunehmender Reflektivität der Spiegel, also unter Zunahme der sich überlagernden reflektierten Teilwellen, tritt destruktive Interferenz für immer mehr Phasenunterschiede auf. Im Idealfall 100%iger Reflektivität verschwinden alle Teilwellen, die nicht $\delta = 2n\pi$, $n = 1, 2, \dots$ erfüllen, durch destruktive Interferenz.

Offensichtliche Eigenschaft eines solchen Interferometers ist die Wellenlängenselektivität. Wird der Einstrahlwinkel $\theta = \theta_c$ festgelegt und der Abstand der Spiegel L passend gewählt, dann fungiert das Interferometer als Filter für bestimmte Wellenlängen $\lambda_x = 2L/n \cdot \cos \theta_c$. Nur diese Wellenlänge des von einer Seite eingestrahlten Lichts wird das Etalon passieren können. Eine weitere Konsequenz dieses Effekts ist die Felderhöhung, resultierend aus der konstruktiven Interferenz der Wellenlänge λ_x innerhalb des Interferometers. Im Zusammenhang mit der Feldverstärkung spricht man auch von *Resonanz*, wodurch das Interferometer zu einem *Resonator* wird. Das Maß für die Erhöhung der Feldstärke oder der Feldintensität in einem Resonator ist die Güte Q . Diese gibt den Quotienten aus gespeicherter Energie und Verlustleistung an:

$$Q = \omega_0 \frac{\text{gesp. Energie}}{\text{Verlustleistung}} = 2\pi \frac{\text{gesp. Energie}}{\text{verlorene Energie in einer Periode}} \quad (3.1)$$

mit der Resonanzfrequenz ω_0 .

Die vorliegende Arbeit legt ihren Fokus speziell auf elektromagnetische Wellen im Frequenzbereich von etwa 300 MHz bis 300 GHz, bzw. mit Wellenlängen von 1 m bis 1 mm, den sogenannten Mikrowellen, die häufig nochmals in Radiofrequenzwellen, Mikrowellen und Millimeterwellen unterteilt werden. Wie oben bereits diskutiert, werden Resonatoren im Allgemeinen eingesetzt, um hohe Energiedichten definierter Intensitätsverteilung zu erzeugen. Dieser Effekt wird auch in dem hier beschriebenen Projekt genutzt, um ein möglichst starkes Mikrowellenfeld für die Fokussierexperi-

mente zu erzeugen. Resonatoren für elektromagnetische Wellen lassen sich zunächst entsprechend ihrem Aufbau in zwei verschiedene Klassen einteilen:

offene und geschlossene Resonatoren. Zu den geschlossenen Resonatoren zählen die Hohlraumresonatoren, die in ihrer einfachsten Ausführung aus einem rechteckigen Hohlleiter bestehen und an den Stirnflächen leitend verschlossen sind. Hohlraumresonatoren können auch zylindersymmetrisch oder kugelsymmetrisch sein.

Zu den offenen Resonatoren gehören Fabry-Pérot Typus Resonatoren, wie sie in der Mikrowellen-Spektroskopie häufig verwendet und in Abschnitt 3.4 näher beschrieben werden.

3.1 Theoretische Grundlagen zu Wellenleitern

Im Folgenden werden Grundlagen zur Ausbreitung elektromagnetischer Wellen in Wellenhohlleitern und Hohlraumresonatoren vorgestellt. Die Diskussion basiert zu großen Teilen auf den Referenzen [71] und [72]. In den folgenden Abschnitten werden zunächst die elektromagnetischen Felder in Hohlleitern diskutiert, um schließlich unter Berücksichtigung der entsprechenden Randbedingungen Hohlraumresonatoren, wie sie hier verwendet werden, zu beschreiben. Außerdem werden offene Resonatoren diskutiert, die für zukünftige Anwendungen in der Mikrowellen-Manipulation polarer Moleküle wichtig sind.

Nehmen wir einen gleichmäßigen, hohlen Metallzylinder aus einem idealen Leiter an. Der Hohlraum ist mit einem Medium der Permeabilität μ und der dielektrischen Konstante ϵ gefüllt. Unter Berücksichtigung der Zeitabhängigkeit des elektromagnetischen Feldes $e^{-i\omega t}$ sehen die Maxwell-Gleichungen im Inneren des Zylinders

folgendermaßen aus:

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = i \frac{\omega}{c} \vec{B}, \quad (3.2)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = -i\mu\epsilon \frac{\omega}{c} \vec{E}, \quad (3.3)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0, \quad (3.4)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0. \quad (3.5)$$

Um das E- und B-Feld zu entkoppeln, wendet man den Rotationsoperator von links auf die erste Maxwellsche Gleichung (3.2) an:

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}) = i \frac{\omega}{c} \vec{\nabla} \times \vec{B}.$$

Setzt man nun die zweite Maxwell-Gleichung (3.3) auf der rechten Seite ein und berücksichtigt $\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{A}) = \vec{\nabla} (\vec{\nabla} \cdot \vec{A}) - \nabla^2 \vec{A}$, so erhält man

$$\vec{\nabla} (\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \nabla^2 \vec{E} = \mu\epsilon \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E}.$$

Ohne Ladungsdichte innerhalb des Zylinders folgt

$$\nabla^2 \vec{E} + \mu\epsilon \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E} = 0.$$

Geht man genau umgekehrt in gleicher Art und Weise mit den ersten beiden Maxwell-Gleichungen um, so erhält man den Ausdruck für B:

$$\nabla^2 \vec{B} + \mu\epsilon \frac{\omega^2}{c^2} \vec{B} = 0$$

Die beiden Ausdrücke kann man elegant zu

$$\left(\nabla^2 + \mu\epsilon \frac{\omega^2}{c^2} \right) \begin{pmatrix} \vec{E} \\ \vec{B} \end{pmatrix} = 0 \quad (3.6)$$

zusammenfassen. An dieser Stelle ist es hilfreich, die Zylindersymmetrie zu nutzen und den Lösungsansatz für \vec{E} und \vec{B} so zu wählen, dass die transversalen Komponenten (x, y) und die longitudinale Komponente z voneinander separiert werden:

$$\vec{E}(x, y, z, t) = \vec{E}(x, y) e^{\pm ikz - i\omega t}, \quad (3.7)$$

$$\vec{B}(x, y, z, t) = \vec{B}(x, y) e^{\pm ikz - i\omega t}. \quad (3.8)$$

Die Wellenzahl k ist ein noch nicht näher definierter Parameter, der komplex oder reell sein kann. Mit dieser z -Abhängigkeit und der Einführung des transversalen Laplace-Operators $\nabla_t^2 = \nabla^2 - \frac{\partial^2}{\partial z^2}$ vereinfacht sich die Gleichung (3.6) zur Wellengleichung

$$\left[\nabla_t^2 + \left(\mu\epsilon \frac{\omega^2}{c^2} - k^2 \right) \right] \begin{pmatrix} \vec{E} \\ \vec{B} \end{pmatrix} = 0. \quad (3.9)$$

Desweiteren ist es hilfreich, die E- und B-Felder in Komponenten parallel und orthogonal zur z -Achse zu zerlegen:

$$\vec{E} = \vec{E}_z + \vec{E}_t \quad \text{und} \quad \vec{B} = \vec{B}_z + \vec{B}_t. \quad (3.10)$$

In Kombination mit der ersten Maxwellschen Gleichung (3.2) erhält man

$$\left(\vec{\nabla}_t + \vec{\nabla}_z \right) \times \left(\vec{E}_t + \vec{E}_z \right) = i \frac{\omega}{c} \left(\vec{B}_t + \vec{B}_z \right).$$

Mit dem Einheitsvektor in z -Richtung \hat{z} wird deutlich, dass der Term $\vec{\nabla}_z \times \vec{E}_z = \frac{\partial E}{\partial z} \hat{z} \times \hat{z} = 0$ wegfällt. Außerdem können die restlichen Terme in solche entweder parallel oder senkrecht zu \hat{z} aufgeteilt werden:

$$\vec{\nabla}_t \times \vec{E}_t = i \frac{\omega}{c} \vec{B}_z \quad \text{und} \quad \vec{\nabla}_z \times \vec{E}_t + \vec{\nabla}_t \times \vec{E}_z = i \frac{\omega}{c} \vec{B}_t. \quad (3.11)$$

Vektoriell Multiplizieren von der linken Seite mit $\vec{\nabla}_z$ liefert

$$\vec{\nabla}_z \times \left(\vec{\nabla}_z \times \vec{E}_t \right) + \vec{\nabla}_z \times \left(\vec{\nabla}_t \times \vec{E}_z \right) = i \frac{\omega}{c} \vec{\nabla}_z \times \vec{B}_t. \quad (3.12)$$

Für die doppelten Kreuzprodukte gilt wie eingangs erwähnt:

$$\begin{aligned} \vec{\nabla}_z \times \left(\vec{\nabla}_z \times \vec{E}_t \right) &= \vec{\nabla}_z \left(\vec{\nabla}_z \cdot \vec{E}_t \right) - \left(\vec{\nabla}_z \cdot \vec{\nabla}_z \right) \cdot \vec{E}_t, \\ \vec{\nabla}_z \times \left(\vec{\nabla}_t \times \vec{E}_z \right) &= \vec{\nabla}_t \left(\vec{\nabla}_z \cdot \vec{E}_z \right) - \left(\vec{\nabla}_z \cdot \vec{\nabla}_t \right) \cdot \vec{E}_z. \end{aligned}$$

Auch hier fallen zwei Terme aufgrund des Orthogonalitätskriteriums weg ($\vec{\nabla}_z \cdot \vec{E}_t = 0$ und $\vec{\nabla}_z \cdot \vec{\nabla}_t = 0$) und damit ergibt sich aus Gleichung (3.12)

$$i \frac{\omega}{c} \vec{\nabla}_z \times \vec{B}_t = -\nabla_z^2 \vec{E}_t + \vec{\nabla}_t \left(\frac{\partial \vec{E}_z}{\partial z} \right). \quad (3.13)$$

Unter Verwendung der expliziten z-Abhängigkeit des allgemeinen Lösungsansatzes (3.8) ergibt sich für den ersten Summanden der rechten Seite:

$$-\nabla_z^2 \vec{E}_t = -\frac{\partial^2}{\partial z^2} (E_t(x, y) e^{\pm ikz - i\omega t}) = k^2 \vec{E}_t.$$

Verfährt man analog mit der zweiten Maxwell-Gleichung (3.3) und setzt \vec{E} und \vec{B} nach (3.10) ein, so ergibt sich die folgende Gleichung:

$$\vec{\nabla}_t \times \vec{B}_t + \vec{\nabla}_t \times \vec{B}_z + \vec{\nabla}_z \times \vec{B}_t + \vec{\nabla}_z \times \vec{B}_z = -i\mu\epsilon \frac{\omega}{c} \vec{E}_t - i\mu\epsilon \frac{\omega}{c} \vec{E}_z,$$

aufgeteilt nach Komponenten parallel und senkrecht zu \hat{z} :

$$\vec{\nabla}_z \times \vec{B}_t = -\vec{\nabla}_t \times \vec{B}_z - i\mu\epsilon \frac{\omega}{c} \vec{E}_t. \quad (3.14)$$

Die Gleichung (3.14) in (3.13) eingesetzt liefert

$$-i\frac{\omega}{c} \vec{\nabla}_t \times \vec{B}_z + \mu\epsilon \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E}_t = k^2 \vec{E}_t + \vec{\nabla}_t \left(\frac{\partial \vec{E}_z}{\partial z} \right),$$

unter Ausschluss von $\mu\epsilon(\omega^2/c^2) - k^2 = 0$ und mit $\vec{\nabla}_t \times \vec{B}_z = -\frac{\omega}{c} \hat{z} \times \vec{\nabla}_t B_z$ nach \vec{E}_t aufgelöst:

$$\vec{E}_t = \frac{1}{\mu\epsilon \frac{\omega^2}{c^2} - k^2} \left(\vec{\nabla}_t \frac{\partial \vec{E}_z}{\partial z} - i\frac{\omega}{c} \hat{z} \times \vec{\nabla}_t B_z \right). \quad (3.15)$$

Diese ausschließliche Abhängigkeit des transversalen Feldes von axialen Komponenten lässt sich auch für \vec{B}_t bestimmen:

Die zweite Maxwell-Gleichung (3.3) unter Berücksichtigung von Gleichung (3.10) liefert

$$\left(\vec{\nabla}_t + \vec{\nabla}_z \right) \times \left(\vec{B}_t + \vec{B}_z \right) = -i\mu\epsilon \frac{\omega}{c} \vec{E}_t - i\mu\epsilon \frac{\omega}{c} \vec{E}_z. \quad (3.16)$$

Anwenden von $(\vec{\nabla}_z \times)$ von der rechten Seite, Auflösen der doppelten Kreuzprodukte und Aufteilen auf Komponenten senkrecht und parallel zu \hat{z} führt zum Äquivalent von Gleichung (3.13):

$$-i\mu\epsilon \frac{\omega}{c} \vec{\nabla}_z \times \vec{E}_t = -\nabla_z^2 \vec{B}_t + \vec{\nabla}_t \left(\frac{\partial \vec{B}_z}{\partial z} \right). \quad (3.17)$$

Gleichung (3.10), in die erste Maxwell-Gleichung (3.2) eingesetzt, liefert aufgeteilt nach Komponenten parallel und senkrecht zu \hat{z} :

$$\vec{\nabla}_z \times \vec{E}_t = -\vec{\nabla}_t \times \vec{E}_z + i\frac{\omega}{c} \vec{B}_t. \quad (3.18)$$

Die Kombination aus den Gleichungen (3.17) und (3.18) führt für TE- und TM-Felder, d.h. unter der Einschränkung $\mu\epsilon(\omega^2/c^2) - k^2 \neq 0$ auf

$$\vec{B}_t = \frac{1}{\mu\epsilon\frac{\omega^2}{c^2} - k^2} \left(\vec{\nabla}_t \frac{\partial \vec{B}_z}{\partial z} + i\mu\epsilon\frac{\omega}{c} \hat{z} \times \vec{\nabla}_t E_z \right). \quad (3.19)$$

Folglich reduziert sich der Lösungsaufwand für die zwei-dimensionale Wellengleichung (3.9) auf E_z und B_z , da sich die transversalen Felder \vec{E}_t und \vec{B}_t mithilfe der Gleichungen (3.15) und (3.19) aus den axialen Komponenten bestimmen lassen.

Bisher wurden nur elektromagnetische Felder in zylindersymmetrischen Umgebungen beschrieben. Hier soll nun der Einfluss der Oberflächen betrachtet werden.

Die Annahme, die Zylinderoberfläche sei ein idealer Leiter, führt zu Randbedingungen

$$\begin{aligned} \hat{n} \times \vec{E} &= 0 \quad \text{und} \\ \hat{n} \cdot \vec{B} &= 0, \end{aligned}$$

an der Oberfläche S , wobei $\hat{n} = \vec{n}/|\vec{n}|$ der Normaleneinheitsvektor auf der Oberfläche des Zylinders ist. Das bedeutet nichts anderes als

$$\begin{aligned} \left(\hat{n} \times \vec{E}_t + \hat{n} \times \vec{E}_z \right) \Big|_S &= 0 = \left(\hat{n} \times \vec{E}_z \right) \Big|_S, \\ \left(\hat{n} \cdot \vec{B}_t + \hat{n} \cdot \vec{B}_z \right) \Big|_S &= 0 = \left(\hat{n} \cdot \vec{B}_t \right) \Big|_S. \end{aligned}$$

Für die erste Gleichung folgt direkt

$$\vec{E}_z|_S = 0. \quad (3.20)$$

Das elektrische Feld in longitudinaler Richtung z muss an der Oberfläche verschwinden, also einen Knoten haben. Bei der zweiten Gleichung ist das Ergebnis nicht so

offensichtlich. Das Einsetzen von \vec{B}_t nach Gleichung (3.19) liefert

$$\begin{aligned}
 \left. (\hat{n} \cdot \vec{B}_t) \right|_S &= \hat{n} \cdot \frac{1}{\mu\epsilon\frac{\omega^2}{c^2} - k^2} \left(\vec{\nabla}_t \frac{\partial \vec{B}_z}{\partial z} + i\mu\epsilon\frac{\omega}{c} \hat{z} \times \vec{\nabla}_t \vec{E}_z \right) \Big|_S \\
 &= \frac{1}{\mu\epsilon\frac{\omega^2}{c^2} - k^2} \hat{n} \cdot \vec{\nabla}_t \frac{\partial \vec{B}_z}{\partial z} \Big|_S = 0 \\
 \iff &\hat{n} \cdot \vec{\nabla}_t \frac{\partial \vec{B}_z}{\partial z} \Big|_S = 0 \\
 \iff &\frac{\partial}{\partial n} \frac{\partial \vec{B}_z}{\partial z} \Big|_S = \frac{\partial}{\partial z} \frac{\partial \vec{B}_z}{\partial n} \Big|_S = 0
 \end{aligned}$$

Die z -Abhängigkeit nach Gleichung (3.8) führt zu $\partial \vec{B}_z / \partial z = ik \vec{B}_z$. Damit ergibt sich die Randbedingung für das Magnetfeld zu

$$\left. \frac{\partial \vec{B}_z}{\partial n} \right|_S = 0. \quad (3.21)$$

Im Gegensatz zum elektrischen Feld ist die Bedingung an das magnetische Feld in longitudinaler Richtung \vec{B}_z auf einer leitenden Oberfläche das Verschwinden seines Gradienten entlang der Normalen. Die Feldlinien für konstante Werte des Magnetfeldes stehen also senkrecht auf der Leiteroberfläche.

Die Wellengleichung (3.9) bildet mit den Randbedingungen für \vec{E}_z und \vec{B}_z (Gleichungen (3.20) und (3.21)) ein Eigenwertproblem. Das bedeutet, dass für eine gegebene Frequenz ω nur bestimmte Wellenzahlen k die Differentialgleichung mit den Randbedingungen lösen. Vice versa lösen für feste k auch nur bestimmte Frequenzen die Gleichung. Im ersten Fall spricht man von einem Wellenleiter, im zweiten Fall handelt es sich um einen Hohlraumresonator. Die Randbedingungen an das \vec{E}_z -Feld und das \vec{B}_z -Feld sind grundsätzlich verschieden und können nicht überall gleichzeitig erfüllt werden. Konsequenterweise teilen sich die Felder in zwei Kategorien auf:

1. Transversal Magnetisch (TM):

Es gilt überall $\vec{B}_z = 0$, mit der Randbedingung $\vec{E}_z|_S = 0$.

2. Transversal Elektrisch (TE):

Es gilt überall $\vec{E}_z = 0$, mit der Randbedingung $\frac{\partial \vec{B}_z}{\partial n}|_S = 0$.

3. Transversal Elektro-Magnetisch (TEM):

Hierbei handelt es sich um den Sonderfall mit $\vec{E}_z = \vec{B}_z = 0$ überall.

TEM-Wellen können sich nur in Koaxialkabeln und offenen Resonatoren ausbreiten.

3.2 Wellenleiter

Betrachten wir nun die Ausbreitung einer elektromagnetischen Welle entlang eines Wellenhohlleiters mit konstanter Querschnittsfläche. Mit der z -Abhängigkeit e^{ikz} einer Welle, die nur in $-z$ -Richtung läuft, lassen sich die Gleichungen (3.15) und (3.19) weiter vereinfachen. Für TE-Wellen ($\vec{E}_z = 0$ überall) gilt

$$\vec{E}_t = -\frac{i}{\gamma^2} \frac{\omega}{c} \hat{z} \times \vec{\nabla}_t \vec{B}_z \quad (3.22)$$

$$\vec{B}_t = \frac{1}{\gamma^2} \vec{\nabla}_t \frac{\partial \vec{B}_z}{\partial z} = \frac{ik}{\gamma^2} \vec{\nabla}_t \vec{B}_z. \quad (3.23)$$

Diesen Umformungen liegt $\gamma^2 = \mu\epsilon\frac{\omega^2}{c^2} - k^2$ und die exponentielle z -Abhängigkeit nach Gleichung (3.8) zugrunde. Das transversale elektrische Feld aus Gleichung (3.22) lässt sich mit Gleichung (3.23) weiter vereinfachen zu

$$\vec{E}_t = -\frac{\omega}{ck} \hat{z} \times \vec{B}_t. \quad (3.24)$$

Für die TM-Wellen führen analoge Überlegungen zu den folgenden beiden Ausdrücken:

$$\vec{E}_t = \frac{ik}{\gamma^2} \vec{\nabla}_t \vec{E}_z, \quad (3.25)$$

$$\vec{B}_t = \frac{\mu\epsilon\omega}{ck} \hat{z} \times \vec{E}_t. \quad (3.26)$$

Die skalare Wellenfunktion ψ mit $\psi = \vec{B}_z$ (\vec{E}_z) für TE (TM)-Wellen erfüllt die zweidimensionale Wellengleichung

$$(\nabla_t^2 + \gamma^2) \psi = 0 \quad (3.27)$$

mit

$$\gamma^2 = \mu\epsilon \frac{\omega^2}{c^2} - k^2 \quad (3.28)$$

und den Randbedingungen für TE- bzw. TM-Wellen.

$$\left. \frac{\partial \psi}{\partial n} \right|_S = 0 \quad \text{und} \quad \psi|_S = 0 \quad (3.29)$$

Die Konstante γ^2 muss positiv sein, da sonst die (3.27) und die Randbedingung (3.29) nicht gleichzeitig erfüllt werden können. Für $\gamma^2 < 0$ wäre die Lösung für ψ eine Exponentialfunktion mit reellem Exponenten und dementsprechend nicht periodisch. In einem solchen Fall können die Randbedingungen nur trivial ($\psi = 0$) erfüllt werden.

Für $\gamma^2 > 0$ bilden die Lösungen ψ_λ einen orthogonalen Satz zu den Eigenwerten γ_λ^2 , $\lambda = 1, 2, 3, \dots$. Diese unterschiedlichen Lösungen werden *Moden des Wellenleiters* genannt. Für eine bestimmte Frequenz ω ergibt sich die Wellenzahl k in Abhängigkeit von λ aus

$$k_\lambda^2 = \mu\epsilon \frac{\omega^2}{c^2} - \gamma_\lambda^2. \quad (3.30)$$

Eine sinnvolle Definition ist die sogenannte *Grenzfrequenz*

$$\omega_c = c \frac{\gamma_\lambda}{\sqrt{\mu\epsilon}}.$$

Die Wellenzahl k lässt sich dann auch folgendermaßen beschreiben:

$$k_\lambda = \frac{\sqrt{\mu\epsilon}}{c} \sqrt{\omega^2 - \omega_c^2}.$$

Für $\omega > \omega_c$ ist die Wellenzahl reell, das bedeutet, dass sich alle Moden ψ_λ im Wellenleiter ausbreiten. Sinkt die Frequenz unter die Grenzfrequenz ($\omega < \omega_c$), dann wird k_λ imaginär und die Moden werden gedämpft (vgl. Abbildung 3.1). Eine weitere Überlegung gilt der Wellenlänge, die im Wellenleiter grundsätzlich größer ist als im freien Raum bei gleicher Frequenz. Das bedeutet für die Phasengeschwindigkeit v_p :

$$v_p = \frac{\omega}{k_\lambda} = \frac{c}{\sqrt{\mu\epsilon}} \frac{1}{\sqrt{1 - \left(\frac{\omega_c}{\omega}\right)^2}} > \frac{c}{\sqrt{\mu\epsilon}}.$$

Die Phasengeschwindigkeit ist also immer größer als im freien Raum und wird speziell an der Grenzfrequenz sogar unendlich groß.

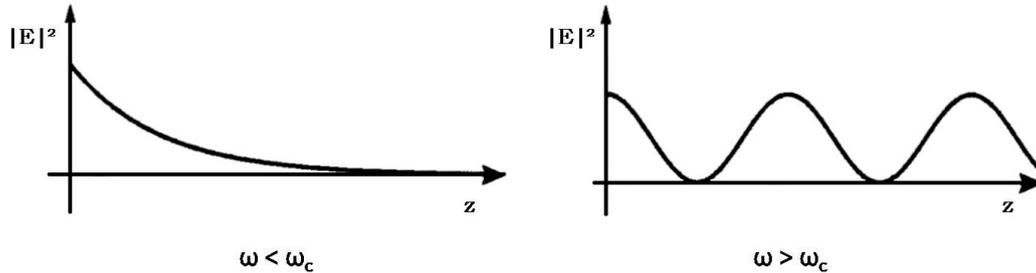


Abbildung 3.1: Gedämpfte und ungedämpfte TE- bzw. TM-Welle in einem Wellenleiter mit der Grenzfrequenz ω_c [72]

3.2.1 Zylindersymmetrische Wellenleiter

Betrachtung verdient nun der spezielle Fall eines Wellenleiters, der begrenzt wird von einem runden Zylinder mit unendlicher Länge, den wir als idealen Leiter, gefüllt mit einem idealen Dielektrikum, annehmen. Aufgrund der Symmetrie ist es sinnvoll, Zylinderkoordinaten ρ, ϕ, z zu verwenden, wobei z entlang der Zylinderachse orientiert ist. Die z -Abhängigkeit des Feldes sei wie in Abschnitt 3.2 $Z(z) = e^{ikz}$, dann genügt die Wellengleichung in Zylinderkoordinaten der Gleichung (3.27) und hat die Form

$$\frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{\partial \psi}{\partial \rho} \right) + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \phi^2} + \gamma^2 = 0.$$

Wir nehmen die Lösung $\psi(\rho, \phi, z) = R(\rho)\Phi(\phi)e^{ikz}$ an. Für eine stehende Welle in ϕ -Richtung und eine sich gleichzeitig in z -Richtung ausbreitende Welle löst folgender Ansatz die Differentialgleichung

$$\psi(\rho, \phi, z) = J_m(\gamma_{mn}\rho) \cos(m\phi)e^{ikz},$$

wobei J_m die Besselfunktion erster Art und der Ordnung m ist. Für γ_{mn} gilt die Beziehung (3.28). Die Uniformität des Feldes in ϕ -Richtung ist durch den Kosinusterm gewährleistet. Es ist jedoch notwendig die Randbedingung radialer Richtung

am Zylinderrand zu erfüllen, wie im Folgenden beschrieben wird.

Für *TE-Wellen* gilt nach Gleichung (3.29) $\frac{\partial \psi}{\partial \rho}|_R = 0$:

$$\iff \frac{\partial J_m(\gamma_{mn}\rho)}{\partial \rho} = 0 \quad (3.31)$$

$$\iff J'_m(\gamma_{mn}R) = 0 \quad (3.32)$$

Die erste Ableitung der Besselfunktion hat unendlich viele Nullstellen. Wir wollen an dieser Stelle die Notation x'_{mn} für die n -te Nullstelle der Ableitung der Besselfunktion J'_m einführen. Dann können die γ_{mn} genauer bestimmt werden:

$$\gamma_{mn} = \frac{x'_{mn}}{R}. \quad (3.33)$$

Für *TM-Wellen* gilt die Randbedingung $\psi(\rho, \phi)|_{\rho=R} = 0$.

$$\iff J_m(\gamma_{mn}R) = 0 \quad (3.34)$$

Das bedeutet für die $\gamma_{m,n}$:

$$\gamma_{mn} = \frac{x_{mn}}{R}$$

mit der n ten Nullstelle der Besselfunktion m ter Ordnung x_{mn} . Einige Werte für x_{mn} und x'_{mn} sind der Tabelle 3.1 zu entnehmen.

	TE-Wellen			TM-Wellen		
	x'_{m1}	x'_{m2}	x'_{m3}	x_{m1}	x_{m2}	x_{m3}
m=0	3.832	7.016	10.173	2.405	5.520	8.654
m=1	1.841	5.331	8.536	3.832	7.016	10.173
m=2	3.054	6.706	9.969	5.136	8.417	11.620

Tabelle 3.1: Tabelle mit Werten der n ten Nullstelle x'_{mn} und x_{mn} der Besselfunktionen $J'_m(x)$ bzw. $J_m(x)$ [73]

Die Randbedingungen (3.32) und (3.34) haben mit den x_{mn} und x'_{mn} unendlich viele Lösungen. Davon werden allerdings nur endlich viele auch ungedämpft transportiert, nämlich die, für die die Wellenzahl k (vgl. Gleichung (3.28)) rein reell ist.

Das bedeutet jedoch, dass nach Gleichung (3.30) sich nur solche Wellen einer bestimmten mn -Mode ungedämpft ausbreiten können, deren Frequenz größer ist als die zugehörige Grenzfrequenz $\omega_c = c \frac{\gamma_{mn}}{\sqrt{\mu\epsilon}}$. Eine detaillierte Herleitung ist in Referenz [73] zu finden. Die Abbildung 3.2 bietet einen guten Überblick über die Feldverteilung für verschiedene Moden in Wellenleitern. Interessant für das hier beschriebene Experiment ist im Zusammenhang mit dem Stark-Effekt das elektrische Feld, das sowohl für die TM_{01} - als auch die TE_{01} -Mode ein zylindersymmetrisches Verhalten zeigt. Im Falle der TM_{01} -Mode liegt ein uniformes elektrisches Feld in radialer Richtung vor (Abbildung 3.2A), während im Falle der TE_{01} -Mode das elektrische Feld ein Maximum beim halben Radius sowie Knoten auf der Zylinderachse und am Zylinderrand besitzt (Abbildung 3.2C). Bei den TE_{11} - und TM_{11} -Moden ist die Zylindersymmetrie gebrochen. Im Fall der TE_{11} -Mode liegt ein Maximum des elektrischen Feldes auf der Zylinderachse mit Knoten an der Zylinderoberfläche vor (Abbildung 3.2D). Das elektrische Feld der TM_{11} -Mode besitzt zwar ebenfalls ein Maximum auf der Zylinderachse, es kommen allerdings noch zwei weitere in der Nähe der Zylinderoberfläche hinzu (Abbildung 3.2B).

3.3 Zylindersymmetrische Hohlraumresonatoren

Eine wichtige Klasse von Hohlraumresonatoren ist der zylindrische Wellenhohlleiter mit geschlossenen Stirnflächen (siehe Abbildung 3.3). Unter der Annahme, dass diese Stirnflächen aus einem idealen Leiter und flach sind sowie senkrecht auf der Zylinderachse stehen, ergibt sich die z -Abhängigkeit des Feldes zu

$$A \sin kz + B \cos kz. \tag{3.35}$$

Diese Abhängigkeit entspricht dem Feld einer stehenden Welle und ist die direkte Folge der reflektierenden Endflächen. Nimmt man an, dass die Endflächen bei $z = 0$ und $z = d$ liegen, dann können die Randbedingungen nur mit $k = \frac{l\pi}{d}$ (mit $l = 0, 1, 2, \dots$) erfüllt werden.

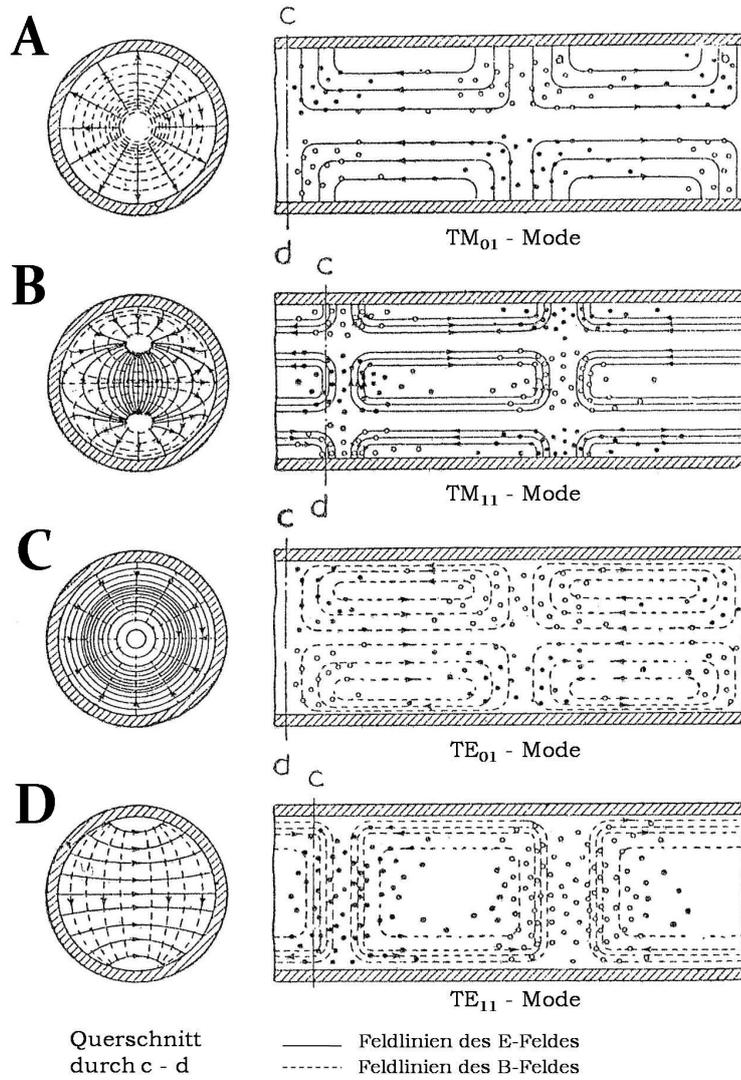


Abbildung 3.2: Feldlinien des elektrischen und magnetischen Feldes in einem zylindersymmetrischen Wellenleiter für ausgewählte TE- und TM-Moden. Rechts ist der Querschnitt längs durch den Wellenleiter gezeigt, links die Querschnittsfläche durch die Punkte c und d.

Für *TE-Felder* fordert das Verschwinden von B_z bei $z = 0$ und $z = d$:

$$B_z = \psi(\rho, \phi) \sin\left(\frac{l\pi z}{d}\right), \quad l = 1, 2, \dots \quad (3.36)$$

Für *TM-Felder* genügt folgender Ansatz den Bedingungen an $E_z = 0$ bei $z = 0$ und $z = d$:

$$E_z = \psi(\rho, \phi) \cos\left(\frac{l\pi z}{d}\right), \quad l = 0, 1, 2, \dots \quad (3.37)$$

Aus den Gleichungen (3.15) und (3.19) erhält man die transversalen Felder:

TE-Moden:

$$\vec{E}_t = -\frac{i\omega}{c\gamma^2} \sin\left(\frac{l\pi z}{d}\right) \hat{z} \times \vec{\nabla}_t \psi \quad (3.38)$$

$$\vec{B}_t = \frac{l\pi}{d\gamma^2} \cos\left(\frac{l\pi z}{d}\right) \vec{\nabla}_t \psi \quad (3.39)$$

TM-Moden:

$$\vec{E}_t = -\frac{l\pi}{d\gamma^2} \sin\left(\frac{l\pi z}{d}\right) \vec{\nabla}_t \psi \quad (3.40)$$

$$\vec{B}_t = \frac{i\mu\epsilon\omega}{c\gamma^2} \cos\left(\frac{l\pi z}{d}\right) \hat{z} \times \vec{\nabla}_t \psi. \quad (3.41)$$

Den Randbedingungen an den Stirnflächen des Resonators ist damit Genüge getan, allerdings bleibt das Eigenwertproblem (vgl. Gleichung (3.27)). Im Gegensatz zu Gleichung (3.28) lautet die Konstante γ nun

$$\gamma^2 = \mu\epsilon \frac{\omega^2}{c^2} - \left(\frac{l\pi}{d}\right)^2.$$

Für jeden l -Wert legt der Eigenwert γ_λ^2 eine Eigenfrequenz $\omega_{l\lambda}^2$ fest, die wir im Folgenden als Resonanzfrequenz bezeichnen:

$$\omega_{l\lambda}^2 = \frac{c^2}{\mu\epsilon} \left[\gamma_\lambda^2 + \left(\frac{l\pi}{d}\right)^2 \right]. \quad (3.42)$$

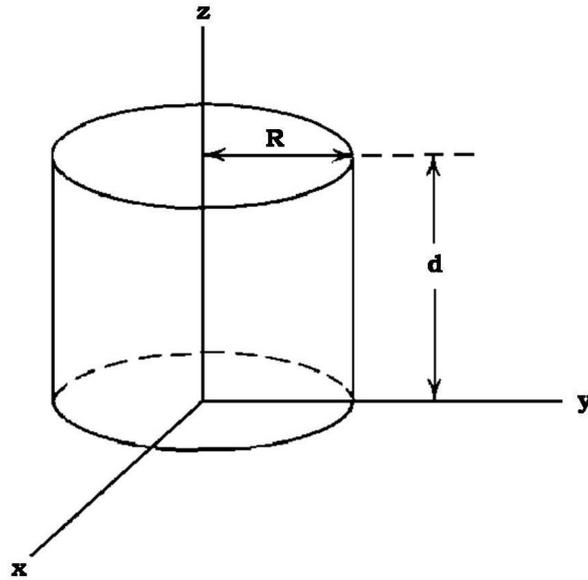


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung eines zylindersymmetrischen Hohlraumresonators [71].

Für unseren Zylinder mit Radius R und Höhe d (vgl. Abbildung 3.3) lautet die allgemeine Lösung der Wellenfunktion in Zylinderkoordinaten:

$$\psi(\rho, \phi) = J_m(\gamma_{mn}\rho) \cos m\phi. \quad (3.43)$$

J_m steht für die Besselfunktion erster Ordnung. Das γ_{mn} bestimmt sich aus der Randbedingung in radialer Richtung analog zu Abschnitt 3.2:

Für *TE-Wellen* folgt:

$$\gamma_{mn} = \frac{x'_{mn}}{R}. \quad (3.44)$$

Für *TM-Wellen* ergibt sich γ zu

$$\gamma_{mn} = \frac{x_{mn}}{R}. \quad (3.45)$$

Einige Werte für x_{mn} und x'_{mn} sind der Tabelle 3.1 zu entnehmen. Durch Einsetzen der γ_{mn} in Gleichung (3.42) erhalten wir die Resonanzfrequenzen im *TE*- respektive

TM-Fall:

$$\omega_{nml} = \frac{c}{\sqrt{\mu\epsilon}} \sqrt{\frac{x_{mn}'^2}{R^2} + \frac{l^2\pi^2}{d^2}} \quad \text{für } TE\text{-Wellen} \quad (3.46)$$

und (3.47)

$$\omega_{nml} = \frac{c}{\sqrt{\mu\epsilon}} \sqrt{\frac{x_{mn}^2}{R^2} + \frac{l^2\pi^2}{d^2}} \quad \text{für } TM\text{-Wellen.} \quad (3.48)$$

Damit befinden wir uns nun in der Lage, die Felder und Resonanzfrequenzen innerhalb eines *jeden* zylindersymmetrischen Resonators bestimmen zu können. Die Modenstruktur in zylindersymmetrischen Resonatoren unterscheidet sich von zylindersymmetrischen Wellenleitern (siehe Abbildung 3.2) nur in der longitudinalen Richtung z , da die Randbedingungen und das Eigenwertproblem für den rein transversalen Teil den gleichen Ursprung haben. In der longitudinalen Richtung jedoch kommen aufgrund der zusätzlichen Randbedingung, je nach Resonanzfrequenz, Knoten hinzu.

3.4 Offene Resonatoren

Eine weitere Klasse von Resonatoren für elektromagnetische Strahlung sind die offenen Resonatoren. Ein viel verwendeter Vertreter ist der sphärische Resonator vom Fabry-Pérot-Typ, wie er in der Mikrowellenspektroskopie benutzt wird. Er soll im Folgenden näher charakterisiert werden. Die elektromagnetische Feldverteilung in einem solchen offenen, sphärischen Resonator wird durch TEM-Moden beschrieben(s. auch Abschnitt 3.1).

Offene, sphärische Resonatoren haben den Vorteil gegenüber geschlossenen Resonatoren, dass sehr hohe Güten Q im Bereich von 80000-100000 möglich sind, so dass hohe Feldstärken erzeugt werden können. Dafür sind die Wahl des Resonatortyps (konfokal, semi-konfokal, nahe-konfokal) sowie seine geometrischen Abmessungen und, wie bei den geschlossenen Resonatoren auch, das verwendete Reflektormaterial von Bedeutung. Die geometrischen Abhängigkeiten verschiedener sphärischer

Reflektoren vom Fabry-Pérot-Typ wurden bereits eingehend in der Literatur diskutiert [74–77]. In Abbildung 3.4 ist ein zweidimensionales Stabilitätsdiagramm für verschiedene Resonatortypen dargestellt. Die Achsen sind mit den reflektorspezifischen Parametern g_1 und g_2 bezeichnet, wobei sich die Nummerierung auf die beiden Reflektoren bezieht [74, 76]. Reflektoren mit identischen Krümmungsradien werden durch die Diagonale beschrieben, konfokale und konzentrische durch hyperbolische Linien. Dunkle Regionen beschreiben instabile Resonatoren, die besonders hohe Beugungsverluste aufweisen. Der exakt konfokale Resonator (mit zwei sphärischen Reflektoren vom Krümmungsradius b' bei einem Abstand $d = b'$) befindet sich in der Mitte des Diagramms. Es wird deutlich, dass dieser direkt an zwei instabile Regionen angrenzt. Daher ist es empfehlenswert, anstelle dieser, eine nahe-konfokale Reflektoranordnung zu wählen (im Diagramm durch ein Kreuz gekennzeichnet), in der der Reflektorabstand d etwas von ihrem Krümmungsradius b' abweicht, und die zudem ausreichend von den instabilen Regionen entfernt ist. Alternativ ist auch ein semi-konfokaler Resonator mit einem ebenen und einem sphärischen Reflektor mit $2d = b'$ denkbar, der das doppelte Modenvolumen in Bezug auf einen gegebenen Reflektorabstand d aufweist. Allerdings werden auch die Anforderungen an die Ausgangsleistung der speisenden Mikrowellenquelle größer. Für das Erreichen sehr hoher elektrischer Felder ist ein fast-konfokaler Aufbau daher vielversprechender.

Die Verluste in offenen, sphärischen Resonatoren setzen sich zum einen aus Ohmschen Verlusten an den Spiegeloberflächen und zum anderen aus Beugungsverlusten an den Reflektoren [78] zusammen. Um die Ohmschen Verluste zu reduzieren, wird auf Materialien mit hoher elektrischer Leitfähigkeit wie beispielsweise Kupfer zurückgegriffen. Die Beugungsverluste können durch die richtige Wahl der Resonatorgeometrie minimiert werden [78]. Hierbei muss besonders darauf geachtet werden, dass die Reflektoren bezogen auf ihren Abstand zueinander ausreichend groß sind. Werden die entsprechenden Anforderungen berücksichtigt, so sind, wie bereits erwähnt, für offene Resonatoren sehr hohe Güten und damit sehr hohe Feldstärken

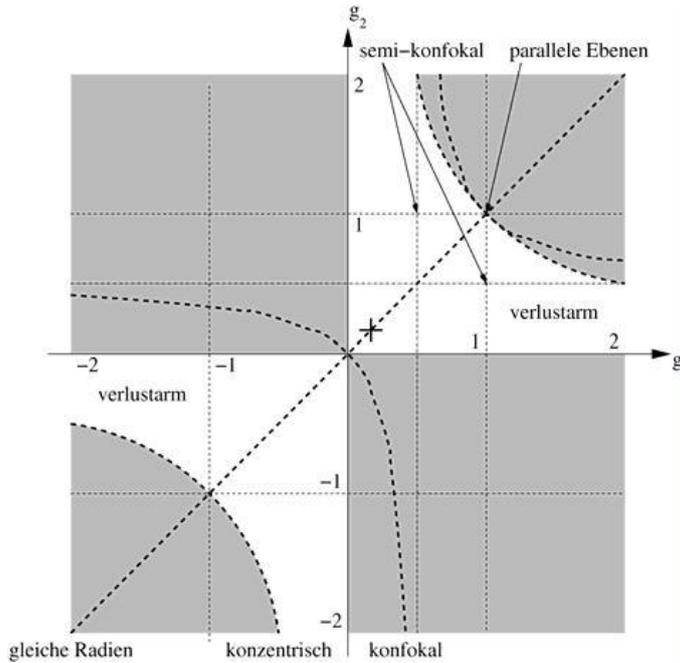


Abbildung 3.4: Stabilitätsdiagramm für verschiedene offene Resonatortypen. Die Parameter $g_i = 1 - \frac{d}{b_i}$ beziehen sich auf die Krümmungsradien b_i und die Abstände der verwendeten Resonatorspiegel d . Bereiche mit hohen Streuverlusten sind dunkel, besonders verlustarme Bereiche dagegen hell dargestellt (nach [78]).

möglich, die für weitere Experimente zur Mikrowellenmanipulation polarer Moleküle bedeutend sein können.

Die Feldverteilung einer in Y-Richtung linear-polarisierten Mikrowelle ist durch Gleichung (3.49) gegeben [78]:

$$E_Y(r, t) = \epsilon_Y \frac{U(r)}{U_0} \cos(\omega t + \phi) \quad (3.49)$$

mit

$$\epsilon_Y^2 = \frac{8P_0Q_0U_0^2\beta}{\omega_c\epsilon_0(1+\beta)^2} = \frac{4P_0Q_LU_0^2}{\omega_c\epsilon_0} \quad (3.50)$$

und

$$Q_0 = (1 + \beta)Q_L = 2Q_L. \quad (3.51)$$

β ist der sogenannte Kopplungskoeffizient, der bei kritischer Kopplung gleich eins gesetzt werden kann. P_0 ist die Eingangsleistung, Q_L das sogenannte *loaded Q*, (d.h. inklusive Kopplungseffekte), und ω_c die verwendete Resonanzfrequenz des Resonators. U_0 wird durch Integration über das gesamte Resonatorvolumen definiert.

Faßt man die Gleichungen (3.49) bis (3.51) zusammen, so erhält man

$$E_Y(r, t) = 2\sqrt{\frac{P_0Q_L}{\omega_c\epsilon_0}} U(r) \cos(\omega t + \phi). \quad (3.52)$$

$U(r)$ beschreibt die relative Feldverteilung, also das Modenmuster einer TEM_{plq} Mode, die sich zwischen den Reflektoren eines nicht-konfokalen Resonators ausbreitet, wobei die beiden Reflektoren denselben Radius mit der Krümmung b' sowie den Abstand d voneinander haben:

$$U_{plq}(r, \phi, z) = U_0 R_{plq}(r, z) \cos[kz(1 + \frac{r^2}{2zb'(z)}) + \frac{\pi}{2}q + \Phi_{pl}(z)] \cos(l\phi). \quad (3.53)$$

Von besonderem Interesse sind die Fundamentalmoden TEM_{00q} mit $p = l = 0$. Für diese wird Gleichung (3.53) signifikant vereinfacht. Der komplette Satz an Gleichungen, der benötigt wird, um $U(r)$ und damit $E_Y(r, t)$ für beliebige Werte von p , l und q zu berechnen, findet sich in Ref. [78]. Hier liegt der Fokus auf den Fundamentalmoden mit $p = l = 0$:

$$\begin{aligned} R_{pl}(r, z) &= R_{00}(r, z) = R(r, z) = \frac{\omega_0}{\omega'(z)} \cdot \exp(-\frac{r}{\omega'(z)})^2, \\ \phi_{pl}(z = \pm |z|) &= \arccos(\pm \frac{\omega_0}{\omega'(z)}), \\ b'(z) &= \frac{k^2 \omega'^2(z) \omega_0^2}{4z}, \\ \omega'(z)^2 &= \omega_s'^2 [\frac{1+g}{2} + (\frac{2z}{d})^2 \frac{1-g}{2}], \\ \omega_s'^2 &= \frac{2\omega_0^2}{1+g}, \\ \omega_0^2 &= \frac{b'\lambda}{2\pi} \sqrt{1-g^2}, \\ k &= \frac{2\pi}{\lambda}. \end{aligned}$$

Zusammengefasst liefern diese Gleichungen einen Ausdruck für die relative Feldverteilung einer TEM_{00q} -Fundamentalmode $U_{00q}(r, \phi, z)$:

$$\begin{aligned} U_{00q}(r, \phi, z) &= U_0 \cdot \frac{\omega_0}{\sqrt{\omega_s'^2 [\frac{1+g}{2} + (\frac{2z}{d})^2 \frac{1-g}{2}]}} \\ &\quad \cdot \exp\left(-\frac{r^2}{\omega_s'^2 [\frac{1+g}{2} + (\frac{2z}{d})^2 \frac{1-g}{2}]}\right) \\ &\quad \cdot \cos\left[kz + \frac{2zr^2}{k\omega_s'^2 [\frac{1+g}{2} + (\frac{2z}{d})^2 \frac{1-g}{2}] \cdot \omega_0^2}\right] \\ &\quad + \frac{\pi}{2}q + \arccos\left[\pm \frac{\omega_0}{\sqrt{\omega_s'^2 [\frac{1+g}{2} + (\frac{2z}{d})^2 \frac{1-g}{2}]}}\right]. \end{aligned} \quad (3.54)$$

Abbildung 3.5 zeigt Gaußprofile der Feldamplitude U/U_0 in einem nahezu konfokalen Resonator. r/ω_0 beschreibt den Abstand von der Resonatorachse, während $y/(d/2)$ die Entfernung von der Resonatormitte entlang der Resonatorachse wiedergibt. Für die Manipulation der Bewegung polarer Moleküle mittels Mikrowellenstrahlung ist neben der Größe des elektromagnetischen Feldes insbesondere die Größe seiner Gradienten bedeutend, die sich aus dieser Darstellung gut erkennen lassen: In der Mitte des offenen Resonators sind die Gradienten des elektrischen Feldes für eine TEM_{pq} -Grundmode am größten.

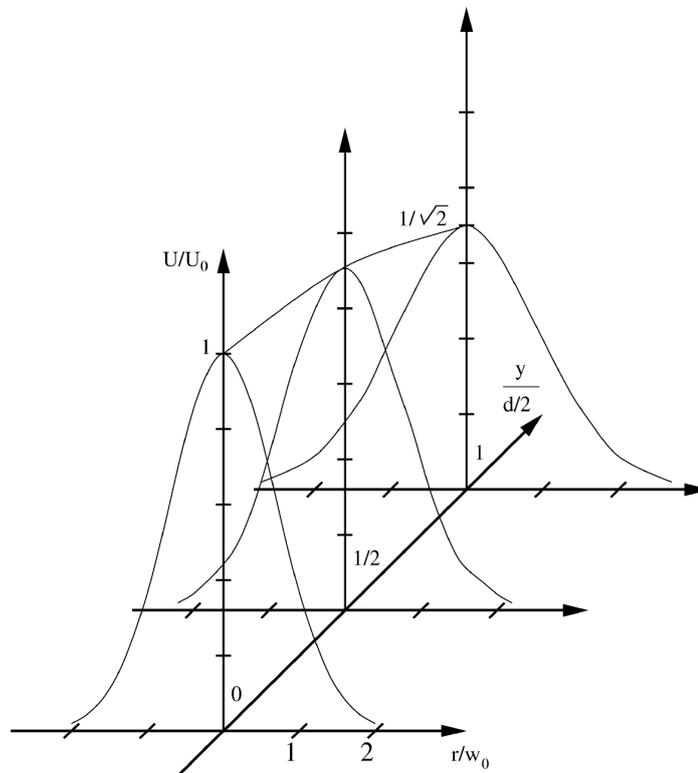


Abbildung 3.5: Knotenfreie Feldamplitudenprofile des Fundamentalmodus eines nahezu konfokalen Resonators mit sphärischen Reflektoren zirkularer Apertur. Der Abstand zur Resonatorachse wird durch r/ω_0 , die Entfernung von der Resonatormitte mit $y/(d/2)$, beschrieben [74].

Neben den hohen Güten und damit hohen Feldstärken bietet für einige Anwen-

dungen auch das offene Design einen Vorteil für offene gegenüber den geschlossenen Resonatoren. Beispielsweise sind so in der Mikrowellenspektroskopie Doppelresonanzexperimente, die entweder einen Laser oder eine weitere Mikrowellenquelle benötigen, möglich. Für die Mikrowellenmanipulation polarer Moleküle, wie sie in dieser Arbeit vorgestellt wird, können so im Prinzip polare Moleküle nicht nur mit Mikrowellenstrahlung gefangen, sondern auch durch Detektionsmethoden aufgrund des offenen Aufbaus nachgewiesen werden.

3.5 Experimentelle Realisierung einer Mikrowellenlinse

Ziel des Experiments ist es, Ammoniakmoleküle in AC-hochfeldsuchenden Zuständen zu fokussieren. Die Bedingung an das elektrische Feld fordert ein Feldmaximum des transversalen Teils auf der Molekülstrahlachse. Insbesondere die TE_{11} -Mode (siehe Abbildung 3.2 und Abschnitt 3.2.1) innerhalb eines zylindersymmetrischen Wellenleiters liefert die passende transversale Feldverteilung. Ein Resonator bietet zusätzlich die Eigenschaft der Feldüberhöhung bei Resonanzfrequenzen. Kombiniert man die beiden Voraussetzungen, so zeigt sich, dass ein zylindersymmetrischer Hohlraumresonator mit der Mode TE_{11l} gut für die geplanten Experimente geeignet zu sein scheint. Aus experimentellen Gründen betreibt man Resonatoren häufig in der Nähe ihrer Grundmode. In dem hier beschriebenen Experiment findet die TE_{112} -Mode Verwendung, deswegen wollen wir uns im Folgenden darauf beschränken.

Für eine möglichst starke Wechselwirkung zwischen dem elektromagnetischen Feld und den Molekülen ist neben der Feldstärke die Frequenzverschiebung Δ zwischen der Resonanz im Resonator und der Übergangsfrequenz im Molekül (siehe Gleichung 2.13) die wichtigste Größe. Dieser Frequenzunterschied wird häufig als Verstimmung (engl. *detuning*) bezeichnet. Bei der Wahl des passenden *detuning* ist zu beachten, dass kleine Werte zwar eine große Wechselwirkung mit den Molekülen bewirken, zu

kleine Werte allerdings Übergänge vom symmetrischen (antisymmetrischen) in den antisymmetrischen (symmetrischen) Zustand $|1, 1, a\rangle \Leftrightarrow |1, 1, s\rangle$ induzieren können und somit zu Verlusten führen. In dem der Arbeit zu Grunde liegenden Experiment haben wir den Resonator daher so entworfen, dass die Grundmode in Bezug auf die Molekülresonanz bei $\nu = 23694$ MHz um etwa 50 MHz verschoben ist. Für einen Durchmesser von 7,41 mm bewirkt eine Ungenauigkeit von 0,01 mm eine Frequenzverschiebung der TE_{112} Mode um 32 MHz. Damit sind die Anforderungen an die Genauigkeit in der Fertigung enorm hoch. Die beiden Moden mit den niedrigsten

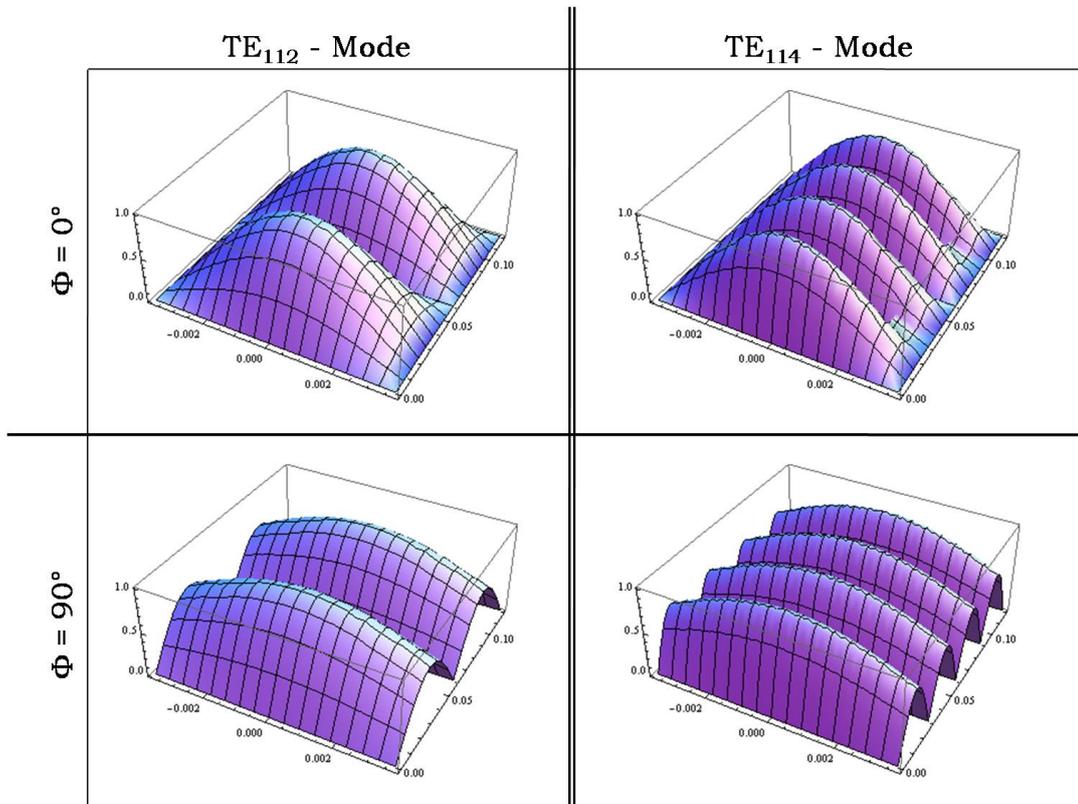


Abbildung 3.6: Feldstärken des transversalen elektrischen Feldes in Abhängigkeit vom Ort im Resonator. Abgebildet sind zwei repräsentative Moden, die TE_{112} - (links) und die TE_{114} -Mode (rechts). Bei Einkopplung einer linear polarisierten Mikrowelle treten zwei Extremfälle ein:

In der Ebene entlang der Polarisationsrichtung ($\phi=90^\circ$) sind die Gradienten des Feldes am kleinsten, in der Ebene senkrecht zur Polarisationssebene am größten ($\phi=0^\circ$).

Resonanzfrequenzen (TE_{112} 23765 MHz und TE_{114} 24153 MHz) sind in Abbildung 3.6 dargestellt. Aus experimentellen Gründen, die in Kapitel 5.1 näher beschrieben

sind, werden im gewählten Aufbau nur Moden mit geraden l unterstützt. Obwohl der Resonator zylindersymmetrisch ist, folgt die Feldverteilung für die TE_{11l} -Mode nicht dieser Symmetrie. In der Schnittebene, gebildet aus der Verlängerung der Antenne und der z -Achse ($\phi=90^\circ$), ist das elektrische Feld an den Rändern des Resonators deutlich größer als in der Ebene senkrecht dazu ($\phi=0^\circ$) (Abbildung 3.6). Die Folge sind unterschiedlich hohe transversale Feldgradienten in unterschiedlichen Raumrichtungen, die maßgeblich die Fokussierleistung beeinflussen. Die Linse besitzt also keinen Fokuspunkt, sondern eine Fokusellipse. Genauere Angaben zum tatsächlich realisierten Resonator, dem experimentell gewählten *detuning* und den Resonanzfrequenzen sind in Kapitel 5.1 zu finden.

Kapitel 4

Trajektorienrechnung

Die Berechnung von Trajektorien von Ammoniakmolekülen in der Mikrowellenlinse ist insbesondere wichtig, um die passenden Parameter für das reale Experiment einzugrenzen. In diesem Abschnitt werden die Grundlagen für die Simulation des Fokussierexperiments dargelegt.

Die Kräfte des elektromagnetischen Feldes auf die Ammoniakmoleküle in der zylindersymmetrischen Mikrowellenlinse können mit den Newtonschen Bewegungsgleichungen berechnet werden [79]:

$$\ddot{\rho} - \rho\dot{\phi}^2 = -\frac{1}{m} \frac{dW_{Stark,AC}}{d\rho}$$

und

$$\ddot{\phi}\rho + 2\dot{\rho}\dot{\phi} = -\frac{1}{m} \frac{1}{\rho} \frac{dW_{Stark,AC}}{d\phi}.$$

und

$$\ddot{z} = -\frac{1}{m} \frac{dW_{Stark,AC}}{dz}.$$

Mit $\frac{dW}{d\rho} = \frac{dW}{dE} \frac{dE}{d\rho}$, $\frac{1}{\rho} \frac{dW}{d\phi} = \frac{1}{\rho} \frac{dW}{dE} \frac{dE}{d\phi}$ und $\frac{dW}{dz} = \frac{dW}{dE} \frac{dE}{dz}$ ergeben sich

$$\ddot{\rho} - \rho\dot{\phi}^2 = -\frac{1}{m} \frac{dW_{Stark,AC}}{d\rho} = -\frac{1}{m} \frac{dW_{Stark,AC}}{dE} \frac{\partial E}{\partial \rho} \quad (4.1)$$

und

$$\ddot{\phi}\rho + 2\dot{\rho}\dot{\phi} = -\frac{1}{m} \frac{1}{\rho} \frac{dW_{Stark,AC}}{d\phi} = -\frac{1}{m} \frac{1}{\rho} \frac{dW_{Stark,AC}}{dE} \frac{\partial E}{\partial \phi}. \quad (4.2)$$

und

$$\ddot{z} = -\frac{1}{m} \frac{dW_{Stark,AC}}{dz} = -\frac{1}{m} \frac{dW_{Stark,AC}}{dE} \frac{\partial E}{\partial z}. \quad (4.3)$$

E bezeichnet hier den Betrag des gesamten elektrischen Feldes, also

$$E = \sqrt{|\vec{E}_\rho|^2 + |\vec{E}_\phi|^2 + |\vec{E}_z|^2} = \sqrt{|\vec{E}_\rho|^2 + |\vec{E}_\phi|^2}, \quad \text{da } E_z = 0.$$

Die Ableitung der AC-Starkenergie aus Gleichung (2.13) nach der Feldstärke ergibt:

$$\frac{dW_{Stark,AC}}{dE} = \pm \frac{\left(\mu \frac{MK}{2J(J+1)}\right)^2 E}{\sqrt{\frac{\Delta^2}{4} + \left(\mu E \frac{MK}{2J(J+1)}\right)^2}}, \quad (4.4)$$

damit folgt aus den Gleichungen (4.1, 4.2 und 4.3)

$$\ddot{\rho} = \mp \frac{1}{m} \frac{\left(\mu \frac{MK}{2J(J+1)}\right)^2 E}{\sqrt{\frac{\Delta^2}{4} + \left(\mu E \frac{MK}{2J(J+1)}\right)^2}} \frac{\partial E}{\partial \rho} + \rho \dot{\phi}^2 \quad (4.5)$$

$$\ddot{\phi} = \mp \frac{1}{m} \frac{1}{\rho} \frac{\left(\mu \frac{MK}{2J(J+1)}\right)^2 E}{\sqrt{\frac{\Delta^2}{4} + \left(\mu E \frac{MK}{2J(J+1)}\right)^2}} \frac{\partial E}{\partial \phi} - 2\dot{\rho}\dot{\phi} \quad (4.6)$$

$$\ddot{z} = \mp \frac{1}{m} \frac{\left(\mu \frac{MK}{2J(J+1)}\right)^2 E}{\sqrt{\frac{\Delta^2}{4} + \left(\mu E \frac{MK}{2J(J+1)}\right)^2}} \frac{\partial E}{\partial z}. \quad (4.7)$$

Für Moleküle in DC-tiefeldsuchenden Zuständen ist das Vorzeichen hier positiv und für Moleküle in DC-hochfeldsuchenden Zuständen negativ. Diese Gleichungen lassen sich für bekannte elektrische Feldverteilungen lösen. Für den in diesem Experiment verwendeten Hohlraumresonator wird die Verteilung des elektrischen Feldes nach Gleichung (3.38) mit der Resonanzfrequenz nach Gleichung (3.46) bestimmt. Die Berechnungen hierfür wurden mit dem Computerprogramm MATHEMATICA ausgeführt. (Der Quellcode findet sich im Anhang.) Die Ergebnisse der Trajektorienrechnung werden in Kapitel 6.2 zusammen mit den experimentellen Ergebnissen gezeigt.

Kapitel 5

Experimenteller Aufbau

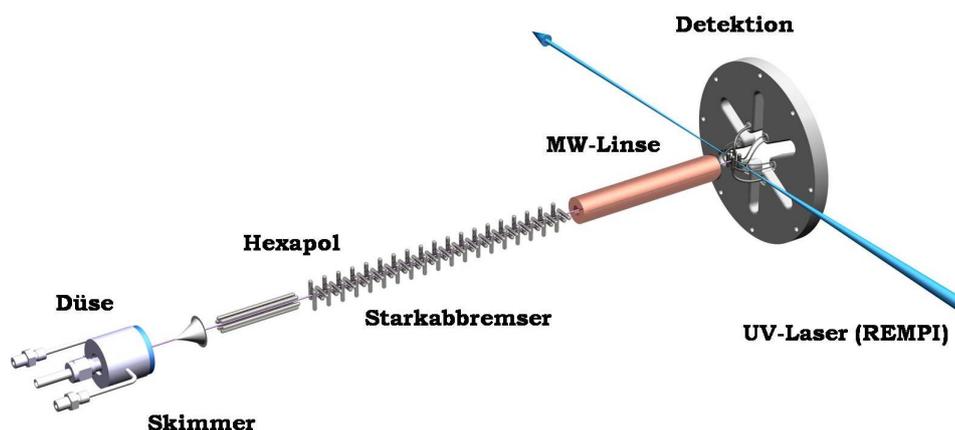


Abbildung 5.1: Der experimentelle Aufbau (schematische Darstellung).

Die Abbildung 5.1 zeigt eine schematische Darstellung (mit verzerrten Längenverhältnissen) der im Experiment verwendeten Molekülstrahlapparatur. Der gesamte Aufbau ist in eine Vakuumkammer eingebaut und wird über zwei Turbomolekularpumpen (TMU 501 und TMU 1001, Pfeiffer Vakuum) auf den Arbeitsdruck $2 - 4 \cdot 10^{-8}$ mbar gebracht. Der gepulste Molekülstrahl mit einem Volumenanteil von etwa 5% Ammoniak $^{14}\text{NH}_3$ in Xenon als Trägergas wird mit einer Düse (General Valve Series 9) mittels Überschallexpansion erzeugt (siehe Kapitel 2.2).

Die Düse wird mit flüssigem Stickstoff auf -70°C gekühlt, so dass die Molekülpakete im resultierenden Strahl eine Geschwindigkeit in longitudinaler Richtung von rund 280 m/s besitzen. Der Skimmer dient als differentielle Pumpstufe und trennt die Kammer in einen vorderen Bereich (Quellbereich), in dem ein deutlich höherer Druck vorherrscht, sowie einen Detektionsbereich, in dem sich der Starkabbremsers, die Mikrowellenlinse und die Detektionszone befinden. Außerdem gelangen nur Moleküle mit niedrigen transversalen Geschwindigkeiten durch den Skimmer in die Detektionskammer. Nach dem Skimmer passieren die Moleküle einen Hexapol, der für solche im DC-tiefelfsuchenden Zustand wie eine positive Linse fungiert und sie auf die Eintrittsöffnung des Starkabbremsers fokussiert. Im Abbremsers wird ein ausgewählter Teil der Moleküle sowohl transversal zusammengehalten als auch in longitudinaler Richtung abgebremst (siehe Abschnitt 2.5 zum Funktionsprinzip des Starkabbremsers). Direkt hinter dem letzten Elektrodenpaar des Starkabbremsers befindet sich in einem Abstand von etwa 3 mm die Mikrowellenlinse (siehe auch Abbildung 5.2). Die Detektionszone schließt sich an die Mikrowellenlinse an (siehe Abbildungen 5.1 und 5.3). Der genaue Detektionsmechanismus ist in Kapitel 5.2 näher beschrieben.

5.1 Mikrowellenlinse

Die Mikrowellenlinse ist ein Kupferrohr mit einem Innendurchmesser von $(7,41 \pm 0,02)\text{ mm}$, einem Außendurchmesser von 20 mm und einer Länge von 120 mm . Sie wird von einer Kupferkappe auf der Detektionsseite und einer Kupfer/Wolfram-Kappe (80% Cu zu 20% W) auf der Seite des Starkabbremsers verschlossen (siehe Abbildung 5.4). Das Kupfer/Wolfram-Gemisch wird verwendet, um Überschläge zu den auf $\pm 10\text{ kV}$ liegenden Hochspannungselektroden des Abbremsers zu vermeiden (siehe Kapitel 2.5). Um einen Mikrowellenresonator mit hoher Güte sicherzustellen, bietet sich Kupfer mit seiner hohen elektrischen Leitfähigkeit ($\sigma = 58 \cdot 10^6\text{ A/(Vm)}$) als Material an. Auf Grund seiner geringen Härte (Mohs-Härte: 3,0) und

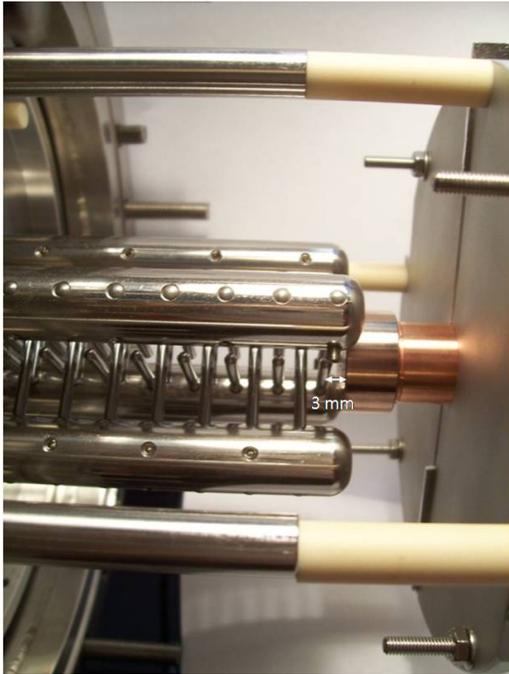


Abbildung 5.2: Bild vom Eingang des Resonators mit den letzten Abbremserstufen. Der Abstand zwischen dem letzten Elektrodenpaar des Abbremsers und der Mikrowellenlinse beträgt rund 3 mm.

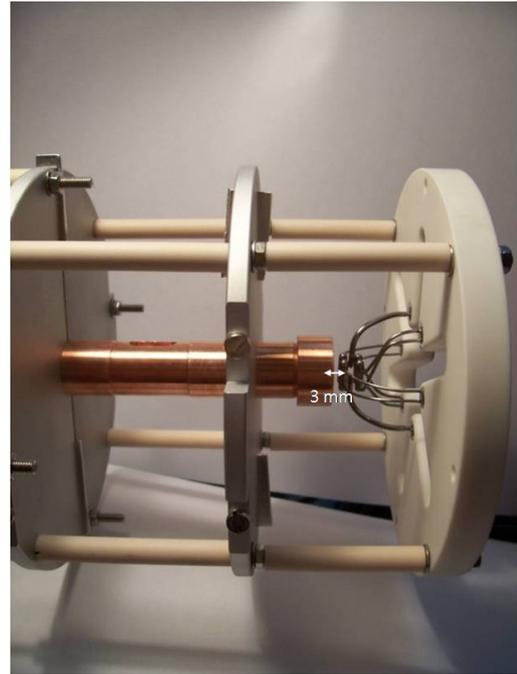


Abbildung 5.3: Bild vom Ausgang des Resonators inkl. der Elektrodenanordnung für die Detektion. Der Abstand zwischen der Endkappe und dem ersten Elektrodenpaar der Detektionszone beträgt rund 3 mm.

des niedrigen Schmelzpunktes ($T_S = 1084,4^\circ\text{C}$) ist Kupfer allerdings besonders anfällig für elektrische Überschläge. Wolfram hingegen ist extrem hochschmelzend ($T_S = 3422^\circ\text{C}$) und hart (Mohs-Härte: 7,5), also hervorragend für Hochspannungsexperimente geeignet.

Die beiden Kappen wurden gedreht und haben jeweils ein kleines Loch von 3 mm Durchmesser, um den Molekülstrahl hindurch zu lassen (siehe Abbildung 5.4). Die Außenseite, die den Hochspannungselektroden des Starkabbremsers zugewandt ist, wurde zusätzlich poliert, so dass das weiche Kupfer und damit die Überschlagsneigung deutlich reduziert werden konnte.

Der Lochdurchmesser (3 mm) ist deutlich kleiner als die Wellenlänge der verwendeten Mikrowellenstrahlung ($\lambda/2=6.31$ mm), somit ist der daraus resultierende Güteverlust des Resonators vernachlässigbar. Mit der Angabe der Güte aus Tabelle

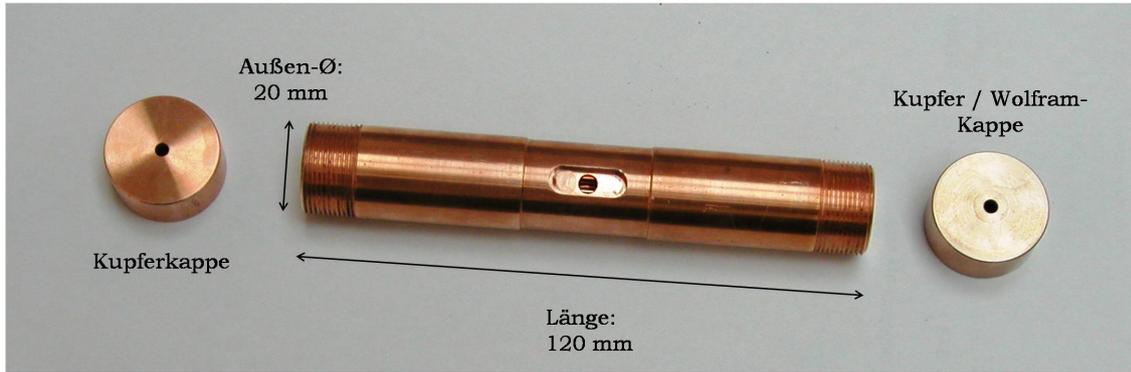


Abbildung 5.4: Bild des Resonators in Einzelteilen; bestehend aus: Kupferkappe (links), Kupfer-Hohlleiter mit Schraubgewinde und einer Kupfer/Wolfram-Kappe (rechts).

Mode TE_{11l}	ν_{Res} in MHz	FWHM	Güte Q_L	Einkopplung	<i>detuning</i>
$l=2$	23765	4,5 MHz	5280	98%	71 MHz
$l=4$	24153	7,0 MHz	3450	95%	459 MHz
$l=6$	24778	6,0 MHz	4130	95%	1084 MHz
$l=8$	25635	6,0 MHz	4270	70%	1941 MHz

Tabelle 5.1: Eigenschaften der resonanten TE -Moden in der Mikrowellenlinse.

5.1 kann die maximale Feldstärke E_0 der TE_{112} -Mode im Resonator abgeschätzt werden. Für die gespeicherte Energie des Feldes gilt:

$$W = \frac{1}{2} \epsilon_0 E_0^2 V,$$

mit dem Resonatorvolumen $V = \pi r^2 d$ und der Dielektrizitätskonstante $\epsilon_0 = 8.8542 \cdot 10^{-12} \text{ C}^2/(\text{Jm})$. Unter der Annahme, dass die Verlustleistung genau der eingespeisten Leistung P_{In} entspricht, kann die Gleichung (3.1) umgestellt werden zu

$$W = \frac{Q \cdot P_{In}}{\omega_{112}}.$$

Löst man diese Gleichung nach der maximalen Feldstärke E_0 auf, dann erhält man

$$E_0 = \sqrt{\frac{2Q_L P_{In}}{\pi \nu_{112} \epsilon_0 V}}. \quad (5.1)$$

Mit den Werten aus Tabelle 5.1 und einem effektiven Radius, der aus den Abständen der einzelnen Resonanzfrequenzen bestimmt wurde ($r_{eff} = 7.437/2 \text{ mm}$), erhält

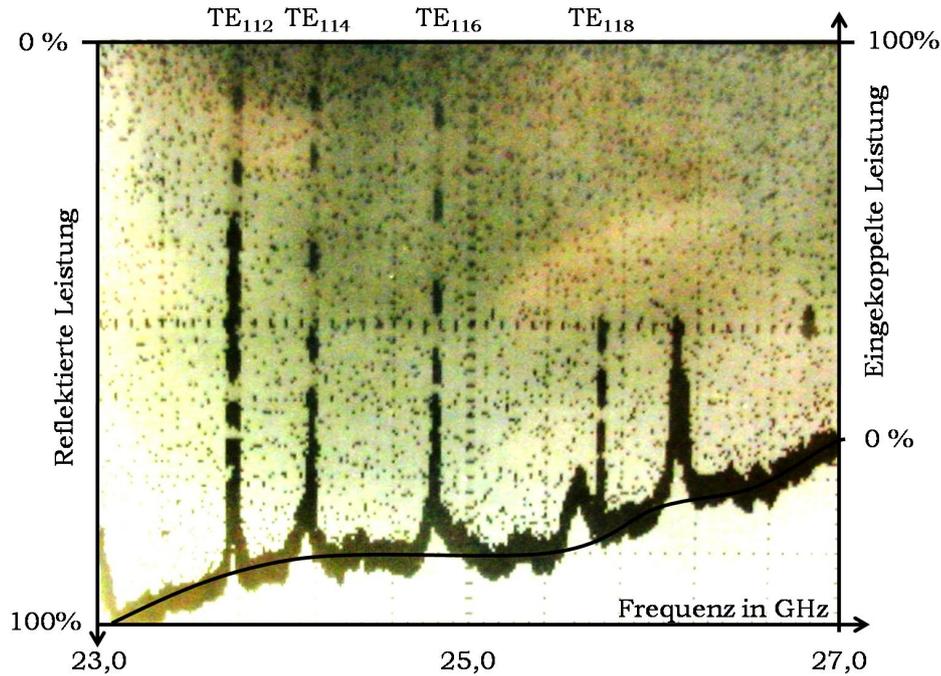


Abbildung 5.5: Hier ist der Quotient aus reflektierter Leistung geteilt durch die eingespeiste Leistung P_R/P (bzw. der Quotient aus eingekoppelter und eingespeister Leistung $P_{EK}/P=1-P_R/P$) über der Frequenz dargestellt. An den Peaks, bei denen die reflektierte Leistung gegen null geht, kann man deutlich die Resonanzfrequenzen erkennen. Die interessanten Größen der Resonanzen sind in Tabelle 5.1 dargestellt.

man für die maximale Feldstärke bei $P_{In} = 6,5$ Watt:

$$E_0 = 1.41 \frac{kV}{cm}. \quad (5.2)$$

Die Mikrowellenstrahlung wird kapazitiv über den Innenleiter eines Koaxialkabels eingekoppelt. Diese Antenne aus vergoldetem Nickel ragt genau in der Mitte des Resonators in die Kavität und ist bei einem Durchmesser von nur 0,4 mm etwa 5,5 mm lang. In Abbildung 5.4 ist das Loch zur Einkopplung deutlich sichtbar. Die Abmessungen sind wichtig für eine effektive Einkopplung und ein hohes Q_L , allerdings ziehen sie auch einige negative Konsequenzen nach sich. Die Antenne ist ein Hindernis für den Molekülstrahl, da sie weit über die Zylinderachse hinausragt. (Der Durchmesser des Resonators beträgt nur 7,41 mm.) Alternative Einkopplungsme-

thoden, z.B. über einen Hohlleiter, sind jedoch zu aufwendig für den hier verwendeten Hohlraumresonator und haben noch zusätzliche Nachteile. Ein weiterer Effekt, der durch die Antenne hervorgerufen wird, ist das Verschwinden aller TE_{11l} -Moden mit ungeraden l . Die Antenne ist im Prinzip ein idealer Leiter und fordert somit einen Knoten des elektrischen Feldes genau bei $z = \text{Resonatorlänge} / 2$. Da Moden mit geraden l genau dort ein Maximum aufweisen, werden sie maximal gestört. Moden mit geradem l besitzen genau bei $z = \text{Resonatorlänge} / 2$ einen Knoten, erfüllen die Randbedingung und werden nicht gestört. Abbildung 5.5 zeigt einen Frequenzscan über die Resonanzen und verdeutlicht die in Tabelle 5.1 gegebenen Werte.

Der elektronische Aufbau (Abbildung 5.6) für die Mikrowellenfokussierexperimente ist der Folgende: Die Mikrowellenstrahlung wird mit einem Mikrowellengenerator (SMR 27, Rhode & Schwarz; Frequenzbereich 1 kHz - 27 GHz, max. Ausgangsleistung $W=1000$ mW) (Abbildung 5.6, **1**) erzeugt. Sie passiert einen vom Messrechner gesteuerten Hochgeschwindigkeitspindiodenschalter ((SFB-0526, Sierra Microwave), **2**) und wird im Anschluss mit einem speziellen Festkörperverstärker (Kuhne Elektronik, modifizierter KU 2410A für 23,694 GHz, **4**) mit einer maximalen Ausgangsleistung von 40 dBm (10 Watt) verstärkt. Bedingt durch Verluste in den zuführenden Kabeln, der Vakuumdurchführung und den weiteren Bauteilen (siehe Abbildung 5.6) beträgt die maximale Eingangsleistung in den Resonator circa 6,5 Watt. Bei resonant eingekoppelter Leistung kann je nach Einkopplung die komplette Leistung ins Mikrowellenfeld gespeist werden. Bei nicht resonanten Frequenzen wird die Leistung reflektiert und am Zirkulator (SMC1826, SMT, **5**) über den dritten Ausgang zunächst durch einen regelbaren Abschwächer ((AF868-10, Advanced Technical Materials), **6**) und dann auf eine Detektordiode (8473C Agilent, **7**) geleitet. Der Aufbau lässt eine permanente Kontrolle der Einkopplung, also der Resonanzfrequenz, über ein Oszilloskop (TDS 220, Tektronix, **8**) zu.

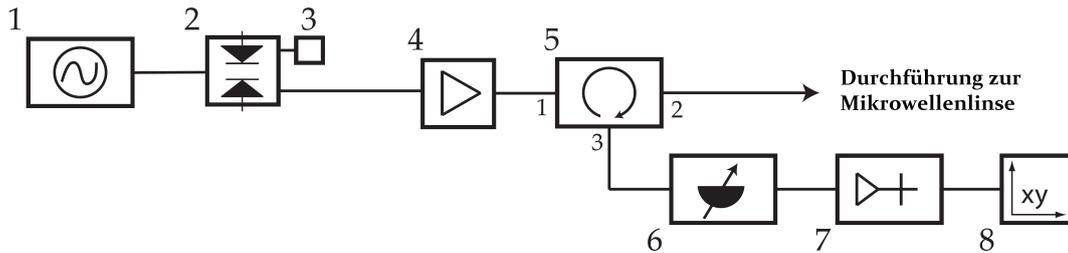


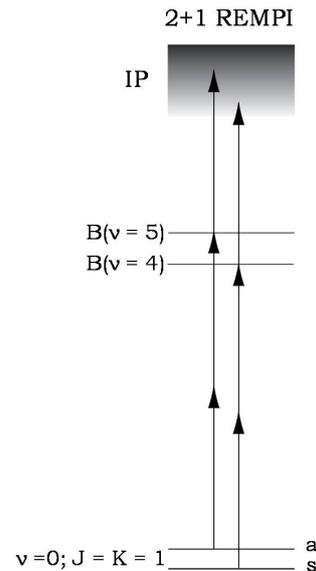
Abbildung 5.6: Schematische Darstellung des Aufbaus der verwendeten Mikrowellenelektronik: 1: Mikrowellensignalgenerator 1 kHz - 27 GHz (SMR 27, Rohde & Schwarz), 2: Pindiodenschalter SPDT (SFB-0526, Sierra Microwave), 3: 50 Ohm Abschluss, 4: Leistungsverstärker (MKU-2410 A, Kuhne Elektronik), 5: Zirkulator 18-26 GHz (SMC1826, Sierra Microwave), 6: regelbarer Abschwächer 14-26 GHz (AF868-10, Advanced Technical Materials), 7: Detektordiode 10 MHz - 26,5 GHz (8473C, Agilent), 8: Oszilloskop (TDS 220, Tektronix)

5.2 Detektion von Ammoniak

Die Ammoniakmoleküle werden mit Hilfe des sogenannten 2+1 REMPI-Prozesses detektiert. REMPI steht für „*Resonance enhanced multi-photon ionisation*“, also resonanzverstärkter Multiphotonenionisierung, und bedeutet, dass mit zwei Photonen einer Lichtquelle das Molekül aus dem Grundzustand X in den elektronisch angeregten B -Zustand überführt und danach mithilfe eines dritten Photons der gleichen Lichtquelle ionisiert wird (Abbildung 5.7). Das entstandene Ion wird anschließend mittels Flugzeitmassenspektrometrie (*time-of-flight*, TOF) detektiert.

Die für Multiphotonenübergänge erforderlichen Leistungsdichten werden mit einem Farbstofflaser, der von einem Nd-YAG-Laser gepumpt wird, im nahen Ultraviolett bei 317 nm erzielt. Neben der hohen Detektionsausbeute ist der Vorteil dieser Methode die Möglichkeit, die Ammoniakmoleküle in hochfeldsuchenden bzw. in tieffeldsuchenden Zuständen selektiv zu detektieren. Die Moleküle im symmetrischen, hochfeldsuchenden $|J, K, s\rangle$ para-Grundzustand werden wegen der Symmetriehaltung bei Zweiphotonenprozessen in verschiedene Rotationszustände des ebenfalls symmetrischen $\nu=4$ - Vibrationszustands im angeregten elektronischen B -Zustand

Abbildung 5.7: Schematische Darstellung des 2+1 REMPI - Prozesses im Ammoniakmolekül (mit verzerrten Energieabständen zur besseren Visualisierung) [80]



überführt und anschließend mit einem dritten Photon ionisiert (siehe Abbildung 5.7). Die Moleküle im antisymmetrischen tieffeldsuchenden $|1, 1, a\rangle$ -Zustand werden über Rotationszustände des antisymmetrischen Zwischenniveaus $B(\nu_2 = 5)$ ionisiert. In Abbildung 5.8 ist das rotationsaufgelöste REMPI-Spektrum für $^{14}\text{NH}_3$ im antisymmetrischen, tieffeldsuchenden $|J, K\rangle = |1, 1\rangle$ -Grundzustand mit und ohne elektrisches Feld gezeigt. Die beiden Messungen sind direkt hinter dem Stark-Abbremsler aufgenommen worden. Gut zu erkennen ist insbesondere der fokussierende Effekt auf Moleküle in DC-tieffeldsuchenden Zuständen durch die Felder im Starkabbremsler. Für die Detektion im Experiment findet der stärkste Übergang mit $\nu_{\text{Laser}} = 16008,6 \text{ cm}^{-1}$ Verwendung.

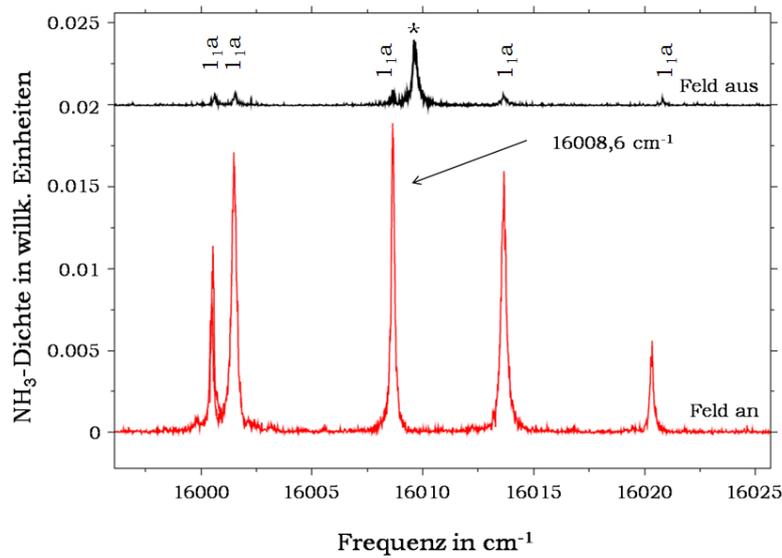


Abbildung 5.8: Rotationsaufgelöstes REMPI-Spektrum für $^{14}\text{NH}_3$ sowohl mit fokussierenden Feldern im Abbremsers (unten), als auch ohne elektrische Felder (oben). Der Ionisationskanal ist der $X(\nu_2 = 0) \rightarrow B(\nu = 5)$ -Übergang. Das Niveau J_K aus dem die Moleküle angeregt werden ist über den jeweiligen Peaks für den feldfreien Fall angegeben. Das mit einem Stern gekennzeichnete feldfreie Maximum lässt sich nicht eindeutig zuordnen. Es ist jedoch eindeutig ein hochfeldsuchender Zustand, der möglicherweise von höheren ν - oder J -Zuständen herrührt. Für die spätere Detektion wird der mit einem Pfeil gekennzeichnete Übergang verwendet.

Kapitel 6

Ergebnisse

6.1 Abbremsexperimente mit $^{14}\text{NH}_3$

In vorbereitenden Experimenten wurde zunächst die Starkabbremmung von $^{14}\text{NH}_3$ im tieffeldsuchenden $|J, K\rangle = |1, 1\rangle$ -Zustand optimiert. Das für die Starkabbremmung wegen der kleineren Inversionsaufspaltung deutlich besser geeignete ND_3 (siehe Abbildung 2.4) kam für die im Anschluss durchgeführten Fokussierexperimente nicht in Frage. Denn genau diese kleinere Inversionsaufspaltung von etwa 1,5 GHz lässt die passenden zylindersymmetrischen Hohlraumresonatoren auf einen Durchmesser von etwa 11 cm anwachsen. Ein solcher Resonator wäre zum einen zu groß für die Maschine, zum anderen müsste die Mikrowellenleistung um ein Vielfaches erhöht werden, um ähnliche Gradienten zu erzeugen. Eine derartig hohe Mikrowellenleistung zieht wiederum (abgesehen von der Sicherheit) neue Probleme nach sich, wie z.B. eine Temperaturstabilisierung in Form von aktiver Kühlung.

Die Abbremsexperimente wurden ohne Mikrowellenresonator gemessen, d.h. die REMPI-Detektionszone schloss sich direkt an den Starkabbremser an (siehe auch Abbildung 5.1). In Abbildung 6.1 sind Flugzeitmessungen für abgebremste Molekülpakete mit 100, 50, 30 und 17 m/s dargestellt. Zusätzlich ist eine Flugzeitmessung ohne elektrische Felder im Abbremsgerät gezeigt. Alle Kurven haben das Maximum

des ungebremsten Strahls mit $v=280$ m/s bei etwa 1,8 ms. Werden die Felder eingeschaltet, wird das Signal aufgrund von Fokussiereffekten im Abbremsers deutlich erhöht (siehe auch Kapitel 2.5).

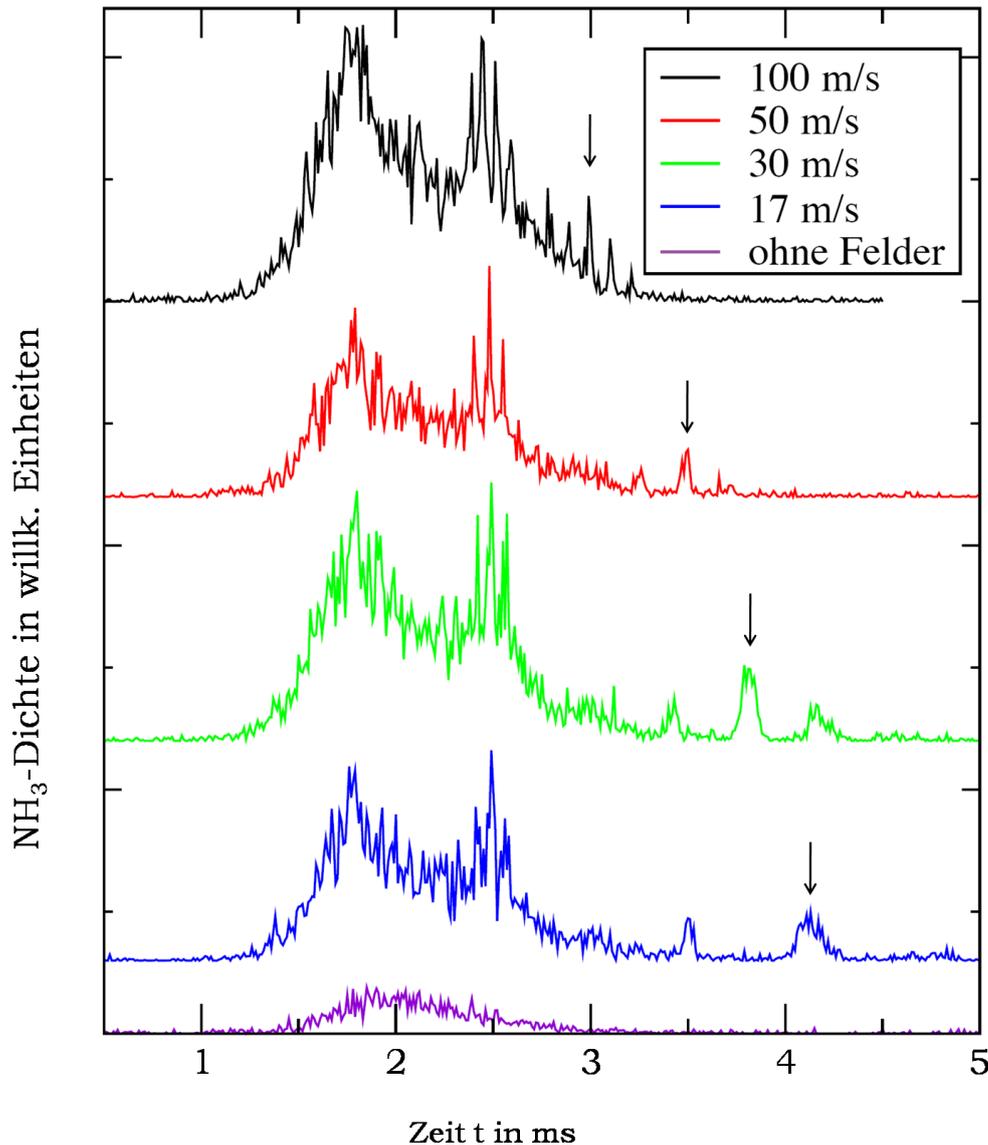


Abbildung 6.1: Flugzeitmessungen für verschiedene Abbremsexperimente mit $^{14}\text{NH}_3$. Die Detektionszone liegt für diese Messungen direkt hinter dem Starkabbremsers. Aufgetragen sind die Kurven für die Molekülpaketgeschwindigkeiten 100, 50, 30 und 17 m/s sowie ohne Felder. Bei allen Messungen kann man bei etwa 1,8 ms den unabgebremsten Strahl beobachten. Die Ankunftszeit der abgebremsten Moleküle in der Detektionszone ist mit einem Pfeil gekennzeichnet.

Aus der Düse kommt ein ausgedehntes Molekulpaket, das deutlich größer ist als der Abstand zwischen den Elektrodenpaaren im Abbremsers. Die Folge ist eine Aufspaltung des Molekulpakets in mehrere Teile. Die Schaltzeiten für die Elektroden sind speziell auf das synchrone Molekulpaket, also das Paket, welches das synchrone Molekül enthält, angepasst. Es gibt dann ein Molekulpaket, welches dem synchronen Molekulpaket um den Abstand der Elektrodenpaare (L) vorausseilt und ebenfalls synchron, aber einmal weniger abgebremst wird. Es gibt genauso ein Molekulpaket, das dem Synchronen um den Elektrodenabstand L folgt. Dieses Molekulpaket erfährt genauso viele Schaltzyklen wie das Synchrone und wird daher auf die gleiche Geschwindigkeit abgebremst, verlässt den Abbremsers allerdings etwas später. Dieser Effekt zieht also immer wenigstens drei abgebremste Peaks nach sich, die auch in den Flugzeitmessungen wieder gefunden werden können. Das Paket mit dem synchronen Molekül, das zur angegebenen Geschwindigkeit gehört, ist mit einem Pfeil markiert (siehe Abbildung 6.1). Je niedriger die Endgeschwindigkeit gewählt wird, desto geringer wird die Ammoniakdichte in der Detektionszone. Der Grund hierfür ist die Phasenstabilität in einem Starkabbremsers, die abnimmt, je stärker abgebremst wird (siehe dazu auch Kapitel 2.5). Es ist bemerkenswert, dass für das auf 17 m/s abgebremste Molekulpaket noch Dichten erreicht werden, wie sie im warmen Strahl ohne elektrische Felder auftreten.

Diese Messung ist als Auftakt der Fokussierexperimente zu sehen. Im Anschluss wurde die Mikrowellenlinse in die Vakuumkammer eingebaut. Die Aufnahme von Abbremskurven analog zu Abbildung 6.1 wurde aufgrund des langen Freiflugs zwischen Starkabbremsers und Detektionszone (ca. 135 mm) unmöglich (Abbildung 6.6D).

6.2 Fokussierexperimente

Für die Fokussierexperimente wurde die Mikrowellenlinse eingeschaltet, sobald das synchrone Molekül nach Verlassen des Abbremsers durch das Eintrittsloch in die Linse gelangt ist. Bei Austritt des synchronen Moleküls wurde die Mikrowellenstrahlung wieder ausgeschaltet. Für auf 20 m/s abgebremste Moleküle entspricht das einer Fokussierzeit von 6 ms. Es wurde die TE₁₁₂-Mode bei 23765 MHz, also einem *detuning* von $\Delta=71$ MHz, und mit einem gemessenen Q_L -Faktor von 5280 verwendet (siehe Tabelle 5.1). Die Temperaturerhöhung durch Ohmsche Verluste an der Resonatoroberfläche führt aufgrund der gepulsten Mikrowelle und dem massiven Kupferresonator nur zu einer leichten Verschiebung der Resonanzfrequenzen im kHz Bereich. Damit ist die Temperaturstabilität auch ohne aktive Kühlung ausreichend für das Experiment.

Abbildung 6.2 zeigt verschiedene Flugzeitmessungen für Molekülpakete, die mit einer longitudinalen Geschwindigkeit von $v_z \approx 20$ m/s die Mikrowellenlinse passieren. Die schwarze Kurve zeigt die Intensität an NH₃-Molekülen ohne Mikrowellenstrahlung im Resonator. Das resultierende Molekülpaket ist in diesem Fall aufgrund des langen Freiflugs sehr schwach, aber durchaus noch erkennbar. Die drei Kurven sind mit eingeschaltetem Mikrowellenfeld, aber unterschiedlichen Mikrowellenleistungen gemessen worden. Zunächst fällt auf, dass die maximale Dichte für auf 20 m/s abgebremste ¹⁴NH₃-Moleküle um einen Faktor 5 zunimmt, wenn die Mikrowellenlinse eingeschaltet ist (mit 6 W Eingangsleistung). Die volle Breite bei halber Höhe (*full width at half maximum*, FWHM) ist nur wenig geringer. Eine longitudinale Fokussierung (*bunching*) tritt, wie zu erwarten, kaum auf. Zudem sind die Maxima der einzelnen fokussierten Signale gegenüber dem nicht-fokussierten und auch gegeneinander verschoben ($t_{max}=10,05$ ms für 6,5 W, $t_{max}=10,21$ ms für 6,0 W, $t_{max}=10,47$ ms für 5,0 W sowie $t_{max}=10,41$ ms ohne Mikrowellenstrahlung). Hier treten mehrere Effekte auf, die in diese Verschiebungen kulminieren. Das Mo-

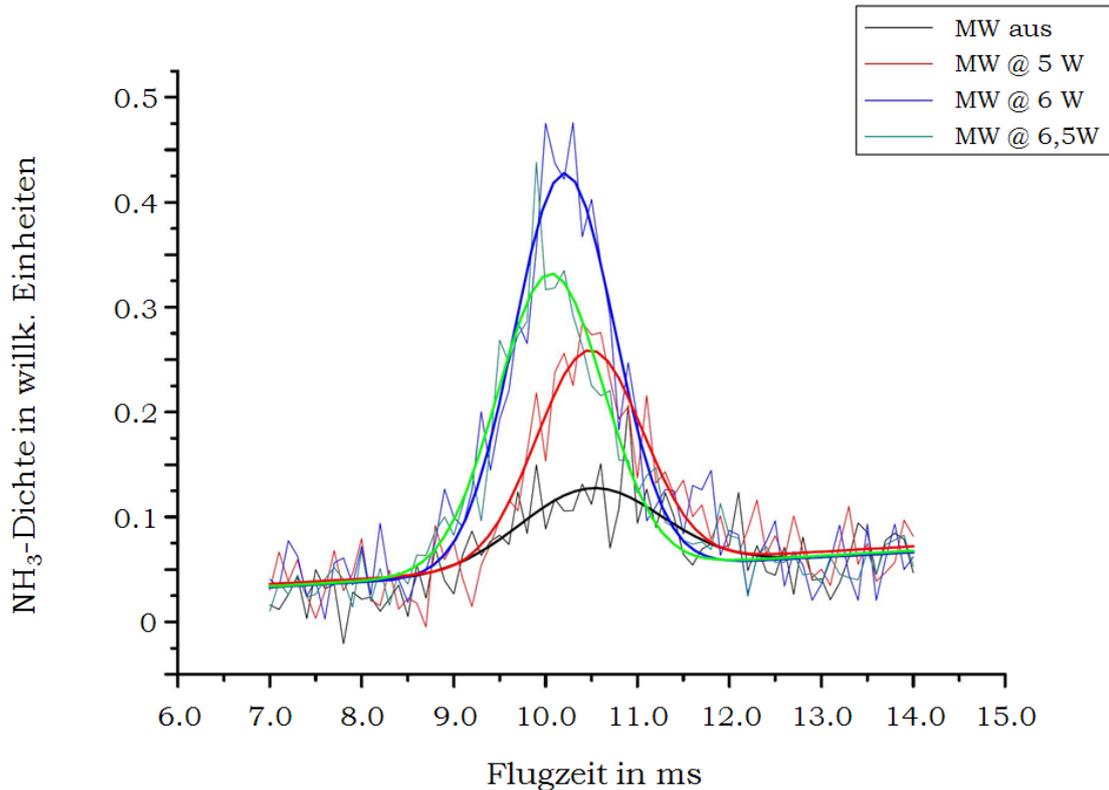


Abbildung 6.2: Flugzeitmessungen für den auf etwa 20 m/s abgebremsten und anschließend mittels Mikrowellenstrahlung fokussierten NH_3 -Strahl: Die Zeit bezieht sich auf die Flugzeit vom Eintritt in den Hexapol (vgl. Abbildung 5.1) bis zur Detektion. Aufgetragen sind Messungen mit verschiedenen Mikrowellenleistungen sowie ohne Mikrowellenstrahlung mit ihren jeweiligen Gauß-Anpassungsrechnungen. Die Maxima liegen bei $t=10,05$ ms für 6,5 W, $t=10,21$ ms für 6W und $t=10,47$ ms für 5 W. Im feldfreien Fall ist die Moleküldichte in der Detektionszone nach $t=10,4$ ms am Größten. Die Halbwertsbreiten der Maxima sind in allen vier Fällen etwa gleich groß.

lekülpaket, welches die Linse passiert, besitzt nicht nur eine räumliche Ausdehnung, sondern auch eine Verteilung der Geschwindigkeiten. Geht man von einer konstanten Geschwindigkeit in der Linse aus, dann hängen die Molekülgeschwindigkeiten linear mit der Flugzeit zusammen. Bei höherer Mikrowellenleistung werden nun mehr der in Strahlrichtung schnelleren Moleküle fokussiert als bei niedriger Leistung. Die Folge ist eine Verschiebung des Signalmaximums. Ein weiterer, allerdings sehr kleiner Effekt ist die Tatsache, dass die Geschwindigkeit der Moleküle innerhalb der Linse nicht konstant bleibt. Die Gradienten des elektrischen Feldes in z-Richtung

sind verschieden von Null, damit erfahren die Moleküle eine Kraft. Aufgrund der Intensitätsverteilung bewirkt diese Kraft netto eine kleine Beschleunigung gegenüber dem feldfreien Fall. Dieser führt zu zusätzlichen zeitlichen Verschiebungen der Maxima, abhängig von der Feldstärke bzw. Mikrowellenleistung.

In einem weiteren Experiment wurde die optimale Zeit für 6 Watt Eingangsleistung

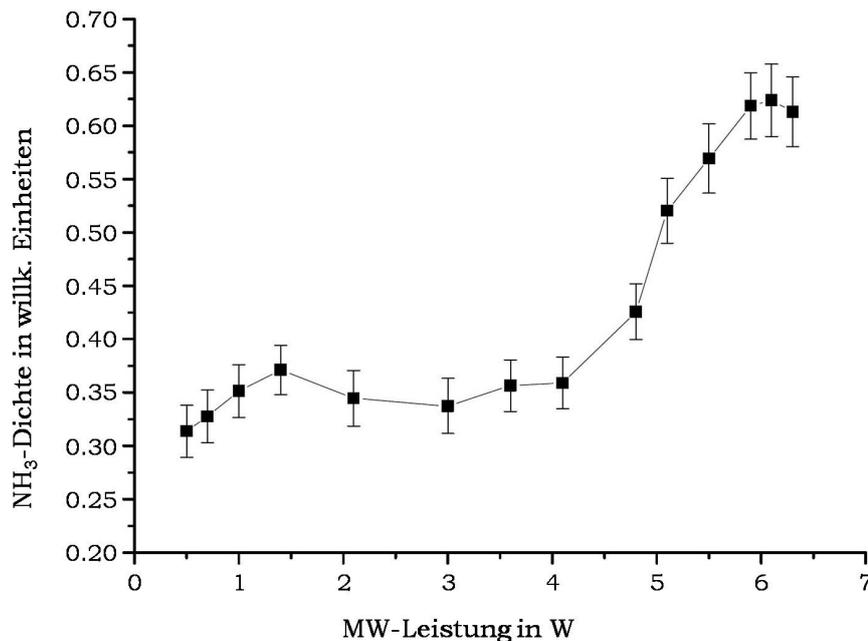


Abbildung 6.3: Fokussierkurve für einen auf 20 m/s abgebremsten NH₃-Strahl bei einer Detektionszeit von $t=10,21$ ms. Die Ammoniakdichte in der Detektionszone nimmt mit zunehmender Mikrowellenleistung bis etwa 6 W Leistung zu. Danach bleibt die Signalstärke stabil bzw. nimmt sogar leicht ab.

gewählt ($t_{max}=10,2$ ms, Abbildung 6.2) und die Abhängigkeit der Signalstärke von der Eingangsleistung untersucht. So kann eine Fokussierkurve, wie sie in Abbildung 6.3 für $v_z \approx 20$ m/s dargestellt ist, aufgenommen werden. Auch hier ist der Fokussiereffekt durch die Mikrowellenstrahlung deutlich sichtbar. Es fällt ein kleines lokales Maximum bei etwa 1,5 W auf. Außerdem erreicht die Ammoniakdichte ein Maximum bei etwa 6 W und bleibt bei höheren Leistungen konstant bzw. nimmt sogar wieder etwas ab.

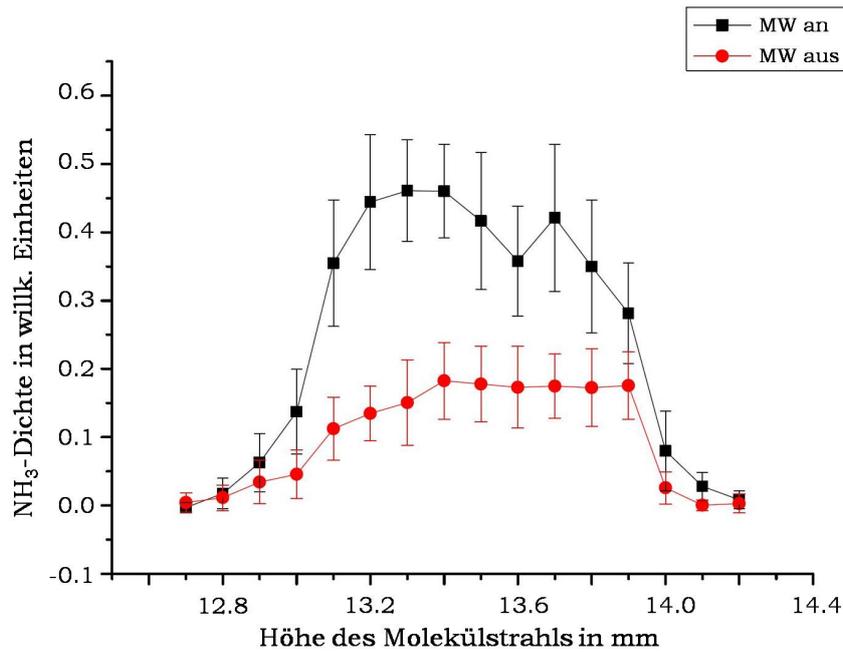


Abbildung 6.4: Höhenprofil des abgebremsten Molekülpakets ($v=20\text{m/s}$) mit und ohne fokussierendes Feld. Man erkennt eine deutliche Erhöhung des Molekülsignals, aber keine wirkliche Fokussierung in Form einer geringeren Breite.

Zudem wurde das Profil des Molekülstrahls vermessen (Abbildung 6.4). Hierfür wird der Laserfokus vertikal durch den Molekülstrahl bewegt. Der Fokussiereffekt ist auch hier deutlich erkennbar, allerdings tritt keine Abnahme der Breite auf.

Die das Experiment ergänzenden Trajektorienrechnungen (siehe Kapitel 4) wurden zunächst auf nur zwei Dimensionen und 101 Moleküle beschränkt. Alle Simulationen zeigen nur Moleküle, die sich in einer bestimmten Ebene, charakterisiert durch den Winkel ϕ (siehe Abbildung 6.5) entlang der Zylinderachse durch den Resonator bewegen. Für eine sinnvolle Abschätzung der Prozesse innerhalb der Linse sollten also immer mindestens drei verschiedene Ebenen betrachtet werden ($\phi = 0^\circ$, 45° und 90°). Die Startbedingungen sind für alle Simulationen gleich. Die Moleküle starten von einem Punkt, also $z=\rho=0$. Der Winkel ϕ wird konstant gehalten. Die Startwerte für die Geschwindigkeit werden zufällig aus einer Normalverteilung mit dem Erwartungswert μ und der Standardabweichung σ zugewiesen (siehe Tabel-

le 6.1). Die Abbildung 6.6D zeigt die Simulation des Molekülstrahls mit $v_z \approx 20$

Geschwindigkeit	μ	σ
$v_{\rho,0}$	0 m/s	3 m/s
$v_{z,0}$	20,12 m/s	5 m/s

Tabelle 6.1: Tabelle der Anfangswerte für die Simulationen. μ und σ bezeichnen den Erwartungswert und die Standardabweichung einer Normalverteilung.

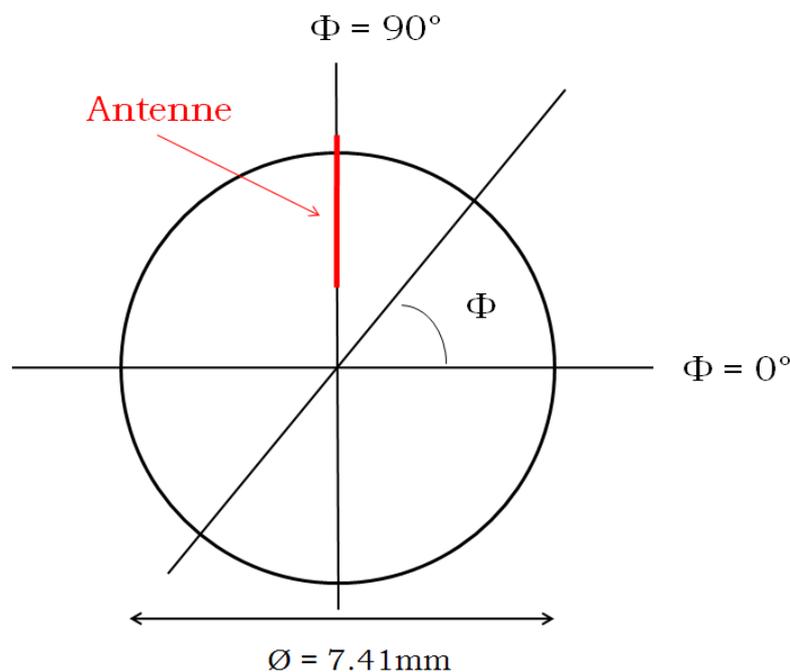


Abbildung 6.5: Darstellung des Winkels ϕ im Querschnitt des Resonators. Die Antenne ist zur Orientierung rot hervorgehoben.

m/s bei ausgeschaltetem Mikrowellenfeld. Man erkennt deutlich die Verluste im feldfreien Kupferresonator durch Kollisionen mit den Wänden. Von 101 gestarteten Molekülen gelangen durchschnittlich 10 Moleküle durch den Resonator. Dies erklärt die drastische Abnahme der Moleküldichte für abgebremste Moleküle hinter dem Kupferresonator (Abbildung 6.2), verglichen mit den Messungen direkt hinter dem Abbremsler (Abbildung 6.1). Wird das Mikrowellenfeld jedoch eingeschaltet

(Abbildung 6.6), dann werden die Moleküle je nach Schnittebene unterschiedlich stark transversal fokussiert. Für den Molekülstrahl mit $v_z \approx 20$ m/s zeigt sich, dass sowohl die stark fokussierende $\phi=0^\circ$ -Ebene (siehe dazu auch Abbildung 3.6), als auch die am wenigsten fokussierende Ebene mit $\phi=90^\circ$ einen Fokus in der Nähe der Detektionszone besitzen. Bei der 0° -Ebene handelt es sich um den ersten Oberton. Auch für die beiden 45° -Ebenen befinden sich die Foki in der Nähe der Detektionszone. Damit lässt sich die experimentell gefundene, deutliche Überhöhung des Signals erklären (Faktor 5). Die Simulationen zeigen weiterhin, dass der erste Fokus für die 0° -Ebene dann in die Detektionszone rückt, wenn die Mikrowellenleistung etwa 1,0 - 1,5 Watt beträgt. Dies deckt sich mit den experimentellen Resultaten, die dort für $v_z = 20$ m/s ein kleines lokales Maximum aufweisen (siehe Abbildung 6.3).

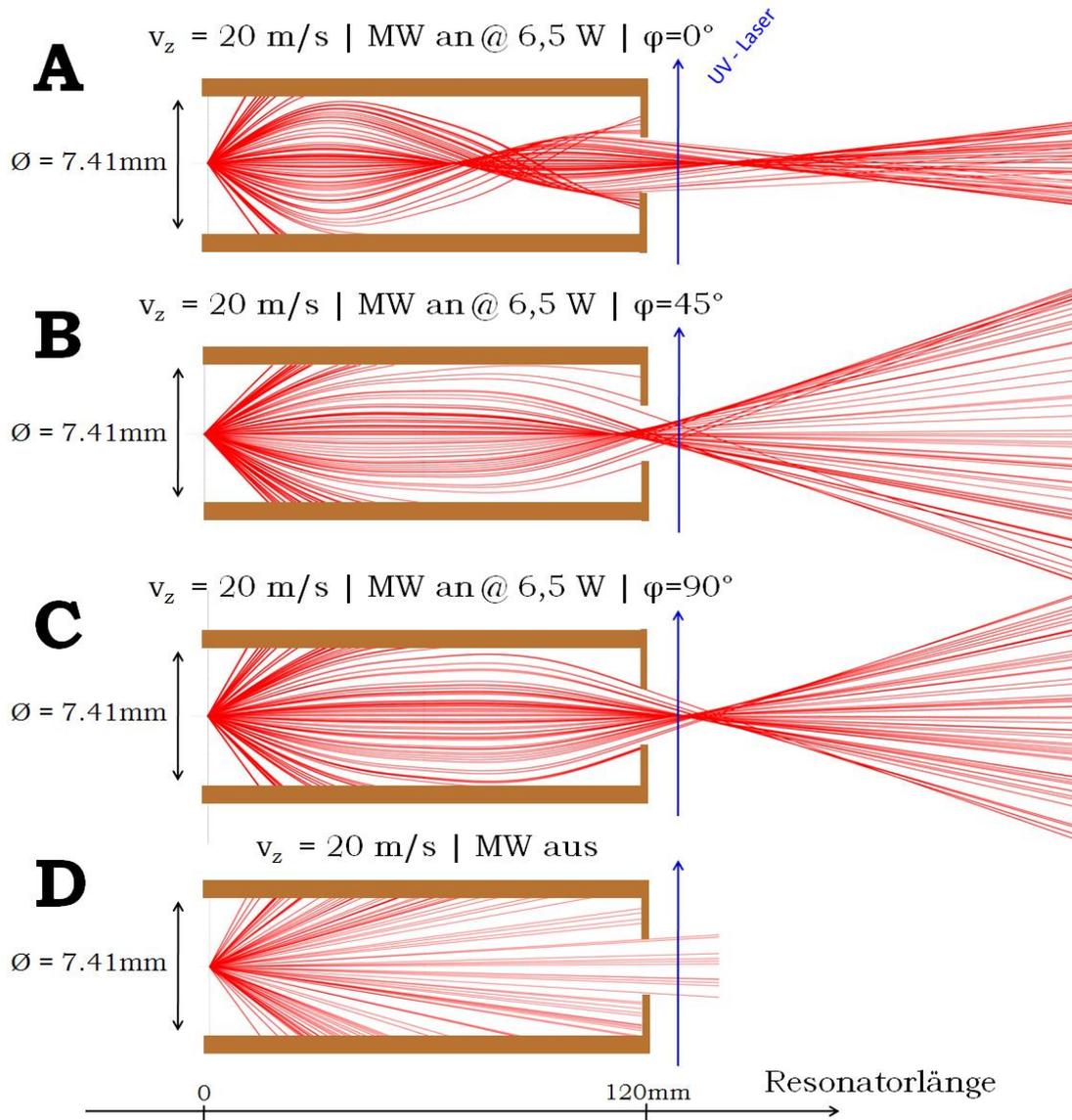


Abbildung 6.6: Simulierte Trajektorien für 101 Moleküle mit einer Geschwindigkeit in longitudinaler Richtung von $v_z = 20 \text{ m/s}$ im Hohlraumresonator. In den Darstellungen A-C wird das Mikrowellenfeld berücksichtigt. Da das Feld nicht zylindersymmetrisch ist, sind drei repräsentative Schnittebenen längs durch den Resonator angegeben ($\phi = 0^\circ$ (A) , 45° (B) und 90°). In Darstellung (D) sind die Trajektorien für den feldfreien Fall angegeben.

6.2.1 Fokusslänge - Vergleich mit einer Hexapollinse

Im Folgenden soll die Abhängigkeit der Fokusslänge der verwendeten Mikrowellenlinse von allen wichtigen Parametern näher betrachtet werden. Darüber hinaus sollen

diese Eigenschaften mit denen einer Hexapollinse für polare Moleküle verglichen werden (siehe auch Tabelle 6.2).

Wird die Molekülstrahlquelle als eine Punktquelle angenommen und darüber hinaus die Geschwindigkeit in longitudinaler Richtung innerhalb der Linse als konstant angenommen, dann gilt folgende Beziehung für die Oszillationen der Moleküle in der Linse:

$$r(z) = r_m \sin \kappa z \quad (6.1)$$

Der Fokuspunkt soll direkt am Ausgang der Linse mit der Länge L sein ($r(z = 0) = r(z = L) = 0$). Daraus folgt die Beziehung

$$\kappa L = n\pi$$

für n Oszillationen. Aufgespalten in radiale und longitudinale Komponente ergeben sich die Flugzeiten

$$t_z = \frac{L}{v_z}$$

und

$$t_r = \frac{T}{2}n, \quad n = 1, 2, \dots$$

mit der Schwingungsdauer in radialer Richtung T . Für den Fokus gilt dann genau $t_z = t_r$ und damit:

$$\frac{L}{v_z} = \frac{T}{2}n \quad (6.2)$$

Unter Vernachlässigung von $\frac{\Delta^2}{4}$ unter der Wurzel der AC-Starkenergie (siehe Gleichung 2.13), erhält man ein harmonisches Potential für ein Teilchen im Mikrowellenfeld. Daraus ergibt sich für die Schwingungsdauer T :

$$T = 2\pi \sqrt{\frac{m}{f}}, \quad (6.3)$$

wobei f für die Kraftkonstante steht. Einsetzen in Gleichung (6.2) liefert

$$\frac{L}{v_z} = n\pi \sqrt{\frac{m}{f}} \quad (6.4)$$

$$\iff \frac{\sqrt{f}}{\sqrt{m}v_z} = \frac{n\pi}{L} \quad (6.5)$$

$$\implies \frac{\frac{1}{2}f}{\frac{1}{2}mv_z^2} = \left(\frac{n\pi}{L}\right)^2 \quad (6.6)$$

multiplizieren mit r^2 liefert einen allgemeingültigen Ausdruck für jedes harmonische Potential, das zur Fokussierung verwendet wird:

$$\frac{W(r)}{\frac{1}{2}mv_z^2} = \left(\frac{rn\pi}{L}\right)^2, \text{ mit } W(r) = \frac{1}{2}fr^2. \quad (6.7)$$

Für den Hexapol ergibt sich nach Referenz [81] unter Verwendung des DC-Stark-Effekts (2.10) für die Fokusslänge L:

$$L = n\pi\sqrt{r_{6p}^3}\sqrt{\frac{J(J+1)mv_z^2}{6|KM|\mu V}} \quad (6.8)$$

mit der Spannung zwischen den Hexapolelektroden V, dem Dipolmoment μ und dem inneren Radius des Feldes r_{6p} . Für die Mikrowellenlinse, betrieben mit der TE_{112} -Mode, gilt gemäß Gleichung (2.13) und unter der Annahme ($\Delta \ll \frac{\mu KM}{2J(J+1)}E$):

$$W_{MW}(\chi) = -\sqrt{\frac{\Delta}{4} + \left(\frac{\mu KM}{2J(J+1)}\right)^2} E^2 \quad (6.9)$$

$$\approx -\frac{\mu KM}{2J(J+1)}E. \quad (6.10)$$

Weiterhin wird ein langer Hohlraumresonator mit kleinem Querschnitt angenommen ($R \ll L$). Setzt man die elektrische Feldstärke in Gleichung (6.9) ein, so ergibt sich:

$$W_{MW}(\chi) \approx -\frac{\mu KME_0}{2J(J+1)}\sqrt{\left[\left(\frac{J_1}{\chi}\right)^2 \sin^2 \phi + \left(\frac{\partial J_1}{\partial \chi}\right)^2 \cdot \cos^2 \phi\right] + \sin^2 kz} \quad (6.11)$$

mit $\chi = \frac{x'_{11}r}{R}$. Die \sin^2 - und \cos^2 -Terme liefern gemittelt jeweils den Wert $\frac{1}{2}$. Damit wird die Gleichung (6.11) vereinfacht zu

$$W_{MW}(\chi) \approx -\frac{\mu KM}{2J(J+1)}\frac{E_0}{2}\sqrt{\left(\frac{J_1}{\chi}\right)^2 + \left(\frac{\partial J_1}{\partial \chi}\right)^2}. \quad (6.12)$$

Die Besselfunktion und die Ableitung der Besselfunktion lassen sich in eine Taylorreihe entwickeln:

$$J_1(\chi) = \frac{\chi}{2} - \frac{\chi^3}{16} + o(\chi)^5, \quad (6.13)$$

$$\frac{\partial J_1(\chi)}{\partial \chi} = \frac{1}{2} - \frac{3\chi^2}{16} + o(\chi)^5, \quad (6.14)$$

es folgt direkt:

$$\begin{aligned} \sqrt{\left(\frac{J_1}{\chi}\right)^2 \sin^2 \phi + \left(\frac{\partial J_1}{\partial \chi}\right)^2} &\approx \sqrt{\left(\frac{1}{2} - \frac{\chi^2}{16}\right)^2 + \left(\frac{1}{2} - \frac{3\chi^2}{16}\right)^2} \\ &= \sqrt{\left(\frac{1}{4} - \frac{\chi^2}{16} + \dots\right) + \left(\frac{1}{4} - \frac{3\chi^2}{16} + \dots\right)} \\ &\approx \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{1 - \frac{\chi^2}{2}} \end{aligned} \quad (6.15)$$

$$\approx \frac{1}{\sqrt{2}} \left(1 - \frac{1}{4}\chi^2\right) \quad (6.16)$$

und somit

$$W_{MW}(\chi) \approx -\frac{\mu|KM|}{2J(J+1)} \frac{E_0}{2\sqrt{2}} \left(1 - \frac{\chi^2}{4}\right). \quad (6.17)$$

Unter Vernachlässigung des konstanten Teils und Einsetzen von χ ergibt sich:

$$W_{MW}(r) \approx \frac{\mu|MK|}{2J(J+1)} \frac{E_0}{8\sqrt{2}} \frac{x'_{11}}{R^2} r^2. \quad (6.18)$$

Gleichung (6.18) in (6.7) eingesetzt liefert für die Fokusslänge:

$$L = n\pi \frac{4}{\sqrt[4]{2}} \sqrt{\frac{mv_z^2 J(J+1)}{\mu|MK|x_{11}}} \frac{R}{\sqrt{E_0}} \quad (6.19)$$

Aus Gleichung (5.1) ergibt sich die Abhängigkeit der Feldstärke E_0 zu

$$E_0 \approx \sqrt{\frac{Q_L P_{In}}{V}}. \quad (6.20)$$

V bezeichnet hier das Volumen des Resonators $V \approx R^2 \cdot L$. Für die Fokusslänge in Abhängigkeit vom Radius R und der Länge L des Resonators, der eingespeisten Leistung P_{In} , der Anfangsgeschwindigkeit der Moleküle in longitudinaler Richtung v_z und der Güte Q_L ergibt sich damit

$$L = n\pi 4 \sqrt{\frac{mv_z^2 J(J+1)}{\mu|MK|x_{11}}} \sqrt{R^3} \sqrt[4]{\frac{L}{2Q_L P_{In}}}. \quad (6.21)$$

Ein direkter Vergleich zwischen den Eigenschaften der Hexalpollinse und der Mikrowellenlinse ist in der folgenden Tabelle 6.2 gegeben. Es zeigt sich, dass die Abhängigkeit der Fokusslänge eines Hexapols und einer Mikrowellenlinse gewisse Ähnlichkeiten aufweisen. Die Abhängigkeit vom Radius der Linse ist in beiden Fällen $\propto \sqrt{R^3}$

Parameter	Fokusslängenabhangigkeit	
	Mikrowellenlinse	Hexapol nach [81]
Radius R	$\propto \sqrt{R^3}$	$\propto \sqrt{r_{6p}^3}$
v_z	$\propto v_z$	$\propto v_z$
Q_L	$\propto 1/\sqrt[4]{Q_L}$	
P_{In}	$\propto 1/\sqrt[4]{P_{In}}$	
V		$\propto 1/\sqrt{V}$

Tabelle 6.2: Parametrische Abhangigkeit der Fokusslange im Mikrowellenresonator und in einem Hexapol (siehe dazu auch Gleichungen (6.21) und (6.8)).

respektive $\propto \sqrt{r_{6p}^3}$. Daruber hinaus zeigen beide Linsen ein lineares Verhalten bezuglich der Geschwindigkeit der Teilchen in longitudinaler Richtung. Die Parameter, die das Feld im Innern der Linsen beschreiben, unterscheiden sich grundlegend und konnen nicht verglichen werden. An dieser Stelle sei abschlieen darauf hingewiesen, dass die Fokusslange in der Mikrowellenlinse mit dem Inversen der vierten Wurzel aus Gute und Leistung skaliert.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

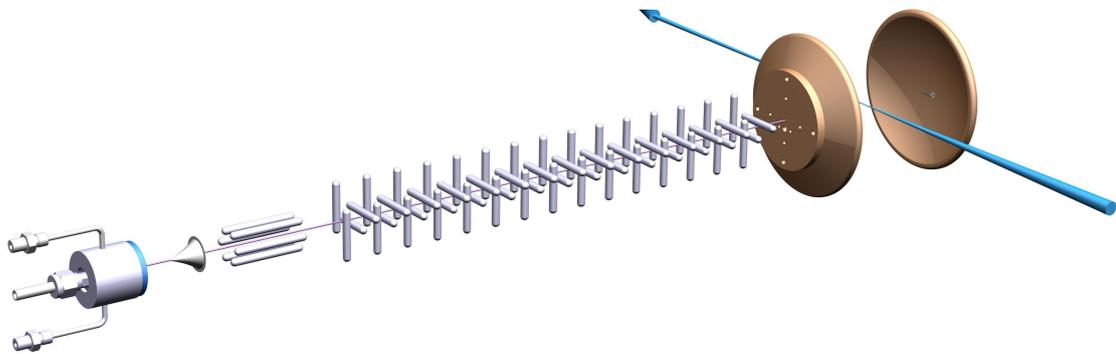


Abbildung 7.1: Schematische Darstellung einer Molekülstrahlapparatur mit einem offenen Resonator zum Abbremsen und Fangen von Ammoniakmolekülen. Der zylindersymmetrische Hohlraumresonator aus Abbildung 5.1 wird durch einen offenen Fabry-Pérot-Typus-Resonator ersetzt, in dem sich auch die Detektionszone befindet.

Mit den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten konnte erfolgreich gezeigt werden, dass sich die Bewegung polarer Moleküle mit Mikrowellenfeldern manipulieren lässt. Unter Verwendung eines zylindersymmetrischen Hohlraumresonators (TE_{112} -Mode) wurden Stark-abgebremste $^{14}\text{NH}_3$ -Moleküle transversal fokussiert. Dieser Fokussiereffekt wurde auch als Funktion der im Resonator ausgebildeten Feldstärke untersucht und mittels Trajektorienrechnungen simuliert. Diese ersten neuartigen Experimente zur Mikrowellenfokussierung lassen auch kompliziertere Experimente mit Mikrowellenfeldern in Reichweite rücken, wie beispielsweise

das Abbremsen oder Fangen. Ein möglicher Aufbau für ein solches Experiment ist in Abbildung 7.1 dargestellt. Hier wird im Gegensatz zum Hohlraumresonator ein offener Resonatoransatz gewählt, um eine Detektion in seinem Inneren zu ermöglichen. Weitere Informationen zu offenen Resonatoren vom Fabry-Pérot-Typ und zu dessen Modenstruktur sind in Kapitel 3.4 gegeben. Abbildung 7.2 zeigt die Inten-

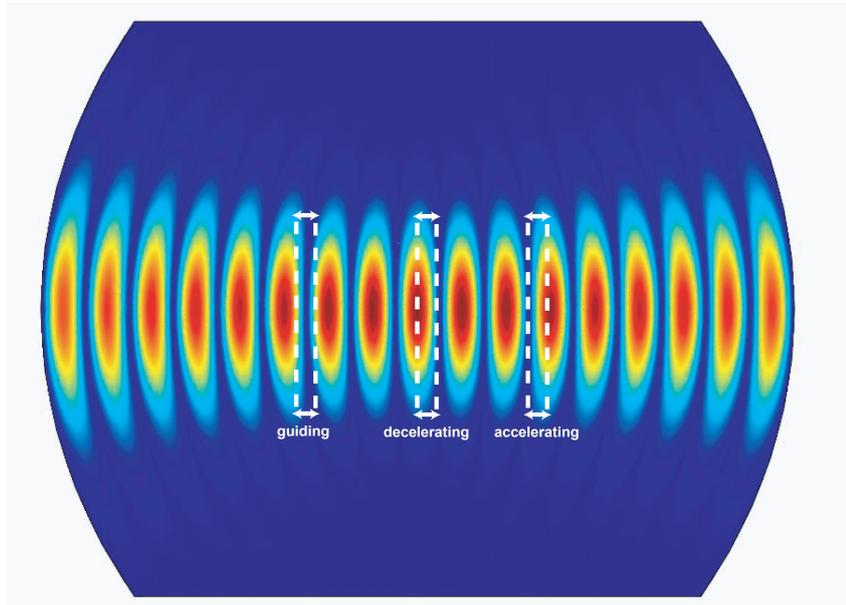


Abbildung 7.2: Modenstruktur der TEM_{00q} -Mode ($q=17$) in einem offenen Resonator vom Fabry-Pérot-Typus (dargestellt ist eine beliebige Schnittebene durch die Molekülstrahlachse). Zusätzlich zu den Feldintensitäten sind die Schaltintervalle für das Führen, Abbremsen und Beschleunigen von polaren Molekülen in AC-hochfeldsuchenden Zuständen eingezeichnet.

sitätsverteilung im Mikrowellenfeld in einer beliebigen Ebene durch die Molekülstrahlachse für die zylindersymmetrische TEM_{00q} -Mode in dem oben beschriebenen Resonator. Schaltet man das Mikrowellenfeld entsprechend, können Moleküle in AC-hochfeldsuchenden Zuständen durch den Resonator geführt werden (*guiding*). Das bedeutet, dass sie zwar keine Änderung der Geschwindigkeit in z -Richtung erfahren, doch sorgt die Fokussierung sowohl in longitudinaler als auch in transversaler Richtung dafür, dass die Moleküle als Paket zusammen bleiben.

Schaltet man das Feld immer dann ein, wenn die Moleküle sich in Bereichen zunehmender Feldstärke bewegen und schaltet es aus, wenn die Moleküle durch Bereiche

mit abnehmender Feldstärke fliegen, dann werden die Moleküle zusätzlich beschleunigt. Im umgekehrten Fall werden sie abgebremst. Bleibt das Mikrowellenfeld anschließend permanent eingeschaltet, so können die Moleküle in den Feldmaxima der stehenden Welle gefangen werden.

Durch ihren offenen Aufbau verspricht eine derartige Mikrowellenfalle neue Möglichkeiten für Experimente zum sympathetischen Kühlen polarer Moleküle. Dabei können in der Mikrowellenfalle gefangene polare Moleküle mit einer ultrakalten Atomwolke überlagert werden und durch Stöße mit diesen ultrakalten Atomen thermalisieren. Damit sollte es möglich sein, in den Bereich ultrakalter Moleküle zu gelangen.

Literaturverzeichnis

- [1] Wolfgang Demtröder. *Molekülphysik*. Oldenbourg, München, 2003.
- [2] Ian W. M. Smith, Hrsg. *Low temperatures and cold molecules*. Imperial College Press, London, 2008.
- [3] M. Schnell und G. Meijer. Cold Molecules: Preparation, Applications, and Challenges. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 48:6010–6031, 2009.
- [4] S. N. Bose. Plancks Gesetz und Lichtquantenhypothese. *Z. Phys.*, 26:178–181, 1924.
- [5] E. A. Cornell und C. E. Wiemann. Nobel lecture: Bose-Einstein condensation in a dilute gas, the first 70 years and some recent experiments. *Rev. Mod. Phys.*, 74:875–893, 2002.
- [6] W. Ketterle. Nobel lecture: When atoms behave as waves: Bose-Einstein condensation and the atom laser. *Rev. Mod. Phys.*, 74:1131–1151, 2002.
- [7] T. W. Hänsch. Passion for precision (Einstein lecture). *Ann. Phys.*, 15:627–652, 2006.
- [8] E. S. Shuman, J. F. Barry, D. R. Glenn, und D. DeMille. Radiative force from optical cycling on a diatomic molecule, 2009. URL <http://www.citebase.org/abstract?id=oai:arXiv.org:0909.2600>.
- [9] S. Y. T. van de Meerakker, H. L. Bethlem, und G. Meijer. Taming molecular beams. *Nat. Phys.*, 4(8):595–602, 2008.

- [10] T. H. Thorsheim, J. Weiner, und P. S. Julienne. Laser-induced photoassociation of ultracold sodium atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 58:2420–2423, 1987.
- [11] P. D. Lett, K. Helmerson, W. D. Phillips, L. P. Ratliff, S. L. Rolston, und M. E. Wagshul. Spectroscopy of Na₂ by photoassociation of laser-cooled Na. *Phys. Rev. Lett.*, 71:2200–2203, 1993.
- [12] J. D. Miller, R. A. Cline, und D. J. Heinzen. Photoassociation spectrum of ultracold Rb atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 71:2204–2207, 1993.
- [13] K. M. Jones, E. Tiesinga, P. D. Lett, und P. S. Julienne. Ultracold photoassociation spectroscopy: Long-range molecules and atomic scattering. *Rev. Mod. Phys.*, 78:483–535, 2006.
- [14] T. Köhler, K. G'oral, und P. S. Julienne. Production of cold molecules via magnetically tunable Feshbach resonances. *Rev. Mod. Phys.*, 78:1311–1361, 2006.
- [15] C. Chin, R. Grimm, P. S. Julienne, und E. Tiesinga. Production of cold molecules via magnetically tunable Feshbach resonances. *Rev. Mod. Phys.*, 2009. im Druck.
- [16] D. Kleppner. Professor Feshbach and his resonance. *Phys. Today*, 57:12–13, 2004.
- [17] P. Courteille, R. S. Freeland, D. J. Heinzen, F. A. van Abeelen, und B. J. Verhaar. Observation of a Feshbach resonance in cold atom scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 81:69–72, 1998.
- [18] K. K. Ni, S. Ospelkaus, M. H. G. de Miranda, A. Pe'er, B. Neyenhuis, J. J. Zirbel, S. Kotochigova, P. S. Julienne, D. S. Jin, und J. Ye. A high phase-space-density gas of polar molecules. *Science*, 322:231–235, 2008.

- [19] F. Lang, K. Winkler, C. Strauss, R. Grimm, und J. Hecker Denschlag. Ultra-cold triplet molecules in the rovibrational ground state. *Phys. Rev. Lett.*, 101:133005, 2008.
- [20] N. V. Vitanov, T. Halfmann, B. W. Shore, und K. Bergmann. Laser-induced population transfer by adiabatic passage techniques. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 52:763–809, 2001.
- [21] J. G. Danzl, E. Haller, M. Gustavsson, M. J. Mark, R. Hart, N. Bouloufa, O. Dulieu, H. Ritsch, und H.-C. Nägerl. Quantum gas of deeply bound ground state molecules. *Science*, 321:1062–1066, 2008.
- [22] J. Küpper und J. M. Merrit. Spectroscopy of free radicals and radical containing entrance-channel complexes in superfluid helium nanodroplets. *Int. Rev. Phys. Chem.*, 26:249–287, 2007.
- [23] M. Y. Choi, G. E. Douberly, T. M. Falconer, W. K. Lewis, C. M. Lindsay, J. M. Merrit, P. L. Stiles, und R. E. Miller. Infrared spectroscopy of helium nanodroplets: novel methods for physics and chemistry. *Int. Rev. Phys.*, 25:15–75, 2006.
- [24] F. Stienkemeier und K. K. Lehmann. Spectroscopy and dynamics in helium nanodroplets. *J. Phys. B*, 39:R127–R166, 2006.
- [25] J. P. Toennies und A. F. Vilesov. Superfluid helium droplets: A uniquely cold nanomatrix for molecules and molecular complexes. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 43:2622–2648, 2004.
- [26] W. C. Campbell, G. C. Groenenboom, H.-I. Lu, E. Tsikata, und J. M. Doyle. Time-domain measurement of spontaneous vibrational decay of magnetically trapped NH. *Phys. Rev. Lett.*, 100:083003, 2008.

- [27] J. D. Weinstein, R. de Carvalho, T. Guillet, B. Friedrich, und J. M. Doyle. Magnetic trapping of calcium monohydride molecules at millikelvin temperatures. *Nature*, 395:148–150, 1998.
- [28] S. E. Maxwell, N. Brahms, R. de Carvalho, D. R. Glenn, J. S. Helton, S. V. Nguyen, D. Patterson, J. Petricka, D. DeMille, und J. M. Doyle. High-flux beam source for cold, slow atoms or molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 95:173201, 2005.
- [29] M. Stoll, J. M. Bakker, T. C. Steimle, G. Meijer, und A. Peters. Cryogenic buffer-gas loading and magnetic trapping of CrH and MnH molecules. *Phys. Rev. A*, 78:032707, 2008.
- [30] S. A. Rangwala, T. Junglen, T. Rieger, P. W. H. Pinkse, und G. Rempe. Continuous source of translationally cold dipolar molecules. *Phys. Rev. A*, 67:043406, 2003.
- [31] N. Vanhaecke, U. Meier, M. Andrist, B. H. Meier, und F. Merkt. Multistage Zeeman deceleration of hydrogen atoms. *Phys. Rev. A*, 75:031402, 2007.
- [32] S. D. Hogan, D. Sprecher, M. Andrist, N. Vanhaecke, und F. Merkt. Zeeman deceleration of H and D. *Phys. Rev. Rev. A*, 76:023412, 2007.
- [33] S. D. Hogan, A. W. Wiederkehr, M. Andrist, H. Schmutz, und F. Merkt. Slow beams of atomic hydrogen by multistage Zeeman deceleration. *J. Phys. B*, 41(8):081005, 2008.
- [34] S. D. Hogan, A. W. Wiederkehr, H. Schmutz, und F. Merkt. Magnetic trapping of hydrogen after multistage Zeeman deceleration. *Phys. Rev. Lett.*, 101:143001, 2008.
- [35] R. Fulton, A. I. Bishop, und P. F. Barker. Optical Stark decelerator for molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 93:243004, 2004.

- [36] P. F. Barker und M. N. Shneider. Slowing molecules by optical microlinear deceleration. *Phys. Rev. A*, 66:065402, 2002.
- [37] R. Fulton, A. I. Bishop, M. N. Shneider, und P. F. Barker. Controlling the motion of cold molecules with deep periodic optical potentials. *Nat. Phys.*, 2:465–468, 2006.
- [38] H. L. Bethlem und G. Meijer. Production and application of translationally cold molecules. *Int. Rev. Phys. Chem.*, 22:73–128, 2003.
- [39] H. L. Bethlem, M. R. Tarbutt, J. Küpper, D. Carty, K. Wohlfart, E. A. Hinds, und G. Meijer. Alternating gradient focusing and deceleration of polar molecules. *J. Phys. B*, 39:R263–R291, 2006.
- [40] H. L. Bethlem, A. J. A. van Roij, R. T. Jongma, und G. Meijer. Alternate gradient focusing and deceleration of a molecular beam. *Phys. Rev. Lett.*, 88:5744–5747, 2002.
- [41] K. Wohlfart, F. Filsinger, F. Grätz, J. Küpper, und G. Meijer. Stark deceleration of OH radicals in low-field-seeking and high-field-seeking quantum states. *Phys. Rev. A*, 78:033421, 2008.
- [42] M. R. Tarbutt, H. L. Bethlem, J. J. Hudson, V. L. Ryabov, V. A. Ryzhov, B. E. Sauer, G. Meijer, und E. A. Hinds. Slowing heavy, ground-state molecules using an alternating gradient decelerator. *Phys. Rev. Lett.*, 92:173002, 2004.
- [43] K. Wohlfart, F. Grätz, F. Filsinger, H. Haak, G. Meijer, und J. Küpper. Alternating-gradient focusing and deceleration of large molecules. *Phys. Rev. A*, 77:031404, 2008.
- [44] J. van Veldhoven, H. L. Bethlem, und G. Meijer. AC electric trap for ground-state molecules. *Phys. Rev. Lett*, 94:083001, 2005.
- [45] H. L. Bethlem, J. van Veldhoven, M. Schnell, und G. Meijer. Trapping polar molecules in an ac trap. *Phys. Rev. A*, 74:063403, 2006.

- [46] M. Schnell, P. Lützow, J. van Veldhoven, H. L. Bethlem, J. Küpper, B. Friedrich, M. Schleier-Smith, H. Haak, und G. Meijer. A linear ac trap for polar molecules in their ground state. *J. Phys. Chem. A*, 111:7411–7419, 2007.
- [47] P. Lützow, M. Schnell, und G. Meijer. Instabilities of molecule motion in a linear ac trap. *Phys. Rev. A*, 77:063402, 2008.
- [48] S. Schlunk, A. Marian, P. Geng, A. P. Mosk, G. Meijer, und W. Schöllkopf. Trapping of Rb atoms by ac electric fields. *Phys. Rev. Lett.*, 98:223002, 2007.
- [49] K. Enomoto und T. Momose. Microwave Stark decelerator for polar molecules. *Phys. Rev. A*, 72:061403, 2005.
- [50] D. DeMille, D. R. Glenn, und J. Petricka. Microwave traps for cold polar molecules. *Eur. Phys. J. D*, 31:375–384, 2004.
- [51] J. Reuss. State selection by nonoptical methods, vol. 1. In G. Scoles, Hrsg., *Atomic and molecular beam methods*, pages 276–292. Oxford University Press, New York and Oxford, 1988.
- [52] Franz Schwabl. *Statistische Mechanik*. Springer, Berlin, 3. Auflage, 2006.
- [53] Giacinto Scoles. *Atomic and molecular beam methods, vol. 1*. Oxford University Press, New York and Oxford, 1988.
- [54] Hendrick L. Bethlem. *Deceleration and Trapping of polar molecules using time-varying fields*. PhD thesis, Katholieke Universiteit Nijmegen, September 2002.
- [55] C. H. Townes und A. L. Schawlow. *Microwave Spectroscopy*. Dover, New York, 1975.
- [56] Gerhard Herzberg. *Electronic Spectra and Electronic Structure of Polyatomic Molecules*. D. van Nostrand Company, Inc, New York, 1966.

- [57] S. R. Gandhi und R. B. Bernstein. Focusing and state selection of NH_3 and OCS by the electrostatic hexapole via 1st-order and 2nd-order stark effects. *J. Chem. Phys.*, 87:6457–6467, 1987.
- [58] H. L. Bethlem, F. M. H. Crompvoets, R. T. Jongma, S. Y. T. van de, und G. Meijer. Deceleration and trapping of ammonia using time-varying electric fields. *Phys. Rev. A*, 65:053416, 2002.
- [59] H. J. Metcalf und P. van der Straten. *Laser Cooling and Trapping*. Springer, Berlin, 2002.
- [60] C. H. Townes und S. H. Autler. Stark effect in rapidly varying fields. *Phys. Rev.*, 100:703–722, 1955.
- [61] H. L. Bethlem, G. Berden, und G. Meijer. Decelerating neutral dipolar molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 83:1558–1561, 1999.
- [62] S. Y. T. van de Meerakker, N. Vanhaecke, und G. Meijer. Stark deceleration and trapping of OH radicals. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 57:159–190, 2006.
- [63] H. L. Bethlem, G. Berden, F. M. H. Crompvoets, R. T. Jongma, A. J. A. van Rooij, und G. Meijer. Electrostatic trapping of ammonia molecules. *Nat. Phys.*, 406:491–494, 2000.
- [64] J. R. Bochinski, E. R. Hudson, H. J. Lewandowski, G. Meijer, und J. Ye. Phase space manipulation of cold free radical OH molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 91, 2003.
- [65] S. Y. T. van de Meerakker, N. Vanhaecke, M. P. J. van der Loo, G. C. Groenenboom, und G. Meijer. Direct measurement of the radiative lifetime of vibrationally excited OH radicals. *Phys. Rev. Lett.*, 95:013003, 2005.
- [66] S. Hoekstra, J. J. Giliyamse, B. Sartakov, N. Vanhaecke, L. Scharfenberg, S. Y. T. van de Meerakker, und G. Meijer. Optical pumping of trapped neutral molecules by blackbody radiation. *Phys. Rev. Lett.*, 98:133001, 2007.

- [67] S. Hoekstra, M. Metsaelae, P. C. Zieger, L. Scharfenberg, J. J. Gilijamse, G. Meijer, und S. Y. T. van de Meerakker. Electrostatic trapping of metastable NH molecules. *Phys. Rev. A*, 76:063408, 2007.
- [68] E. R. Hudson, C. Ticknor, B. C. Sawyer, C. A. Taatjes, H. J. Lewandowski, J. R. Bochinski, J. L. Bohn, und J. Ye. Production of cold formaldehyde molecules for study and control of chemical reaction dynamics with hydroxyl radicals. *Phys. Rev. A*, 73:063404, 2006.
- [69] S. Jung, E. Tiemann, und C. Lisdat. Cold atoms and molecules from fragmentation of decelerated SO₂. *Phys. Rev. A*, 74:040701, 2006.
- [70] Jacqueline van Veldhoven. *AC trapping and high-resolution spectroscopy of ammonia molecules*. PhD thesis, Radboud Universiteit Nijmegen, Dezember 2006.
- [71] John David Jackson. *Classical Electrodynamics*. John Wiley & Sons, New York, 1962.
- [72] Walter Greiner. *Classical Electrodynamics*. Springer, New York, 1998.
- [73] H.R.L. Lamont. *Wave Guides*. John Wiley & Sons, New York, 3. edition, 1946.
- [74] Jens-Uwe Grabow. *Chemische Bindung und Dynamik in großen isolierten Molekülen: Rotationsspektroskopische Untersuchung*. Habilitationsschrift, Universität Hannover, April 2004.
- [75] J.-U. Grabow, W Stahl, und H Dreizler. A multioctave coaxially oriented beam-resonator arrangement fourier-transform microwave spectrometer. *Rev. Sci. Instr.*, 67:4072–4084, 1996.
- [76] H. Kogelnik und T. Li. Laser beams and resonators. *Proc. IEEE*, 54:1312, 1966.

- [77] Wolfgang Demtröder. *Laserspektroskopie: Grundlagen und Techniken*. Springer, Berlin, 4. Auflage, 2002.
- [78] J.-U. Grabow, E.S. Palmer, M.C. McCarthy, und P. Thaddeus. Supersonic-jet cryogenic-resonator coaxially oriented beam-resonator arrangement Fourier transform microwave spectrometer. *Rev. Sci. Instr.*, 76:093106, 2005.
- [79] Roger W. Anderson. Tracks of symmetric top molecules in hexapole electric fields. *J. Phys. Chem. A*, 101:7664–7673, 1997.
- [80] Moritz Kirste. *Das elektrostatische Analogon einer Ioffe-Pritchard-Falle*. Diplomarbeit, Freie Universität Berlin, Januar 2008.
- [81] F. Harren, D. H. Parker, und S. Stolte. Hexapole orientation and scattering of oriented gas-phase molecules. *Comments At. Mol. Phys.*, 26:109–130, 1991.

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde am Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft in der Abteilung Molekülphysik durchgeführt, und ist durch eine ganze Reihe von Personen ermöglicht, unterstützt und begleitet worden. Euch allen ein herzliches Dankeschön!

Als erstes ist meine Betreuerin Dr. Melanie Schnell zu nennen, die mir im vergangenen Jahr eine Menge über das wissenschaftliche Arbeiten beigebracht hat und keine Angst davor hatte, dass ich ihre Maschine ruiniere. Darüber hinaus stand sie zu jeder Tages- und Nachtzeit mit Rat und Tat zur Seite, und war auch in der Zeit des Zusammenschreibens ein unerschöpflicher Quell guter Ideen und konstruktiver Kritik.

Besonderer Dank gilt Prof. Dr. Gerard Meijer, der die Idee für dieses Experiment ans Fritz-Haber-Institut brachte, mich in seine Abteilung aufnahm und, obwohl seine Zeit kostbar ist, mir immer Zeit einräumte, wenn immer es galt schwerwiegende Probleme zu lösen.

Maßgeblich ist diese Arbeit auf den Schultern von Prof. Dr. Hitoshi Odashima entstanden, der durch großen Einsatz beim Messen (oder beim Schrauben an der Maschine) viele der dieser Arbeit zugrunde liegenden Resultate miterzielte.

Henrik Haak hat mit seinem Know-how einen großen Teil dazu beigetragen, dass die Linse in dieser Form gebaut und eingebaut werden konnte. Im gleichen Atemzug ist Petrik Bischoff zu nennen, der immer dann einsprang, um noch ein fehlendes Teil nachzubauen, wenn meine Konstruktionen doch nicht so perfekt waren.

Um die Danksagung jetzt nicht ausufern zu lassen und niemanden zu vergessen, danke ich der gesamten Abteilung für die inspirierende und angenehme Atmosphäre. Speziell Inga von Dölln, der guten Seele der Abteilung, der Besetzung des Diplomandenimmers - Benjamin, Christian, Risshu, Stephan, Isabel und Alexander - für die manchmal notwendige Zerstreuung und die Kaffeepausen. Außerdem sind noch Bas, Fabian, Frank, Jens, Jochen, Ludwig, Maja, Marko, Moritz, Peter & Peter, Sandy, Stephan, Steven und nochmal Christian zu nennen für klärende Diskussionen, Scopes, Kabel, Netze, Pumpen, Laser-Know-how, L^AT_EX-Unterstützung, etc. pp.

Zuletzt seien noch Jonas und Hildegard erwähnt, die sich mit der Kommasetzung rumschlagen mussten. Auch euch einen herzlichen Dank!

Erklärung

Hiermit versichere ich, diese Diplomarbeit selbstständig und nur unter Verwendung der im Literaturverzeichnis angegebenen Hilfsmittel angefertigt zu haben.

Berlin, den 28.10.2009

Simon Merz