

Fakultät für Physik und Astronomie
Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Diplomarbeit
im Studiengang Physik
vorgelegt von
Matthias Ulrich Staudt
aus Frankfurt am Main
2003

Intensitätseffekte bei der Photoassoziation von ultrakalten Cs₂-Molekülen in einer optischen Dipolfalle

Die Diplomarbeit wurde von Matthias Ulrich Staudt ausgeführt

am

Max-Planck-Institut für Kernphysik

unter der Betreuung von

Herrn Prof. Dr. M. Weidemüller

Intensitätseffekte bei der Photoassoziation von ultrakalten Cs₂-Molekülen in einer optischen Dipolfalle

Zusammenfassung Photoassoziationsinduzierter Verlust in einer quasi-elektrostatischen Dipolfalle wird beobachtet, und Ratenkoeffizienten werden bestimmt. Zur Bestimmung des Ratenkoeffizienten wird ein Modell der Fallenverlustdynamik aufgestellt und an Hand von Photoassoziationsmessungen am 0_g^- Zustand an der $(6\ ^2S_{1/2} + 6\ ^2P_{3/2})$ -Asymptote bei einer Frequenzverstimmung von -1400 GHz und -2000 GHz unterhalb der Dissoziationsgrenze verifiziert. Intensitätseffekte der Photoassoziationslinien werden bei Laserintensitäten von bis zu $300\ \text{Wcm}^{-2}$ eingehend untersucht. Sättigung des Atom-Molekülübergangs wird erreicht und Sättigungsintensitäten werden bestimmt. Zusätzlich werden Franck-Condon-Faktoren, die den Überlapp der molekularen Wellenfunktion mit der atomaren Streuwellenfunktion angeben, für die 0_g^- -Linie bei $-1300\ \text{GHz}$ bis $-2300\ \text{GHz}$ aus den experimentellen Daten extrahiert und mit theoretisch bestimmten verglichen.

Intensity effects in photoassociation of ultracold Cs₂-molecules in an optical dipole trap

Abstract Photoassociative trap loss of ultracold cesium atoms is measured in a quasi-electrostatic trap and rate coefficients are determined. For this purpose a model of trap loss dynamics is developed and verified by experimental data attained from photoassociation of the 0_g^- state of the $(6\ ^2S_{1/2} + 6\ ^2P_{3/2})$ -asymptote at frequency detunings of -1400 GHz and -2000 GHz beneath the dissociation limit. Intensity effects of photoassociation line shapes are investigated with laser powers up to $300\ \text{Wcm}^{-2}$. Saturation of the atom-molecule transition is observed and saturation intensities are determined. In addition Franck-Condon-Factors, which represent the overlap of the molecular wavefunction with the atomic scattering wavefunction, are extracted from experimental data for 0_g^- -lines at detunings between $-1300\ \text{GHz}$ and $-2300\ \text{GHz}$ and are compared to theoretical calculations.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Cäsium in einer quasi-elektrostatistischen Dipolfalle	7
2.1	Das Cäsiumatom	7
2.2	Wechselwirkungen von Atomen mit Licht	8
2.2.1	Spontankraft	9
2.2.2	Optische Melasse	10
2.2.3	Die magneto-optische Falle	11
2.2.4	Optische Dipolfalle	11
2.3	Molekülpotentiale	15
2.4	Der Aufbau des Experiments	17
2.4.1	Das MOT-System	17
2.4.2	Die quasi-elektrostatistische Dipolfalle	18
2.4.3	Nachweis der gespeicherten Teilchen	19
2.5	Experimentsteuerung	21
2.6	Ladezyklus in die QUEST	21
3	Photoassoziation in einer optischen Dipolfalle	23
3.1	Prinzip der Photoassoziation	24
3.1.1	Photoassoziationsrate und Lichtverschiebung	26
3.1.2	Photoassoziation in einer Dipolfalle	29
3.2	Das Photoassoziationslasersystem	32
3.2.1	Titan-Saphir-Laser	32
3.2.2	Strahlengang in der Vakuumkammer	33
3.2.3	Bestimmung der Strahltaile des Titan-Saphir- Lasersystems	35
3.2.4	Frequenzzeichnung des Titan-Saphir-Lasers	38
3.3	Photoassoziationsinduzierte Verlustprozesse	39
3.3.1	Photoassoziationsmesszyklus	40
3.3.2	Falldynamik	40

3.3.3	Atom-Molekül-Stöße	49
4	Intensitätseffekte	53
4.1	Ratenkoeffizient	54
4.2	Messprozedur und Datenanalyse	57
4.3	Lichtverschiebung und Linienverbreiterung	62
4.4	Sättigungsintensität	66
5	Variation der Grundzustandswellenfunktion	69
5.1	Modulation des Franck-Condon-Faktors	70
5.2	Ergebnisse	71
5.2.1	Messprozedur	71
5.2.2	Datenanalyse	72
5.2.3	Franck-Condon-Faktoren	73
5.3	Vergleich der Theorie mit den experimentell gewonnenen Daten	73
6	Zusammenfassung und Ausblick	77
6.1	Zusammenfassung	77
6.2	Ausblick	78
A	Eichung	83

Kapitel 1

Einleitung

Nachdem die Realisierung von ultrakalten atomaren Gasen die Atomphysik in den vergangenen Jahren enorm beflügelt hat [Chu97, Cor01], ist es immer noch ein große experimentelle Herausforderung, ultrakalte molekulare Gase herzustellen. Aus vielfältigen Gründen hat dieses Gebiet ein großes Interesse auf sich gezogen. Zum einen ist wenig über die Streueigenschaften oder die chemische Reaktivität von ultrakalten molekularen Gasen bekannt, die deren Lebensdauer bestimmen. Zum anderen werden auch bei der Suche nach einem elektrischen Dipolmoment des Elektrons [Hud02] und im Gebiet der Quanteninformationsverarbeitung [DeM02] große Fortschritte durch ultrakalte molekulare Gase erwartet. Eine mögliche Anwendung ultrakalter Moleküle ist die Präzisions-Zeit- und Frequenzmessung. Heteronukleare Moleküle bilden ein permanentes Dipolmoment, was zu Ordnungseffekten in kalten molekularen Gasen führen kann [San00]. Sind die heteronuklearen Moleküle dann einem starken externen elektrischen Feld ausgesetzt, rotiert der molekulare Dipol um die Feldlinie („pendular states“ [Ros92]).

Methoden zur Herstellung ultrakalter Moleküle sind in jüngster Zeit entwickelt worden. Die in der Atomphysik entwickelten Laserkühl- und Fangmethoden lassen sich nicht ohne weiteres auf Moleküle übertragen, da diese im Gegensatz zu Atomen durch eine großen Anzahl interner Zustände und dem Fehlen eines geschlossenen Zweiniveauübergangs charakterisiert sind. Ansätze für die Erweiterung der Laserkühlung auf Moleküle existieren aber [Bah96]. Mit Hilfe zeitlich veränderlicher elektrischer Felder ist es gelungen, polare Ammoniak-Moleküle abzubremsen und elektrostatisch zu fangen [Bet00]. Weiterhin wurde auch Puffergas erfolgreich eingesetzt, um CaH-Moleküle im mK-Temperaturbereich magnetisch zu fangen [Wei98].

Zu einer noch vielversprechenderen Methode hat sich die Herstellung eines ultrakalten molekularen Gases aus einem atomaren Gas entwickelt. So sind ultrakalte Grundzustandsmoleküle mittels Photoassoziationsspektroskopie ge-

bildet worden [Fio98]. Der Fragestellung, ob bei der Photoassoziation aus einem quantenentarteten Gas [Wyn00] sogar ein molekulares Bose-Einstein-Kondensat erreicht wurde, wird noch nachgegangen. Bei der Ankopplung eines quantenentarteten atomaren Gases an ein molekulares Gas mittels Feshbachresonanzspektroskopie [Don02, Reg03, Gri03] ist es gelungen, einen hochangeregten, schwach gebundenen Rotations-Vibrationszustand mit Temperaturen des translatorischen Freiheitsgrades in der Nähe des quantenentarteten Regimes herzustellen.

Bei dem Prozess der Photoassoziation [Tho87, Stw99, Mas01] in einem atomaren Gas erfolgt der optisch induzierte Übergang eines Atompaars in einen angeregten Molekülzustand. Der angeregte Molekülzustand zerfällt entweder wieder in ein freies Atompaar oder aber in ein Grundzustandsmolekül. Bei der Photoassoziation in einem ultrakalten Gas können auf diese Weise ultrakalte Grundzustandsmoleküle hergestellt werden, da sie translatorisch dieselbe Energie wie das atomare Gas besitzen [Fio98]. Die Photoassoziationsspektroskopie hat sich außerdem auch in anderer Hinsicht zur unverzichtbaren Methode der Atomphysik entwickelt. So ist es mit Hilfe der Photoassoziationsspektroskopie gelungen, die langreichweitigen Potentiale von Molekülen hochaufgelöst zu untersuchen [Mil93] und ihre Streulängen zu bestimmen [Abr96]. Durch die so gewonnenen Potentialinformationen können Lebensdauern von atomaren Zuständen bestimmt werden [McA96].

In dieser Arbeit werden die Intensitätseffekte bei der Photoassoziation ultrakalter Cäsiummoleküle untersucht. Dies ist aus mehreren Gründen interessant. Um Wege zu finden, effizient ultrakalte Grundzustandsmoleküle mit Hilfe der Photoassoziation zu bilden, ist die Intensitätsabhängigkeit der Photoassoziation entscheidend. Die mögliche Grenze der Bildungsrate von ultrakalten Molekülen liegt im Bereich hoher Intensitäten. Es besteht die Möglichkeit, dass im Regime hoher Intensitäten und damit hoher Anregungsraten der Kontinuumszustand eines freien Atompaars kohärent an einen gebundenen Molekülzustand koppeln kann. Da die Photoassoziation auch als Hochpräzisionsspektroskopie eingesetzt wird, ist ein detailliertes Verständnis des Photoassoziationsprozesses entscheidend. Insbesondere ist der Zusammenhang zwischen einer experimentellen Nachweismethode und der tatsächlichen Stärke eines Übergangs von Belang, und damit wiederum die Beziehung zwischen Intensität und Photoassoziationsrate.

Während die Photoassoziation bei niedrigen Intensitäten gut verstanden ist, entwickelt sich ein geschlossenes Bild bei hohen Intensitäten erst in jüngster Zeit. Die Intensitätsabhängigkeit der Photoassoziationsresonanzen manifestiert sich in der Linienform, d.h. in der Breite, der Höhe und der Linienposition. Theoretisch wurden Modelle aufgestellt, die die Photoassoziation als Stoßprozess in Anwesenheit eines intensitätsstarken Laserfeldes beschreiben,

und zwar unter Berücksichtigung des vollen Mehrkanal-Hyperfeinproblems [Sim02, Boh99]. Störungstheoretische Ansätze, wie sie in [Pil97] benutzt werden, sind im Regime hoher Intensitäten nicht mehr gültig. Experimentell wurden Intensitätsuntersuchungen für ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ [Sch01, Sch02] und Cs [Dra00a] in einer magneto-optischen Falle (MOT) durchgeführt. Photoassoziationsuntersuchungen für Na [McK02] wurden in einem Bose-Einstein-Kondensat durchgeführt.

Während alle Photoassoziationsuntersuchungen zur Sättigung in einer MOT oder einer Magnetfalle durchgeführt wurden, sind die Intensitätsuntersuchungen von Cs in der vorliegenden Arbeit in einer quasi-elektrostatischen optischen Dipolfalle [Eng00a] durchgeführt. In einer quasi-elektrostatischen optischen Dipolfalle werden die Atome bei ultrakalten Temperaturen ($\sim 30 \mu\text{K}$) und sehr hohen Dichten ($\sim 10^{12} \text{cm}^{-3}$) gefangen.

Eine quasi-elektrostatische optische Dipolfalle stellt eine ideale Umgebung dar, um Intensitätsuntersuchungen der Photoassoziationsresonanzen durchzuführen. Aufgrund der Konservativität des Fallenpotentials sind idealerweise keine dissipativen Verluste zu erwarten. Damit lassen sich einfach Modelle aufstellen, die die zeitliche Veränderung von Teilchenzahl und Dichte in der Falle beschreiben. Wie die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit zeigen, muss man dabei allerdings beachten, dass die Photoassoziationsrate bei der untersuchten Fallenverlustdynamik in der quasi-elektrostatischen optischen Dipolfalle auf einer ähnlichen Zeitskala liegt wie die Thermalisierungszeit. Dadurch ist das Atomensemble zumindest bei hohen Photoassoziationsraten nicht mehr im thermischen Gleichgewicht. Unter Beachtung dieses Effekts wird die photoassoziationsinduzierte Abnahme der Teilchenzahl und Dichte und die Zunahme der effektiven Temperatur durch ein empirisches Modell beschrieben. Hingegen ist bei Untersuchungen in einer MOT durch die permanente Beeinflussung der Atome durch das Fallenfeld die Dynamik nur schwer zu beschreiben.

Auch an sehr schwachen Linien können in einer quasi-elektrostatischen Dipolfalle Intensitätsuntersuchungen durchgeführt werden. Zum einen lässt sich durch die lange Speicherdauer in einer quasi-elektrostatischen Dipolfalle die Photoassoziationsdauer stark verlängern. Zum anderen geht die hohe Dichte mit hohen Photoassoziationsraten einher. Auf diese Weise können Intensitätseffekte sogar bis zur Sättigung des Atom-Molekülübergangs beobachtet werden. Es sei in diesem Zusammenhang darauf verwiesen, dass außer den hier in einer quasi-elektrostatischen optischen Dipolfalle durchgeführten Untersuchungen nur für ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ [Sch01, Sch02] Sättigung in einer magneto-optischen-Falle quantitativ untersucht wird.

Die im letzten Teil der Arbeit bestimmten Franck-Condon-Faktoren für weit von der Dissoziationsgrenze verstimmte Übergänge sind über Fallenverlust-

te nachgewiesen. Sie stellen damit einen direkten Nachweis des Überlapps von Grundzustandswellenfunktion mit der angeregten Molekülwellenfunktion dar. Diese Untersuchungen sind zwar auch in einer MOT [Fio98] durchgeführt worden. Der Nachweis der Moleküle erfolgt dort aber über einen Ionennachweis der Grundzustandsmoleküle. Dieser Drei-Stufen-Prozess liefert damit nur einen indirekten Nachweis der angeregten Moleküle. Durch die in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Messungen soll das Bild des Molekülbildungsprozesses abgeschlossen werden.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in sechs Teile. Nach der Einleitung werden in Kapitel 2 die Prinzipien der Speicherung und Kühlung von Atomen zusammengefasst und es wird der Aufbau des Experiments beschrieben. In Kapitel 3 wird die Photoassoziation von Cäsium in einer Dipolfalle untersucht. In diesem Zusammenhang wird die Fallendynamik in der Dipolfalle bei Photoassoziation experimentell untersucht und mittels eines Modells ein Ratenkoeffizient angegeben. Intensitätseffekte der Photoassoziationsresonanzen bilden den thematischen Schwerpunkt von Kapitel 4. Zu diesem Zweck werden die Lichtverschiebung der Photoassoziationsresonanzen, ihre Breiten und die aus den Ratenkoeffizienten bestimmten Streuwahrscheinlichkeiten bei variabler Intensität bestimmt. Kapitel 5 befasst sich schließlich mit dem Einfluß der Grundzustandswellenfunktion auf die Übergangstärken im Bereich tiefgebundener Vibrationsniveaus im äußeren Potentialtopf des 0_g^- -Zustands. Die Franck-Condon-Faktoren werden hier bestimmt und mit theoretisch berechneten verglichen. Im letzten Kapitel erfolgt eine Zusammenfassung, und im Rahmen eines Ausblicks werden die Perspektiven des Experiments diskutiert.

Kapitel 2

Cäsium in einer quasi-elektrostatischen Dipolfalle

In diesem Kapitel soll das Cäsiumatom in der quasi-elektrostatischen Dipolfalle behandelt werden. Dazu werden zunächst im ersten Teil des Kapitels die für Cäsium wichtigen Eigenschaften kurz dargestellt. Die für das Fangen in der quasi-elektrostatischen Dipolfalle benötigten Kühl- und Speichermetoden werden im Anschluss daran dargestellt. Im zweiten Teil wird der Experimentaufbau beschrieben. Schließlich wird auch der Ladezyklus in die Dipolfalle dargelegt, sodass am Ende des Kapitels die Grundlagen für die in den weiteren Kapiteln behandelten Photoassoziationsmessungen in der Dipolfalle gelegt sind.

2.1 Das Cäsiumatom

Alkali-Atome weisen eine relativ einfache wasserstoffähnliche Niveaustuktur auf. Das Termschema für Cäsium ist in Abbildung 2.1 gezeigt. Nur ein stabiles Isotop existiert für Cäsium: das ^{133}Cs mit Kernspin $I = \frac{7}{2}$. Die Hyperfeinaufspaltung des Grundzustandes ($6^2S_{1/2}$) von $\Delta\nu_{HFS} = 9.192631770$ GHz definiert zur Zeit die Sekunde. Die sogenannte *D2*-Linie mit einer Wellenlänge von 852.11 nm ist der Übergang $6^2s_{1/2} \rightarrow 6^2p_{3/2}$. In Abbildung 2.1 ist zusätzlich zur *D2*-Linie noch die *D1*-Linie eingezeichnet. Die Feinstrukturaufspaltung der *D1*-Linie und der *D2*-Linie beträgt 16.6 THz. Da die Linienbreite des angeregten Zustands mit $\Gamma = 5.2$ MHz im Vergleich zur Hyperfeinaufspaltung sehr klein ist, lassen sich alle Linien des angeregten Hyperfeinmultiplets spektroskopisch auflösen.

Der für die Laserkühlung wichtige sogenannte Kühlübergang $6^2S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6^2P_{3/2}(F' = 5)$ gehört zur *D2*-Linie. Seine Wellenlänge weicht etwas

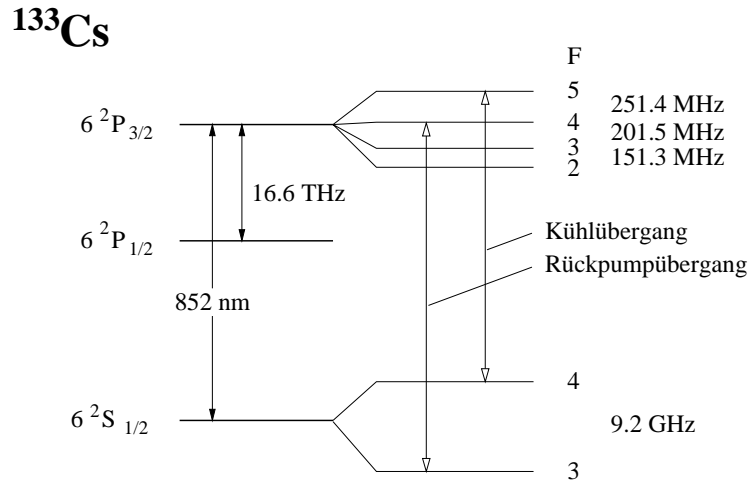


Abbildung 2.1: Termschema des Grundzustandes und des angeregten Zustands für das Cäsiumatom.

von dem als „D2-Linie“ bezeichneten Mittelwert über die Hyperfeinkomponenten ab: $\lambda_{4 \rightarrow 5} = 852,35638$ nm. Die Wellenlänge bezieht sich auf das Vakuum. Der Kühlübergang bildet ein geschlossenes Zwei-Niveau-System. Durch nicht-resonante Anregung eines anderen angeregten Hyperfeinzustandes kann der angeregte Zustand des Zwei-Niveau-Systems allerdings in einen anderen Hyperfeinzustand zerfallen. Aus diesem Grund wird bei der Laserkühlung, wo hohe Photonenströme erforderlich sind, ein zusätzliches Laserfeld eingestrahlt, das die Atome zurückpumpt (siehe Abbildung 2.1). In Tabelle 2.1 sind alle wichtigen Eigenschaften des Cäsiumatoms nochmal zusammengestellt.

2.2 Wechselwirkungen von Atomen mit Licht

In den letzten zwei Jahrzehnten haben Experimente mit ultrakalten atomaren Gasen einen neuen Bereich der Atomphysik erschlossen. Diese Experimente sind eng mit den von T.W. Hänsch [Hän75] und unabhängig davon von A.L. Schawlow [Win75] eingeführten Kühl- und Fangmethoden verbunden. Hänsch und Schawlow haben vorgeschlagen, dass das Einstrahlen eines relativ zur atomaren Resonanz rotverstimmtten Lasers die Geschwindigkeit der Atome abbremst und damit das Gas kühlt. Hier sollen in knapper Form die Grundlagen der Laserkühlung und Speicherung dargestellt werden. Eine ausführlichere Darstellung findet man zum Beispiel in [Met99].

<i>Bezeichnung</i>	<i>Symbol</i>	<i>Wert</i>
Kernladungszahl	Z	55
Massenzahl	A	133
Atommasse	m	2.207×10^{-25} kg
Kernspin	I	7/2
Vakuumwellenlänge*	λ	852.347 nm
Lebensdauer*	τ	30.47 ns
natürliche Linienbreite*	Γ	$2\pi \cdot 5.223$ MHz
Hyperfeinaufspaltung (Grundzustand)	$\Delta\nu_{\text{HFS}}$	9.193 GHz
Dopplertemperatur*	T_{D}	125 μK
Photonenrückstoßtemperatur*	T_{rec}	198.34 nK
statische Polarisierbarkeit (Grundzust.)	α_{stat}	$6,63 \times 10^{-39}$ Asm ² /V

Tabelle 2.1: Wichtige Größen für die Kühlung und das Fangen von Cäsiumatomen. Die mit einem Stern gekennzeichneten Größen beziehen sich auf die D2-Linie.

2.2.1 Spontankraft

Das Prinzip der MOT basiert auf der Kraft die auf Atome wirkt, die mit einem Lichtfeld wechselwirken. Mit der endlichen Lebensdauer τ des angeregten Zustands ergibt sich die natürliche Linienbreite eines atomaren Übergangs, die die Form einer Lorentzfunktion hat im Fall eines Zwei-Niveau-Systems zu:

$$I = \frac{1}{4} \frac{\Gamma^2}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \quad , \quad (2.1)$$

wobei δ die Verstimmung des eingestrahnten Lichtfeldes von der atomaren Resonanz ist. Durch spontane Streuung von Photonen kann Impuls von einem eingestrahnten Lichtfeld auf Atome übertragen werden. Die Rate spontan gestreuter Photonen ergibt sich zu:

$$\gamma_{\text{sp}} = \frac{\Gamma}{2} \frac{NS}{1 + S + (\frac{2\delta}{\Gamma})^2} \quad , \quad (2.2)$$

wobei N die Anzahl der Atome ist und S der Sättigungsparameter. Der Sättigungsparameter kennzeichnet das Verhältnis von spontanen zu induzierten Übergängen: $S = \frac{2\rho BI}{\Gamma}$. Bei der Anregung eines Atoms durch ein Lichtfeld wird durch das anregende Photon die Energie $\hbar\omega$ und der Impuls $\hbar\vec{k}$ übertragen. Für das angeregte Atom gibt es dann zwei mögliche Abregungsprozesse: Entweder es regt über die spontane Emission ab und der Gesamtimpulsübertrag auf das Atom ist Null. Das Atom kann sich jedoch auch über spontane Emission abregen. Der mittlere Impuls spontan gestreuter Photonen ist

Null, weil der Impuls zufällig in alle Raumrichtungen verteilt ist. Damit ist aber der gesamte Impuls des Photons auf das Atom übertragen worden. Die Spontankraft ergibt sich damit als das Produkt aus Photonenimpuls und Photonenstreurate:

$$\vec{F}_{\text{sp}} = \hbar \vec{k} \frac{\Gamma}{2} \frac{NS}{1 + S + (\frac{2\delta}{\Gamma})^2} \quad , \quad (2.3)$$

Das in die Spontankraft eingehende δ entspricht nur im Ruhesystem der Differenz aus Frequenz des Laserfeldes und dem der atomaren Resonanz. Im allgemeinen Fall gilt dagegen: $\delta = \delta_0 + \vec{k}\vec{v}$. Die Geschwindigkeitsabhängigkeit nutzt man bei der im Folgenden beschriebenen optischen Melasse aus.

2.2.2 Optische Melasse

Mit Hilfe dreier gegenläufiger rotverstimmter Strahlpaare (rotverstimmt meint hier mit niedrigerer Frequenz als die atomare Resonanzfrequenz) lässt sich der Effekt wie folgt ausnutzen. Atome die in Ruhe sind spüren in der Summe keine Kraft, weil die Photonenstreurate aller Strahlen gleich groß ist. Bewegte Atome hingegen absorbieren die Photonen des entgegenlaufenden Strahls mit höherer Wahrscheinlichkeit als die des mitlaufenden. Auf diese Weise werden die Atome abgebremst. Da die Atome abgebremst werden, wird die Atomwolke insgesamt gekühlt und man spricht von einer optischen Melasse. Mit Hilfe dieser Methode kann die Temperatur der Atome jedoch nicht beliebig gesenkt werden, denn durch spontane Streuung der Photonen wirkt der Kühlung eine Aufheizung entgegen. Bleibt man im bisher benutzten Bild so stellt sich die folgende Gleichgewichtstemperatur ein:

$$T = \frac{\hbar\Gamma}{4k_B} \frac{1 + 3S + (\frac{2\delta}{\Gamma})^2}{\frac{2\delta}{\Gamma}} \quad , \quad (2.4)$$

Die minimale Temperatur wird erreicht wenn für δ gilt: $\delta = -1/2(\Gamma^2 + 3S\Gamma^2)^{1/2}$. Man spricht dann von der sogenannten Dopplertemperatur:

$$T_D \equiv \frac{\hbar\Gamma}{2k_B} \quad , \quad (2.5)$$

wobei k_B die Boltzmann-Konstante ist. Die Dopplertemperatur des Cäsiums beträgt $125 \mu\text{K}$. Experimentell stellt sich jedoch heraus, dass dieses Bild nicht vollständig ist, es werden nämlich tiefere Temperaturen realisiert. Durch die sogenannte Sub-Doppler-Kühlung sind nämlich unter Berücksichtigung der bisher außer Acht gelassenen Polarisation der Laserstrahlen und nach genauerer Analyse der Prozesse in der optischen Melasse tiefere Temperaturen

möglich. Dies entspricht gerade dem Rückstoßlimit, das durch die Rückstoßenergie eines gestreuten Photons gegeben ist. Die Rückstoßtemperatur ist durch

$$T_{rec} \equiv \frac{(\hbar k)^2}{mk_B} \quad (2.6)$$

gegeben.

2.2.3 Die magneto-optische Falle

Um die Atome zusätzlich noch im Ortsraum zu komprimieren, kann man neben der eben beschriebenen Melassekühlung noch ein magnetisches Quadrupolfeld verwenden. Mit Hilfe eines Anti-Helmholtz-Spulenpaars wird von zwei gegenläufigen Laserstrahlen immer der rücktreibende näher in Resonanz gerückt (siehe Abbildung 2.2), sofern die Polarisation zirkular ist. Eine MOT stellt aufgrund des ständigen Kühlens eine dissipative Falle dar.

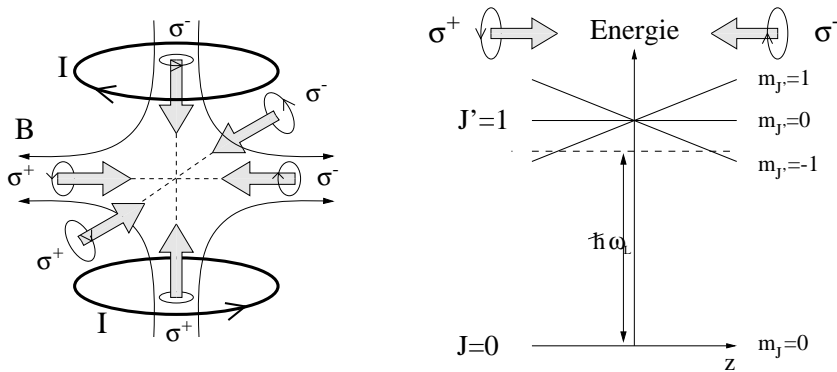


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung einer magneto-optischen Falle. Der Strom I induziert ein Quadrupolmagnetfeld B . Energiediagramm entlang eines Laserstrahlpaares für ein Atom mit Drehimpuls $J = 0$ und $J' = 1$ im angeregten Zustand. Aufgrund des Zeemaneffekts und zirkular polarisiertem Licht entsteht eine rücktreibende Kraft in Richtung der Mitte der MOT.

2.2.4 Optische Dipolfalle

Optische Dipolfallen [Gri00] beruhen auf der Wechselwirkung von weit von der atomaren Resonanz verstimmttem Licht mit dem elektrischen Dipol des Atoms. Aufgrund der geringen Fallentiefe von Dipolfallen (im Bereich von Millikelvin) müssen die Atome vorgekühlt werden, um effizient in die Dipolfalle geladen zu werden. In dieser Arbeit vorgestellten Experiment wird dazu eine MOT benutzt.

Das elektrische Feld $\vec{E}(\vec{r}, t)$ eines Lasers induziert ein Dipolmoment \vec{d} in einem Atom. Das Dipolmoment $\vec{d} = \alpha \vec{E}$ hängt neben dem elektrischen Feld noch von der Polarisierbarkeit α ab, die laserfrequenzabhängig ist. In der Wechselwirkung des induzierten elektrischen Dipolmoments mit dem elektrischen Feld ist das Dipolpotential durch

$$U_{dip}(\vec{r}) = -\frac{1}{2} \langle \vec{d} \cdot \vec{E} \rangle = -\frac{1}{2\epsilon_0 c} \text{Re}(\alpha) I(\vec{r}) \quad (2.7)$$

gegeben. Die Intensität I des Laserfeldes geht linear in das Dipolpotential ein. Mit Hilfe des Potentials lässt sich die Kraft, die durch das Laserfeld auf das Atom ausgeübt wird, bestimmen:

$$\vec{F}_{dip}(\vec{r}) = -\vec{\nabla} U_{dip}(\vec{r}) = \frac{1}{2\epsilon_0 c} \text{Re}(\alpha) \vec{\nabla} I(\vec{r}) \quad (2.8)$$

Es handelt sich um eine konservative Kraft, die proportional zum Gradienten der Intensität ist und neben der Intensität noch von der Polarisierbarkeit abhängt.

Die Photonenstreurate

$$\Gamma_s(\vec{r}) = \frac{1}{\hbar \epsilon_0 c} \text{Im}(\alpha) I(\vec{r}) \quad (2.9)$$

ist durch den Imaginärteil der Polarisierbarkeit gegeben. Sie gibt die gestreute Strahlungsleistung an. Die bisher gewonnenen Ausdrücke sind für jedes sich in einem oszillierenden elektrischen Feld aufhaltende polarisierbare Atom gültig. Für das Fangen von Atomen ist aber vorallem der Fall interessant, bei dem die Frequenz des Feldes weitverstimmt von der atomaren Frequenz ist. In diesem Fall kann die Polarisierbarkeit in guter Näherung durch die eines klassischen harmonischen Oszillators in einem klassischen Feld genähert werden. Die Abhängigkeit des Realteils der Polarisierbarkeit α von der treibenden Frequenz ist in Abbildung 2.3 gezeigt.

In diesem Fall erhält man folgende Ausdrücke für das Dipolpotential und die Streurrate:

$$U_{dip}(\vec{r}) = -\frac{3\pi c^2}{2\omega_0^3} \left(\frac{\Gamma}{\omega_0 - \omega} + \frac{\Gamma}{\omega_0 + \omega} \right) I(\vec{r}) \quad (2.10)$$

$$\Gamma_s(\vec{r}) = \frac{3\pi c^2}{2\hbar \omega_0^3} \left(\frac{\omega}{\omega_0} \right)^3 \left(\frac{\Gamma}{\omega_0 - \omega} + \frac{\Gamma}{\omega_0 + \omega} \right)^2 I(\vec{r}) \quad (2.11)$$

Ist die Frequenz des Fallenlasers relativ nah zur atomaren Resonanzfrequenz, d.h. für die Verstimmung gilt $|\Delta| \ll \omega_0$, gilt die Näherung der sogenannten

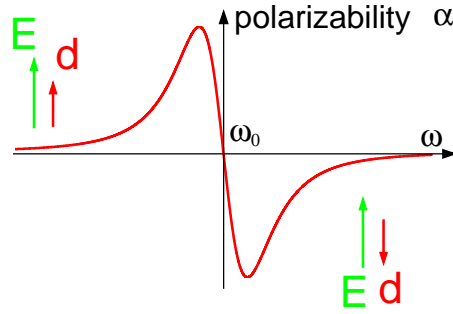


Abbildung 2.3: Realteil der Polarisierbarkeit eines Atoms in Abhängigkeit der Kreisfrequenz des treibenden Feldes.

Rotating Wave Approximation. Man nähert hier, dass sich schnell oszillierende Terme in einem realistischen Zeitintervall zu Null mitteln. Das Fallenpotential und die Streurrate kann in diesem Fall als:

$$U_{dip}(\mathbf{r}) = \frac{3\pi c^2}{2\omega_0^3} \frac{\Gamma}{\Delta} I(\mathbf{r}) \quad (2.12)$$

$$\Gamma_s(\vec{r}) = \frac{3\pi c^2}{2\hbar\omega_0^3} \left(\frac{\Gamma}{\Delta}\right)^2 I(\mathbf{r}) \quad (2.13)$$

angegeben werden.

Quasi-elektrostatische Dipolfalle

Wenn die Frequenz des Lasers extrem weit verstimmt ist ($\omega \ll \omega_0$) kann das Atom den Oszillationen des Lichtfeldes des Lasers instantan folgen. Da das Atom dann näherungsweise ein elektrostatisches Feld sieht, ist für das Dipolpotential nur noch die statische Polarisierbarkeit α_{stat} von Bedeutung. Aus diesem Grund nennt man eine solche Falle eine quasi-elektrostatische Falle (QUEST). Für das Potential und die Photonenstreurrate erhält man im Fall einer QUEST:

$$U_{dip}(\vec{r}) = -\alpha_{stat} \frac{I(\vec{r})}{2\epsilon_0 c} = -\frac{3\pi c^2}{\omega_0^3} \frac{\Gamma}{\omega_0} I(\vec{r}) \quad (2.14)$$

$$\Gamma_s(\vec{r}) = \frac{2}{\hbar} \left(\frac{\omega}{\omega_0}\right)^3 \frac{\Gamma}{\omega_0} |U_{dip}(\vec{r})| \quad (2.15)$$

Ein großer Vorteil der QUEST ist es, dass in ihr auch Moleküle gespeichert werden können, sofern diese eine ausreichende statische Polarisierbarkeit haben und nicht mit dem Fallenlicht resonant sind. So ist die Speicherung von

Cs₂ in einer QUEST [Tak98] gelungen. Ein weiterer wichtiger Vorteil der QUEST ist, dass Photonenstreuung vernachlässigt werden kann. Typischerweise werden nur wenige Photonen pro Stunde gestreut, wodurch nahezu keine Aufheizung aufgrund des Fallenlichts vorhanden ist.

Fokussfalle

Da die Dipolkraft im Fall eines rotverstimzten Laserstrahls in Richtung ansteigender Intensität ansteigt, bildet schon der Fokus eines Laserstrahls eine Dipolfalle. Die einfachste Realisierung der Dipolfalle ist damit ein auf die Strahlmitte kollimierter Gaußscher Laserstrahl der Leistung P (siehe Abbildung 2.4). Die Strahlmitte besitzt eine hyperbolische Abhängigkeit vom Ort:

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{z_R^2}} \quad (2.16)$$

wobei die Rayleigh-Länge durch $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ definiert ist. Innerhalb der Rayleighlänge fällt die Intensität in der Strahlmitte gegenüber ihrem Maximalwert bei $z = 0$ auf die Hälfte ab, w_0 bezeichnet die Strahlmitte bei $z = 0$ und $w(z)$ den Strahlradius. Der Abstand von der Strahlmitte, an dem die Intensität des Strahles auf $1/e^2$ des Zentralwertes gesunken ist, bezeichnet man als Strahlradius. Die räumliche Intensitätsverteilung $I(\vec{r})$ eines fokussierten Gaußstrahls mit der Laserleistung P , der in z -Richtung propagiert, wird durch

$$I(r, z) = \frac{2P}{\pi w^2(z)} e^{-\left(\frac{2r^2}{w^2(z)}\right)} \quad (2.17)$$

beschrieben. Wie schon erwähnt, nimmt sie bei $z = 0$ ein Maximum an, sodass Teilchen dort wie in Abbildung 2.5 illustriert gespeichert werden können. Um die Atome dauerhaft in einer solchen Falle zu fangen, muss man sicher gehen, dass die Gravitationskraft nicht grösser wird als die Dipolkraft.

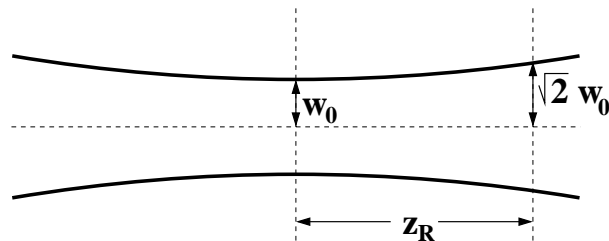


Abbildung 2.4: Die Intensität eines Gaußstrahls halbiert sich bei der Rayleigh-Länge z_r .

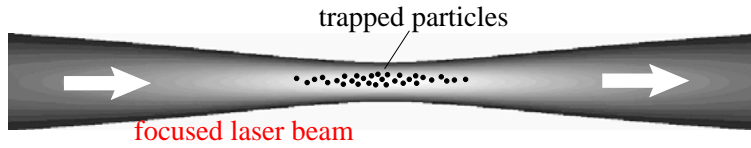


Abbildung 2.5: Mit Hilfe eines Laserstrahls geformte Optische Dipolfalle.

Aus diesem Grund wird der Laser für eine Dipolfalle meist in horizontaler Richtung eingestrahlt. Es existieren neben den rotverstimmten auch blauverstimmte Dipolfallen. Anstatt eines die Falle durch einen Fokus zu realisieren, muss man einen Hohlstrahl benutzen, da die Dipolkräfte in diesem Fall repulsiv sind.

2.3 Molekülpotentiale

In einer MOT oder einer Dipolfalle gefangene Alkalimetall-Atome bilden ein schwach wechselwirkendes verdünntes Gas. Anstatt das System als voneinander unabhängige Atome zu beschreiben, muss bei sehr kleinen internuklearen Abständen eine Beschreibung des Systems in molekularen Koordinaten und Quantenzahlen erfolgen. Man redet in diesem Zusammenhang auch von Quasi-Molekülen. Für eine detailliertere Darstellung sei auf [Wei00] verwiesen.

Der Grundzustand ($6^2S_{1/2} + 6^2S_{1/2}$) besteht wie bei allen Alkaliatomen aus einem Singulett- und einem Triplettzustand. In der Notation $^{2S+1}|\Lambda|$ des Hundschen Kopplungsfalls (a) lauten diese $X^1\Sigma_g^+$ und $a^3\Sigma_u^+$. Hierbei ist Λ die Projektion des gesamten elektronischen Bahndrehimpulses L und Σ die Projektion des gesamten elektronischen Spins auf die Molekülachse. Sie sind gute Quantenzahlen. Die Notation für Parität und Symmetrie ist $+/-$ und g/u . Der gebundene Singulett-Molekülzustand besitzt seinen Gleichgewichtsabstand bei $\sim 4,6 \text{ \AA}$ [Hön79].

Für mittlere Abstände ($10\text{\AA} < R < 50\text{\AA}$) spaltet der angeregte Zustand in Zustände auf, die durch den Hundschen Kopplungsfall (c) beschrieben werden müssen. Im Gegensatz zum Fall (a) muss hier die Feinstruktur berücksichtigt werden. \vec{L} und \vec{S} koppeln hier vektoriell zum elektronischen Gesamtdrehimpuls $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ und Λ und Σ des elektronischen Bahndrehimpulses L und des Spins S sind nun keine guten Quantenzahlen mehr. Die Zustände haben jetzt die Notation $\Omega_{g/u}^{+/-}$, wobei Ω die Projektion des Gesamtdrehimpulses auf die Molekülachse ist.

Diese angeregten langreichweitigen Zustände haben die Notation $1_u, 1_g, 0_u^+$ und 0_g^- . Dabei haben die Potentialkurven des 1_u und 0_g^- -Zustands einen zwei-

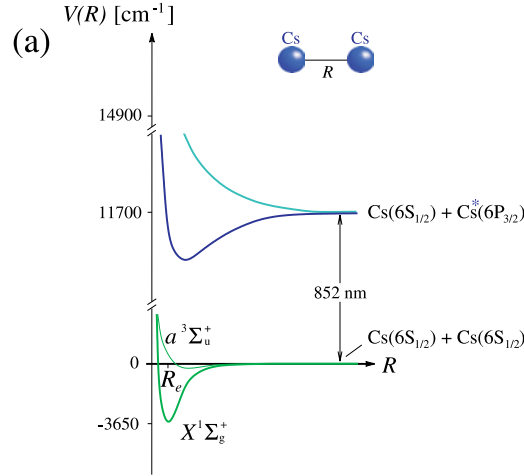


Abbildung 2.6: Molekulare Born-Oppenheimer Potentiale von Cs_2 . Ausser dem langreichweitigen $1/R^3$ Potential des angeregten CsCs^* ist auch das Grundzustandspotential mit kurzreichweitiger $1/R^6$ Wechselwirkung dargestellt.

ten äußeren Potentialtopf. Man erhält so zwei langreichweitige, schwach gebundene Molekülzustände. Auch das 1_g - und das 0_u^+ -Niveau besitzen zwar gebundene Zustände bei großen Kernabständen, es handelt sich dabei aber um gewöhnliche, einfache Potentialminima. Das Molekülpotential zweier Atome lässt sich für grosse Abstände durch eine Entwicklung in elektrische Multipolbeiträge beschreiben:

$$V(R \rightarrow \infty) = D - \frac{C_3}{R^3} - \frac{C_6}{R^6} - \frac{C_8}{R^8} - \frac{C_{10}}{R^{10}} - \dots \quad (2.18)$$

wobei D die Energie zweier freier Atome ist. Die resonante Dipol-Dipol-Wechselwirkung wird durch den $\frac{C_3}{R^3}$ -Term berücksichtigt. Die Van-der-Waals-Wechselwirkung wird durch $\frac{C_6}{R^6}$ -Term berücksichtigt.

Für den Koeffizienten der Dipol-Dipol-Wechselwirkung gilt:

$$C_3 \simeq \pm |\langle A | d_z | B^* \rangle|^2 \quad (2.19)$$

wobei d_z der Dipoloperator ist. Er entsteht durch die Austauschwechselwirkung des Zustandes $|A^*B\rangle$ mit dem Zustand $|AB^*\rangle$. Der Koeffizient ist nur dann von null verschieden, falls die beiden Zustände A^* und B^* energetisch entartet sind. Dies bedeutet, dass der Koeffizient im heteronuklearen Fall verschwindet. Für den Koeffizienten der Van-der-Waals-Wechselwirkung gilt mit den Übergangsfrequenzen $\nu_i = c/\lambda_i$ und den Übergangsdipolmomenten

$d_i = \langle i | d_z | i^* \rangle$ zweier Atome ($i = A$ oder B)

$$C_6 \simeq -\frac{4d_A^2 d_B^2}{h(\nu_A + \nu_B)} \quad (2.20)$$

im Grundzustand (AB) des Moleküls und

$$C_6^* \simeq +\frac{4d_A^2 d_B^2}{h(\nu_A - \nu_B)} \quad (2.21)$$

im angeregten Molekülzustand (AB)*.

Das Grundzustandspotential und das angeregte Potential sind für Cs_2 in Abbildung 2.6 dargestellt. Wie erwartet weist das Potential des angeregten Zustands eine R^{-3} -Abhängigkeit auf, während die Potentialkurve des Grundzustandes eine C_6/R^6 -Abhängigkeit besitzt.

2.4 Der Aufbau des Experiments

Nachdem die Prinzipien der Laser-Kühlung und Fangens erklärt worden sind soll jetzt der experimentelle Aufbau dargestellt werden. Dazu wird zunächst der Aufbau der magneto-optische-Falle und der quasi-elektrostatischen Dipolfalle erklärt. Im Anschluss daran wird der Ladezyklus der Cs-Atome in die quasi-elektrostatische Dipolfalle erklärt. Für eine detailliertere Beschreibung sei hier auf vorangegangene Diplom- und Doktorarbeiten [Woh00, Kra01, Lan02, Eng00b] verwiesen.

2.4.1 Das MOT-System

Bei dem vorhandenen Aufbau handelt es sich um eine Fünf-Strahl-MOT. Der für die MOT notwendige sechste Strahl wird durch Rückreflektion einer der fünf anderen Strahlen, nämlich dem in vertikaler Richtung, gebildet. Eine solche Konfiguration hat gegenüber einer Drei-Strahl MOT den Vorteil, dass die Position der MOT weniger anfällig gegenüber Intensitätsschwankungen und Dichteschwankungen der MOT-Strahlen ist. Im Fall der Drei-Strahl-MOT müssen für die erforderlichen sechs Strahlen drei MOT-Strahlen in sich zurückreflektiert werden. Durch die teilweise Absorption des Hinstrahls in der MOT und allgemeine Verluste ist der rückreflektierte Strahl aber immer intensitätsschwächer. Der daraus resultierende unterschiedliche Strahlungsdruck von Hin- und Rückstrahl führt zu einer intensitäts- und dichteabhängigen Position der Atomwolke in der MOT.

Das Cs Lasersystem besteht aus vier DBR (Dioden- Distributed Bragg Rescattering) mit bis zu 80 mW Leistung. Kühl- und Rückpumplicht sowie den

für den weiter unten beschriebenen Zeeman-Abbremsler benötigten Strahl werden so zur Verfügung gestellt. Mit Hilfe des vierten Lasers kann optische Melassekühlung während des Transfers der Atome in die Dipolfalle durchgeführt werden. Aus Gründen der Strahlqualität, der Flexibilität und der Anordnung des Experiments werden die Strahlen der DBR-Dioden mit Fasern zur Experimentierkammer geführt.

Die Cs-Atome selbst werden aus einer Dispenserkammer gewonnen, in denen ein Strom von 3 Ampère fließt. Dadurch wird ein Atomstrahl erzeugt, der in die Hauptkammer des Experiments eintritt, in der ein Ultrahochvakuum von $\sim 6 \cdot 10^{-11}$ mbar herrscht. Die MOT fängt die langsamen Cs-Atome ($v \sim 10$ m/s) dann aus dem im Zeeman-Abbremsler verlangsamten Atome ein. Mit dem Zeeman-Abbremsler nutzt man wie in der MOT den Doppler- und den Zeemaneffekt aus. Die Atome werden durch einen um wenige Linienbreiten rotverstimmtten Laserstrahl, der mit Rückpumplicht überlagert ist, abgebremst. Ein kontinuierlich mit der zurückgelegten Strecke abfallendes Magnetfeld sorgt dafür, dass die Atome in Resonanz gehalten werden.

2.4.2 Die quasi-elektrostatische Dipolfalle

Der zentrale Teil des Experiments wird durch die quasi-elektrostatische Dipolfalle (QUEST, siehe Abschnitt 2.2.4) gebildet. Im Experiment wird ein kommerziell erhältlicher CO₂-Laser (Model Evolution 100 Synrad) mit einer effektiven Ausgangsleistung von 130 W eingesetzt. Der Laser wird durch eine Radio-Frequenz induzierte Entladung in einer geschlossenen Entladungsröhre gepumpt. Der CO₂-Laser besitzt nur äußerst geringe Beiträge von höheren transversalen Moden außer der Gaußmode nullter Ordnung (TEM₀₀). Seine Wellenlänge beträgt 10,6 μm , und damit ist der Laser sehr gut für eine weitverstimmtte Dipolfalle geeignet. Die quasi-elektrostatische Dipolfalle wird im Experiment durch Fokussierung des Strahls auf $w_0 = 80 \mu\text{m}$ in der Kammer gebildet. Da Glas-Fenster das Licht des CO₂-Lasers nicht transmittieren würden, werden ZnSe-Fenster als Eintrittsfenster in der Kammer verwendet. Die ZnSe-Fenster werden mit Hilfe von wassergekühlten Kupferringen gekühlt, da vermutlich Absorption des Lichts des CO₂-Lasers zu einer Druckzunahme in der Kammer führt [Woh00].

In der quasi-elektrostatischen Dipolfalle gefangene Atome bilden eine zigarrenförmige Wolke, die eine Länge von 1200 μm und einen Durchmesser von 30 μm hat. Bedingt durch diese Form ist das Potential der Falle in radialer Richtung wesentlich flacher als in axialer. Für Cäsiumatome hat die Falle eine Tiefe von 740 μK . Aufgrund des AC-Stark-Shifts ist die Resonanzfrequenz der Atome bis zu 40 MHz verschoben [Kra01].

Aufgrund der großen Frequenzverstimmung werden nur wenige Photo-

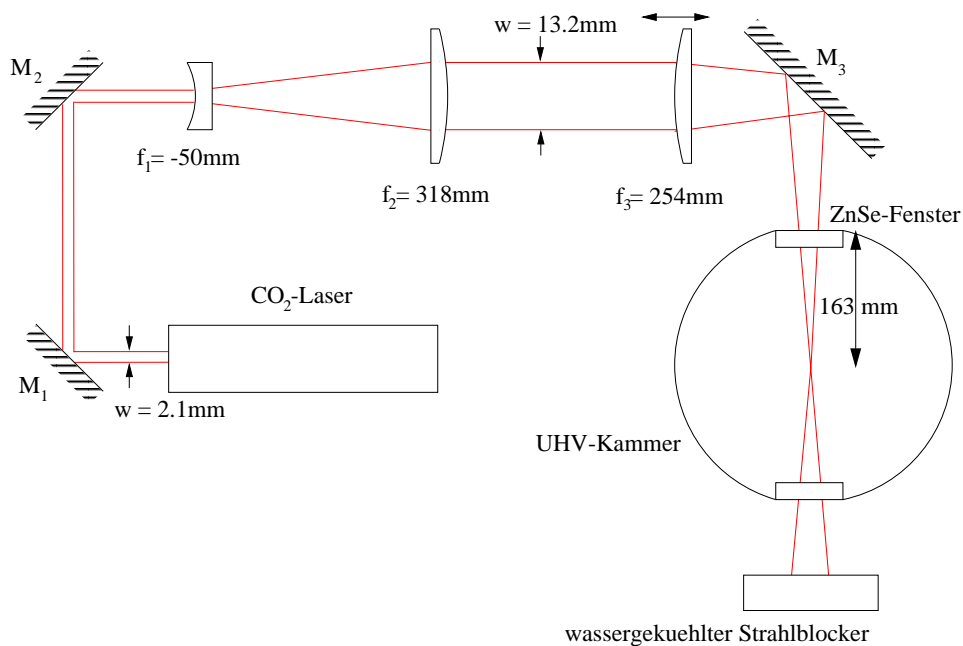


Abbildung 2.7: Fokussierende Optik des CO_2 -Lasers. Ein Teleskop weitet den Strahl auf, bevor er auf $\sim 80 \mu\text{m}$ in der Kammer fokussiert wird.

nen pro Stunde gestreut, weswegen Photonenstreuung nahezu vernachlässigt werden kann. Für Atome im unteren Hyperfeinzustand ($F=3$) des Grundzustandes ist daher die Lebensdauer allein durch Stöße mit dem Restgas in der Vakuumkammer bestimmt. Für im $F=3$ -Zustand gespeicherte Atome werden so Speicherzeiten von ~ 100 Sekunden erreicht. Im ($F=4$)-Zustand gespeicherte Atome werden dagegen nur ungefähr $\sim 0,1$ s gespeichert, da sie durch inelastische Stöße, wodurch sie in den ($F=3$)-Zustand abgeregt werden, ihre Energiedifferenz in kinetische Energie umsetzen können. Diese übersteigt die Falltiefe, was zu einem Verlust beider Stoßpartner führen kann [Muda]. Zur Untersuchung der Cs_2 -Photoassoziation stellt die quasi-elektrostatische Dipolfalle nicht zuletzt wegen der langen Speicherdauern im $F=3$ -Zustand eine ideale Umgebung da (siehe Kapitel 3.1.2).

Aufgrund ihrer großen Streulänge $a_T = -2400a_0$ (siehe Kapitel 5) thermalisieren Cäsiumatome durch elastische Stöße auf Zeitskalen von unter 1 Sekunden.

2.4.3 Nachweis der gespeicherten Teilchen

Zur Bestimmung von Anzahl, Dichte und Temperatur der gespeicherten Teilchen werden verschiedene Verfahren benutzt.

Fluoreszenzbilder Als einfache und für relative Messungen sehr genaue Methode hat sich die Fluoreszenzspektroskopie herausgestellt. Dabei wird das Licht der Atome, die durch resonantes Licht angeregt werden, aufgenommen. Meistens geschieht dies einfach indem das Fluoreszenzlicht der in der MOT gefangenen Atome, aufgenommen wird. Die Teilchenzahl in einer MOT kann auch für kleine Teilchenzahlen auf diese Weise sehr genau bestimmt werden, da die Speicherzeiten in einer MOT lang sind und die Aufnahmezeiten entsprechend lang sein können. Allerdings handelt es sich dabei um eine relative Messung der Teilchenzahl und nicht um eine absolute. Zur Aufnahme ist eine Photodiode angebracht, die über eine Abbildungsoptik und durch einen entsprechenden Farbfilter die Helligkeit des Resonanzlichtes misst. Zusätzlich kann aber auch eine CCD-Kamera das Fluoreszenzlicht messen. Mit Hilfe der CCD-Kamera können auch zweidimensionale Fluoreszenzbilder der MOT aufgenommen werden. Eine an einen Bildschirm angeschlossene Video-Kamera stellt für den Experimentator eine visuelle Überprüfung der Geschehnisse dar. Eine Eichung auf absolute Teilchenzahlen wird für die Photodiode und die CCD-Bilder mit Hilfe der Absorptionen durchgeführt, muss aber im Prinzip vor jedem Messzyklus durchgeführt werden. Da die Fluoreszenzbilder sehr rauscharm sind, lassen sich so sehr zuverlässig auch absolute Teilchenzahlen bestimmen.

Absorptionsbilder Eine Bestimmung der Teilchenzahl, Dichte und Temperatur kann für MOT und QUEST mit Hilfe von Absorptionen erfolgen. Das Prinzip dieser Methode besteht in der Abbildung des "Schattens" der entsteht, wenn das Licht eines resonanten Laserstrahls durch die MOT gestrahlt wird. Die Intensität muss kleiner als die Sättigungsintensität der Atome sein, sodass induzierte Emission nicht das Ergebnis verfälscht. Wenn die Intensität des eingestrahlt Lichtpulses klein und seine Dauer kurz genug wird die Atomwolke durch den Strahl nahezu nicht beeinflusst - abgesehen von einem leichten Aufheizen durch Photonenstreuung. Dadurch erhält man detaillierte Informationen über die Dichteverteilung und die räumliche Verteilung der Atomwolke. Unter Annahme eines thermischen Gleichgewichts und eines harmonischen Fallenpotentials ist die Atomwolke gaußverteilt. durch Integration des Logarithmus des Absorptionsprofils erhält man so schließlich Teilchenzahl und Dichte der Atomwolke.

Zum Aufnehmen der Absorptionen wird eine über ein externes Reflexionsgitter stabilisierte Laserdiode verwendet. Eine installierte CCD-Kamera nimmt die Bilder auf. Die QUEST wird erst abgeschaltet, bevor das Licht des Absorptionslasers eingestrahlt wird, da sonst der AC-Stark-Shift des Lichts der QUEST die Resonanzfrequenz der Atome so weit verschiebt, dass der La-

serstrahl nicht mehr absorbiert wird. Auf diese Weise ist unabhängig davon wie sehr die Atome durch Photonenstreuung des zur Absorption benutzten Lasers aufgeheizt werden in unserem Fall jeder Absorptionszyklus destruktiv, da die Atome die Dipolfalle verlassen. Die Temperatur der Atomwolke kann durch Aufnehmen der Expansion der Atomwolke nach Abschalten der Falle bestimmt werden (siehe Kapitel 3.2.3).

2.5 Experimentsteuerung

Für die Durchführung eines Messzyklus ist die zentrale automatisierte Ansteuerung vieler Elemente nötig. Das Experiment wird hier mit Hilfe einer PC-Einsteck-Karte AdWin mit Erweiterungskarte LD (Jäger Messtechnik) gesteuert (siehe [Woh00]). Die Elemente des Experiments können über die Karte, die einen eigenen Prozessor (TL400) besitzt, über TTL-Signale und Analog-Signale angesteuert werden. Der im Kapitel 3 beschriebene Titan-Saphir-Laser wird so zum Beispiel über ein Analogsignal angesteuert. Der Datenaustausch mit der AdWin-Karte läuft über ein mit LabVIEW implementiertes Programm ab.

Neben den Analogausgängen besitzt die Karte noch mehrere Analogeingänge. Die an den Analogkanälen anliegende Spannung kann auf der Oberfläche des LabVIEW-Programms visualisiert werden und gleichzeitig abgespeichert werden. Bei den in den nächsten Kapiteln beschriebenen Photoassoziationsmessungen werden neben dem Signal des Wavemeters, das Photodiodensignal des zur relativen Frequenzmessung benutzten Resonators und das Signal einer die Photoassoziationlaserintensität aufzeichnenden Photodiode mitgeschrieben.

2.6 Ladezyklus in die QUEST

Da man Cäsiumatome schon in der MOT-Phase durch Melassenkühlung (typischerweise dauert die Melassenkühlungs-Phase 20 ms) zu Temperaturen kühlen kann, die tiefer sind als die Falltiefe der Dipolfalle ($30\mu\text{K}$ gegenüber $740\mu\text{K}$), kann man Cäsium sehr gut in eine Dipolfalle transferieren. Der räumliche Überlapp von MOT und Dipolfalle ist hier der limitierende Faktor und man erreicht eine Transfereffizienz von etwa 10 %. Der räumliche Überlapp könnte für Cäsium noch weiter verbessert werden. Da in derselben Falle jedoch in anderen hier nicht näher beschriebenen Messreihen auch Lithium gefangen wird, ist die Falle auf eine simultane Speicherung von Cäsium- und Lithiumatomen optimiert.

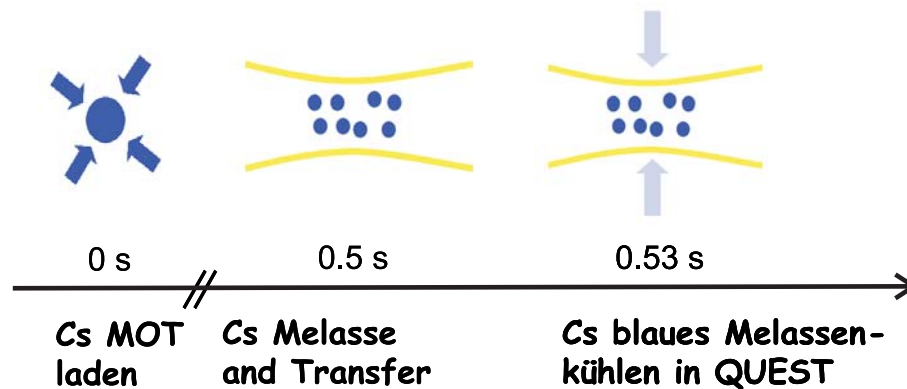


Abbildung 2.8: Schematische Darstellung des Ladezyklus in die QUEST.

Die Cäsiumteilchenanzahlen sind aber mit bis zu 10^6 -Teilchen schon ausreichend.

In Abbildung 2.8 ist eine schematische Darstellung einer Transfersequenz zu sehen. Zunächst werden die Cäsiumatome in der MOT gefangen. Hier werden typischerweise Teilchenzahlen von $5 \cdot 10^7$, Temperaturen von $100 \mu\text{K}$ und Dichten von $\sim 10^9/\text{cm}^3$ erreicht. Um einen möglichst schwankungsfreien Transfer in die Dipolfalle und damit auch schwankungsarme und reproduzierbare Messspektren zu erhalten, wird der Messzyklus mit Hilfe von Photodioden auf einen bestimmten Fluoreszenzwert der MOT getriggert. Nachdem die MOT durch eine Erhöhung der Frequenzverstimmung um typischerweise 80 MHz der MOT-Laser räumlich komprimiert ist (die Dichte steigt auf etwa $\sim 10^{10}/\text{cm}^3$), werden die Atome mit Hilfe einer optischen Melasse weiter gekühlt. Dazu werden die MOT-Magnetfelder ausgeschaltet und die Frequenzverstimmung des MOT-Lasers vom $F=4 \rightarrow F'=5$ Kühlübergang auf den $F=4 \rightarrow F'=4$ Übergang umgeschaltet. Bei dieser Verstimmung erreicht die Transfer-effizienz ein Maximum.

Danach werden die MOT-Laser ausgeschaltet. Da hier Temperaturen von $\sim 70 \mu\text{K}$ erreicht werden, ist der Transfer also tatsächlich nur durch den räumlichen Überlapp gegeben. Um die Teilchen im $F=3$ zu präparieren, wird zuerst der Rückpumplaser und dann der Kühllaser ausgeschaltet. Ca. 300 ms nach dem Transfer wird ein zusätzlicher blauverstimmter Melassenkühlpuls eingestrahlt, um die Atome in der Dipolfalle weiter zu kühlen. Bei einer Temperatur von $\sim 30 \mu\text{K}$ und Dichten von $\sim 10^{11}/\text{cm}^3$ werden jetzt bis zu $5 \cdot 10^5$ Atome in der Falle gefangen.

Kapitel 3

Photoassoziation in einer optischen Dipolfalle

Die Photoassoziationsspektroskopie hat sich seit ihrer ersten Voraussage [Tho87] zu einer wichtigen Methode der Atom- und Molekülphysik entwickelt. Erstens können mit ihrer Hilfe langreichweitige Potentiale von angeregten Molekülen bestimmt werden. Dies wurde für die Alkalimetalle Lithium bis Cäsium, Wasserstoff, Calcium und Helium durchgeführt [Mas01]. Die erste Photoassoziation von heteronuklearen Molekülen gelang für Li^6Li^7 -Moleküle [Sch01]. Zweitens ermöglicht die Photoassoziation in kalten Gasen die Produktion von kalten Grundzustandsmolekülen. Dies wurde erstmals 1998 für Cs_2 in einer MOT realisiert [Fio98]. Es folgten K_2 [Nik99] und Rb_2 [Gab00]. Drittens ist die Photoassoziation aber auch an sich interessant, weil sie Aufschlüsse über Atom-Lichtfeld-Wechselwirkungen gibt.

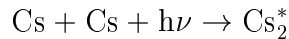
Mittlerweile existieren neben der Photoassoziation noch andere Methoden zur Herstellung von ultrakalten Molekülen. Die in der Atomphysik entwickelten Laserkühl- und Fangmethoden lassen sich nicht ohne weiteres auf Moleküle übertragen, da diese im Gegensatz zu Atomen durch eine großen Anzahl interner Zustände und dem Fehlen eines geschlossenen Zweiniveauübergangs charakterisiert sind. Ansätze für diese Erweiterung existieren aber [Bah96]. Mit Hilfe zeitlich veränderlicher elektrischer Felder ist es gelungen, polare Ammoniak-Moleküle abzubremsen und elektrostatisch zu fangen [Bet00]. Weiterhin wurde auch Puffergas erfolgreich eingesetzt, um CaH -Moleküle im mK-Temperaturbereich magnetisch zu fangen [Wei98].

In dem hier folgenden Teil der Arbeit wird die Photoassoziation von Cs_2 in einer optischen Dipolfalle untersucht. Dazu wird zunächst das Prinzip der Photoassoziation qualitativ erklärt. In dem darauf folgenden Teil wird über eine quantitative Beschreibung des Photoassoziationsprozesses der Ratenkoeffizient eingeführt. Auf die Besonderheiten der Photoassoziation in einer

Dipolfalle wird im Anschluß daran eingegangen. Der Aufbau des Photoassoziationslasersystems und die Datenaufnahme der Photoassoziationsexperimente werden beschrieben und die Messdaten präsentiert. Schließlich wird ein Modell zur Bestimmung des Ratenkoeffizienten aufgestellt, der Ratenkoeffizient aus den Messungen bestimmt und das Modell auf seine Anwendbarkeit überprüft.

3.1 Prinzip der Photoassoziation

In diesem Unterkapitel folgt eine Einführung in das Gebiet der Photoassoziation in Anlehnung an [Wei00] und [Com03]. Bei der Photoassoziation absorbiert ein freies stoßendes Atompaar ein Photon und geht in einen angeregten Molekülzustand über:



Nach dem Franck-Condon-Prinzip findet die Anregung des Atompaars vor allem am Umkehrpunkt des angeregten Potentials statt, wo der Überlapp der Grundzustandswellenfunktion mit der des angeregten Potentials am größten ist. Das angeregte Molekül kann durch spontane Emission in ein Atompaar zerfallen.



Da dieses Atompaar zusätzliche kinetische Energie besitzt, trägt es entweder zur Erwärmung des Ensembles bei oder verlässt die Falle, wenn die so gewonnene kinetische Energie größer als die Falltiefe ist. Dieser Übergang ist in Abbildung 3.1 als Prozess I dargestellt.

Es besteht allerdings auch die Möglichkeit, dass das angeregte Molekül in einen gebundenen Grundzustand übergeht (Prozess II in Abbildung 3.1).



Der angeregte Molekülzustand von homonuklearen Molekülen weist eine $1/R^3$ -Abhängigkeit auf (siehe Kapitel 2). Hiermit liegt der äußere Umkehrpunkt des angeregten Potentials bei sehr viel größeren Abständen als der des Grundzustandspotentials, das eine $1/R^6$ -Abhängigkeit besitzt. Da nach dem Franck-Condon-Prinzip die Anregung vor allem am äußeren Umkehrpunkt des angeregten Potentials stattfindet, ist der Überlapp der Wellenfunktionen sehr gering. Andererseits hängt die Wahrscheinlichkeit, dass sich ein Atompaar in einem bestimmten Abstand R aufhält, quadratisch von R ab. Dies bedingt, daß bei einem großen internuklearen Abstand des äußeren Umkehrpunkts des angeregten Molekülpotentials tendenziell viele Atome angeregt werden. Trotzdem ist die Grundzustandsmolekülbildungsrate sehr

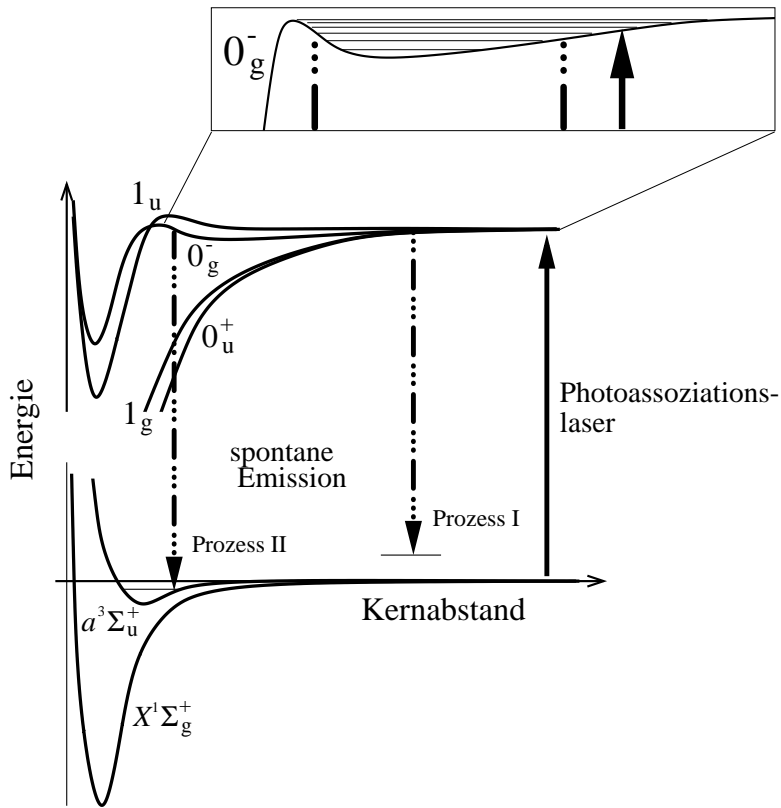


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Photoassoziationsprozesses für Cäsium an der $(6 s_{1/2} + 6 p_{3/2})$ -Asymptote des 0_g^- -Zustandes. Dieser weist einen extrem flachen äußeren Potentialtopf auf. Zwei stoßende Atome gehen durch den Photoassoziationslaser in den angeregten Zustand über. Durch Emission zerfallen sie entweder wieder in ein freies Atompaar (Prozess I), oder sie gehen in einen gebundenen Grundzustand über (Prozess II).

gering, denn das angeregte Molekülpotential verläuft am inneren Umkehrpunkt sehr steil, was eine geringe Amplitude der Wellenfunktion impliziert, die wiederum nur wenig zum Überlapp der Wellenfunktionen und damit zur Grundzustandsmolekülbildungsrate beiträgt.

Für die Photoassoziatio n des hier verwendeten Cäsiums existieren verschiedene Bemühungen, trotz der niedrigen Bildungsraten Grundzustandsmoleküle zu bilden. Zum einen könnte man ausnutzen, dass Cs_2 den angeregten $0_g^-(s + p_{1/2})$ Zustand besitzt, der sowohl für die Anregung als auch für die spontane Emission am selben Umkehrpunkt akzeptable Raten aufweist. Dieser Zustand ist insbesondere interessant, weil er eine für homonukleare Moleküle ungewöhnliche $1/R^6$ -Abhängigkeit besitzt und damit eine höhe-

re Photoassoziationsrate aufweist als wenn sein Potential durch eine $1/R^3$ -Abhängigkeit gegeben wäre, wie eine theoretische Betrachtung zeigt [Pil97]. Bei gegebenem Condonpunkt (R_c) ist die Photoassoziationsrate bei einem angeregten C_n/R^n -Potential nämlich zu $\Psi(R_c)_E^2 R_c^n$ proportional, wobei Ψ_E die Grundzustandswellenfunktion darstellt.

Weiterhin könnte man durch Einstrahlen eines zusätzlichen Lasers den angeregten Molekülzustand an einen anderen Zustand koppeln, der eine höhere Übergangsrate in den Grundzustand hat [Bah95].

Hingegen wurde für die hier beschriebenen Experimente ein anderer Weg gewählt, der auch in [Fio99] besprochen wurde. Der $0_g^-(s + p_{3/2})$ -Zustand des angeregten Cs_2 -Moleküls weist einen langreichweitigen, flachen äußeren Potentialtopf auf (siehe Abbildung 3.1). Dieser Verlauf des Potentials führt dazu, daß die Vibrationsbewegung des angeregten Moleküls langsam ist und der innere Umkehrpunkt bei einem mittleren Abstand liegt. Die Potentialkurve besitzt also einen äußeren Umkehrpunkt bei großen internuklearen Abständen, was zu einer hohen Übergangsrate in den angeregten Molekülzustand führt. Zudem besitzt das Potential einen inneren Umkehrpunkt bei mittleren internuklearen Abständen, wodurch die Übergangswahrscheinlichkeit in den Grundzustand hoch ist.

Die angeregten Moleküle können nicht nur durch spontane Emission am inneren Umkehrpunkt des $0_g^-(s + p_{3/2})$ in ein stabiles Grundzustandsmolekül übergehen, sie können dies auch indem sie mit einer endlichen Wahrscheinlichkeit den Potentialwall des $0_g^-(s + p_{3/2})$ -Zustandes durchtunneln und von dort aus mit relativ hoher Wahrscheinlichkeit durch spontane Emission in ein Grundzustandsmolekül übergehen [Vat00].

Auch die resonante Kopplung zwischen den Vibrationsniveaus des $0_u^+(s + p_{1/2})$ mit denen des $0_u^+(s + p_{3/2})$ ermöglicht die Bildung von kalten Molekülen. Ähnlich wie beim Tunneleffekt findet die Anregung bei großen internuklearen Abständen statt, und die Kopplung bei kleinen Abständen ermöglicht eine effiziente Molekülbildungsrate [Dio01].

3.1.1 Photoassoziationsrate und Lichtverschiebung

Eine Berechnung der Photoassoziationsrate und der Lichtverschiebung wird in [Boh99] und in [Sim02] ausgeführt. Dazu ist ein quantitatives Verständnis der Photoassoziation nötig. Diese Theorie ist hier vor allem deshalb so interessant, weil die gewonnenen Zusammenhänge nicht störungstheoretisch berechnet sind. Dadurch ist sie auch für hohe Intensitäten gültig. Im Gegensatz dazu ist die Theorie von [Pil97] störungstheoretisch und damit nicht für den Grenzfall sehr hoher Intensitäten geeignet. Ein großes Gewicht in der folgenden Darstellung soll auf den tatsächlich im Experiment direkt be-

stimmbaren Größen liegen.

Der Photoassoziationsprozess wird in [Sim02] als geschlossenes Kopplungsstreuproblem in der Basis lichtadressierter molekularer Zustände behandelt. Die verschiedenen Grundzustands- und angeregten Zustandskanäle koppeln bei Annäherung der Atome entweder direkt über die interatomaren Molekülpotentiale, oder sie koppeln über die Atom-Lichtfeld-Wechselwirkung. In diesem Bild kann die Hamiltonfunktion des gesamten Systems als Summe der relativen radialen kinetischen Energie und der gesamten potentiellen Energie geschrieben werden. Als Randwertbedingungen des Streuproblems wird hier gefordert, daß die Atome für große internukleare Abstände nicht mehr mit dem Lichtfeld wechselwirken und demzufolge auch die Atom-Licht-Kopplung asymptotisch verschwindet, da für sehr geringe Intensitäten lichtadressierte Effekte vernachlässigt werden können und vor allem die Anregung am Condonpunkt entscheidend ist. Um schließlich die Streumatrix S auszurechnen, wird in einem nächsten Schritt die Übergangsmatrix T mit Hilfe einer Zweipotentialstreiformel [Tay72] berechnet. Dazu wird das Potential in einen Molekül- V_0 und einen Strahlungsanteil V_r zerlegt. Die Übergangsmatrix T vom Kanal $l\alpha$ zum Kanal $l'\beta$ ist dann:

$$\begin{aligned} \langle El'\beta|T|El\alpha\rangle &= \langle El'\beta|T_0|El\alpha\rangle \\ &+ \sum_{i,j} \langle \Phi_{l'\beta}^{E(-)}|V_{ge}|\Phi_{ei}^0\rangle [G_{ee}^{(+)}(E)]_{ij} \langle \Phi_{ej}^0|V_{eg}|\Phi_{l\alpha}^{E(+)}\rangle \end{aligned} \quad (3.1)$$

mit dem Propagator

$$[G_{ee}^{(+)}]_{ij} = [(E + \hbar\omega)\mathbf{1}_{ee} - \mathbf{E}_e^0 - \boldsymbol{\delta} + \frac{i}{2}(\boldsymbol{\gamma} + \boldsymbol{\Gamma})]_{ij}^{-1} \quad (3.2)$$

Mit Hilfe dieses Propagators konnte die Summe in der Übergangsmatrix nur als Skalarprodukt der Streuzustände $|\Phi_{l'\beta}^{E(-)}\rangle$ des Potentials V_0 geschrieben werden, ohne dass Wellenfunktionen des Gesamtpotentials V eingingen. Die Quantenzahl α charakterisiert den internen Zustand eines nicht wechselwirkenden Atompaars, und l ist der relative Bahndrehimpuls. Die Atom-Lichtfeld-Wechselwirkung ist durch die Matrix

$$V_{ge} = -d(r)\sqrt{\frac{2\pi I}{c}} \quad (3.3)$$

gegeben, wobei I die Laserintensität, c die Lichtgeschwindigkeit und d das molekulare elektrische Matrixdipolmoment ist.

Induzierte Rate und Lichtverschiebung

Im Propagator ist Γ die gesuchte induzierte Rate

$$\Gamma_{ijl\alpha}^E = 2\pi \langle \Phi_{ej}^0 | V_{eg} | \Phi_{l\alpha}^{E(+)} \rangle \langle \Phi_{l\alpha}^{E(+)} | V_{ge} | \Phi_{ei}^0 \rangle \quad (3.4)$$

und δ die Lichtverschiebung

$$\delta_{ijl\alpha}^E = \frac{\langle \Phi_{ej}^0 | V_{eg} | \Phi_{gln}^0 \rangle \langle \Phi_{gln}^0 | V_{ge} | \Phi_{ei}^0 \rangle}{E - E_{gln}} \quad (3.5)$$

einer Photoassoziationsresonanz. Hierbei ist E_{gln} der diskrete Eigenwert zum Eigenvektor $|\Phi_{gln}^0\rangle$ des Grundzustandspotential und E die Gesamtenergie. In die induzierte Rate geht das Kopplungsmatrixelement und das Franck-Condon-Integral ein. In die Lichtverschiebung gehen auch das Kopplungsmatrixelement und das sogenannte Franck-Condon-Integral zweiter Ordnung ein. Dies unterscheidet sich vom Franck-Condon-Integral, also dem erster Ordnung, in das gehen nicht die regulären, sondern die irregulären Wellenfunktionen des Grundzustandspotentials ein.

Experimentell interessant sind hier vor allem zwei Dinge: Sowohl die Verbreiterung als auch die Linienverschiebung sind nicht von der Laserfrequenz abhängig. Sie sind beide linear in der Intensität, denn in beiden ist das Quadrat des Kopplungsmatrixelements enthalten. Die Lichtverschiebung ist normalerweise für Photoassoziationsexperimente bei ultrakalten Temperaturen negativ.

Ratenkoeffizient und Linienform

Mit dem so gewonnenen Übergangsmatrixelement kann die Streumatrix und damit schließlich auch der Photoassoziationsratenkoeffizient berechnet werden:

$$G = \frac{\pi v}{k^2} p \quad (3.6)$$

Er ist also das Produkt aus der Relativgeschwindigkeit v der beiden stoßenden Atome mit dem inelastischen Streuquerschnitt $\sigma = \frac{\pi}{k^2} p$. Der Wellenvektor der Relativbewegung ist k . Die Streuwahrscheinlichkeit p beschreibt die Wahrscheinlichkeit mit der je Stoß photoassoziiert wird. Der Zusammenhang zwischen der Streuwahrscheinlichkeit und der Streumatrix ist:

$$1 - \sum_{\beta'l'm'} |S_{\beta'l'm',\alpha lm}|^2 = p \quad (3.7)$$

Unter der Annahme eines Born-Oppenheimer-Potentials für den Grundzustand und rein langreichweitiger 0_g^- Rotationszustände für das angeregte

Potential erhält man die jetzt folgende Formel. Zudem wurde die Berechnung noch für rein σ^- -polarisiertes Licht durchgeführt. Im Experiment wird zwar kein σ^- -polarisiertes Licht verwendet, an der prinzipiellen Abhängigkeit ändert dies jedoch nichts. Man erhält dann für die Linienform der Photoassoziationsrate eine lorentzförmige Abhängigkeit:

$$G = \sum G_l \quad (3.8)$$

$$G_l = \frac{\pi v}{k^2} \frac{\gamma \Gamma_l^E}{(E - \Delta - \sum_l \delta_l^E)^2 + \frac{1}{4}(\gamma + \sum_l \Gamma_l^E)^2} \quad (3.9)$$

Hierbei ist Δ die Verstimmung des Photoassoziationslasers von der Resonanz. Der gesamte Ratenkoeffizient ergibt sich als Summe über die Ratenkoeffizienten der einzelnen Partialwellen. Sowohl die gesamte induzierte Breite als auch die gesamte Lichtverschiebung ergeben sich jeweils als Summe aus ihren einzelnen Partialwellenanteilen. Im Folgenden wird allerdings immer von effektiven Ratenkoeffizienten gesprochen werden, weil nicht Γ_l gemessen werden kann, sondern die Summe über alle induzierten Breiten: $\Gamma_{eff} = \sum \Gamma_l$.

3.1.2 Photoassoziation in einer Dipolfalle

Während die meisten Photoassoziationsuntersuchungen in einer MOT durchgeführt wurden, wurden Photoassoziationsresonanzen von Rubidiummolekülen schon in einer weitverstimzten Dipolfalle gemessen [Cli94, Mil93]. Die ersten Messungen zu Cäsium in einer Dipolfalle wurden in [Lan02] präsentiert.

Die Photoassoziationsmessungen in der vorliegenden Arbeit werden ausschließlich in einer Dipolfalle durchgeführt. Da es sich bei der hier verwendeten Dipolfalle um die spezielle Anordnung einer QUEST (siehe Kapitel 2) handelt, konzentrieren wir uns im Folgenden nur auf die QUEST. Eine in einer QUEST gefangene Atomwolke stellt idealerweise ein abgeschlossenes System im thermodynamischen Gleichgewicht dar (siehe Kapitel 2). Im konservativen Potential einer QUEST stellt sich ein thermodynamisches Gleichgewicht ein, sofern die Atomwolke durch elastische Stöße schnell genug thermalisieren kann. Photonenstreuung des Fallenlichts (wenige Photonen pro Stunde) und parametrische Anregung an den gefangenen Atomen sind zu vernachlässigen.

Photoassoziiert man in einer QUEST, wird die Geschlossenheit des Systems aufgehoben. Durch den Photoassoziationsprozess selbst verändern sich Teilchenzahl, Temperatur und Dichte. Zudem führt nichtresonante Photonenstreuung des Photoassoziationslasers zu einem Aufheizprozess der Atome

und damit zu einer Verletzung der Konservativität des Potentials. Allerdings zeigt eine Abschätzung, daß die Photonenstreuung mit ca. 400 Photonen pro Sekunde vernachlässigbar ist. Wie eine Abschätzung der elastischen Stößraten in Kapitel 4.8 und die Messungen der Photoassoziationsrate zeigen wird, befinden sich diese beiden Prozesse auf einer ähnlichen Zeitskala, was zu einem thermischen Ungleichgewicht führen kann. Die nichtresonante Photonenstreuung des Photoassoziationslasers kann aber noch einen anderen Effekt als den direkten Aufheizeffekt haben. Die Cäsiumatome werden in den hier vorgenommenen Messungen alle im untersten Hyperfeinniveau des Grundzustandes gespeichert. Die Atome können von diesem $6^2S_{1/2}(F=3)$ -Zustand durch nichtresonante Photonenstreuung in $6P$ -Zustände angeregt werden und zerfallen dann teils in den $F=4$ -Unterzustand, teils in den $F=3$ -Unterzustand. Durch hyperfeinändernde Stöße [Muda] von $F=3$ mit $F=4$ -Atomen kann durch das Umklappen des Spins frei werdende Energie zum Fallenverlust führen. Um dies auszuschließen, wird ein zusätzlicher Laser auf den $6S(F=4) \rightarrow 6P(F'=4)$ -Übergang eingestrahlt, der alle Atome in den $F=3$ -Zustand zurückpumpt. Der zusätzliche Heizprozess durch Photonenstreuung dieses Lasers kann aufgrund seiner schwachen Intensität vernachlässigt werden.

Falldynamik in einer QUEST Um einen Photoassoziationsratenkoeffizienten in der QUEST angeben zu können, ist die genaue Kenntnis der Entwicklung von Teilchenzahl, Temperatur und Dichte und damit der Falldynamik erforderlich. Als Signatur für die Abnahme der Teilchenzahl wird der Fallenverlust detektiert. Die Abnahme der Atomzahl durch Photoassoziation läßt sich zudem sehr genau bestimmen, weil die Falle aufgrund ihrer geringen Tiefe ($740 \mu K \times k_B$) empfindlich gegenüber gebildeten angeregten Molekülen ist, die wieder in Atome mit höherer kinetischer Energie dissoziieren. Für das Verständnis der Falldynamik während der Photoassoziation erweist sich vor allem die lange Speicherdauer der Atome als vorteilhaft. Sie ist nur durch Stöße mit dem Hintergrundgas limitiert und beträgt bis zu hundert Sekunden, wobei die Falle in der Regel schon nach zehn Sekunden nicht mehr weiter durch Photoassoziation entleert wird. Daher werden Stöße mit dem Hintergrundgas vernachlässigt.

Bei der Angabe eines Ratenkoeffizienten muß man sich folgender Ungenauigkeit bewußt sein. Der Strahl des Photoassoziationslasers trifft die QUEST unter einem Winkel von ungefähr 22.5° . Da die QUEST zigarrenförmig ist ($\sim 1200 \mu m$ Länge und $\sim 30 \mu m$ Durchmesser), leuchtet der Photoassoziationslaser ($\sim 150 \mu m$ Durchmesser) zu einem gegebenen Zeitpunkt nur einen Teil der Falle aus. Dies täuscht einen zu geringen Ratenkoeffizienten vor.

Fallendynamik in einer MOT Im Gegensatz zur Dipolfalle liegt die Speicherzeit in einer MOT auf der Skala des Photoassoziationsverlustprozesses, da sie durch lichtinduzierte Stöße begrenzt ist. In einer Gleichgewichtsmot ist die Fallendynamik damit durch das Wechselspiel aus Laderate und dichteabhängiger Verlustrate bestimmt. Aufgrund des ständigen Nachladens in die Falle hängt die Fallendynamik kritisch von äußeren Parametern (Justage der MOT-Strahlen, Laser-Detuning, dem magnetischen Feldgradienten) ab. Nach [Tow95] ist die Dichte in einer MOT normalerweise durch Vielfachstreuung limitiert und unabhängig von der Teilchenzahl (Vielfachstreuungs-Regime). Unter speziellen Bedingungen kann die Dichte der MOT allerdings durch die Teilchenzahl und die Temperatur bestimmt sein (temperaturlimitiertes Regime). Letzteres ist bei geringen Teilchenzahlen und damit einhergehenden geringen Dichten und seltenen Vielfachstreuungsprozessen der Fall. In der Literatur [Dra00b] wird für Photoassoziationsuntersuchungen in der MOT eine konstante Dichte vorausgesetzt. Man nimmt also an, daß man sich im Vielfachstreuungs-Regime befindet. Es ist aber vorstellbar, daß global die Teilchenzahl in der MOT durch Photoassoziation stark abnimmt. Ist man dann schon im temperaturlimitierten Regime, geht die Abnahme der Teilchenzahl mit einer Dichteabnahme einher.

Auch ohne das Einstrahlen eines zusätzlichen Photoassoziationslasers stellt die gefangene Atomwolke einer MOT kein Ensemble im thermodynamischen Gleichgewicht dar, da aufgrund der ständigen Kühlung durch die Kühllaser und der Aufheizung durch lichtinduzierte Stöße kein thermodynamisches Gleichgewicht eintreten kann.

Durch die Abgeschlossenheit des Ensembles Dipolfalle, also dem Fehlen von Laderate und ständiger Kühlung, kann auf die in der MOT notwendigen Annahmen bezüglich der eben beschriebenen Prozesse verzichtet werden.

Intensitätseffekte Im folgenden Kapitel werden Intensitätseffekte der Photoassoziation untersucht. Ziel ist es, ob der Ratenkoeffizient ab einer bestimmten Intensität nicht mehr linear mit der Intensität ansteigt. Um in ein nicht-lineares Regime vorzustoßen, strebt man möglichst hohe Raten an. Die sehr hohen Dichten (Ausgangsdichten von bis zu 10^{12} Teilchen/cm³) in einer Dipolfalle führen, da die Paardichte linear in die Rate eingeht, zu großen Raten. Das Fallenverlustsignal kann auch vergrößert werden, indem die Photoassoziationsdauer verlängert wird. Die Verlängerung ist im Prinzip nur durch die Speicherdauer begrenzt (100 s). Wie oben beschrieben werden bei den hier durchgeführten Messungen die Atome im unteren F=3-Hyperfeinzustand präpariert. Auch das trägt hier zu einer hohen Rate bei. Hat man die Atome in einem spezifischen Zustand präpariert, so kann die Population dieses

Zustandes - und damit die gesamte Atomzahl - zum Photoassoziationsignal beitragen und nicht nur ein Anteil.

In einer MOT treffen die genannten Vorteile der Dipolfalle für Intensitätsuntersuchungen nicht zu. Die Paardichten sind um bis zu einen Faktor 100 kleiner, die Lebensdauern sind im Sekundenbereich.

Einen Nachteil hat die Dipolfalle allerdings für diese Untersuchungen. Durch den AC-Stark-Shift des Laserlichts der quasi-elektrostatischen Dipolfalle werden die Photoassoziationsresonanzen ortsabhängig lichtverschoben. Dies führt zu einer zusätzlichen Verbreiterung der Photoassoziationsresonanzen.

Modulation der Grundzustandswellenfunktion: Die Untersuchung der Variation der Grundzustandswellenfunktion für kleine Vibrationquantenzahlen im äußeren Potentialtopf des 0_g^- - Zustands wird in Kapitel 5 behandelt. Aus der Grundzustandswellenfunktion kann auf die Streulänge geschlossen werden. Da die Streulänge die elastischen Wechselwirkungen zwischen den Atomen eines kalten Gases charakterisiert, stellt ihre Bestimmung eine aktuelle Fragestellung dar [Chi00]. Auch für diese Untersuchungen treffen die oben genannten Vorteile der Dipolfalle zu. So ist eine hohe Anregungsrate schon deswegen unerlässlich, weil ohne diese die untersuchten Niveaus über Fallenverluste gar nicht nachgewiesen werden könnten, da hier die Raten sonst ungenügend wären. Die Präparation in einem wohldefinierten Hyperfeinzustand (hier der $F=3$) ist hier wichtig, weil die hier durchgeführten Untersuchungen mit der zugehörigen Theorie verglichen werden sollen. In die Theorie geht aber auch die Kenntnis des Hyperfeinzustandes ein.

3.2 Das Photoassoziationslasersystem

Hier soll zunächst der für die Photoassoziationsuntersuchungen eingesetzte Photoassoziationslaser, ein Titan-Saphir-Laser, vorgestellt werden. Außerdem wird sein Strahlengang durch die Kammer, die Bestimmung seines Strahldurchmessers und seiner Frequenz beschrieben.

3.2.1 Titan-Saphir-Laser

Als Photoassoziationslaser dient ein Einmoden-Dauerstrich-Titan-Saphir-Laser (MBR-110, Coherent). Gepumpt wird der Titan-Saphir-Laser durch einen Argonionenlaser (Innova 90, Coherent), der eine Ausgangsleistung von bis zu 8 W hat. Einer der großen Vorzüge des Titan-Saphir-Lasers ist der große Bereich auf dem seine Wellenlänge durchstimmbare ist (700-1000 nm). Seine Leistung ist neben der Leistung und Strahlqualität des Pumplasers

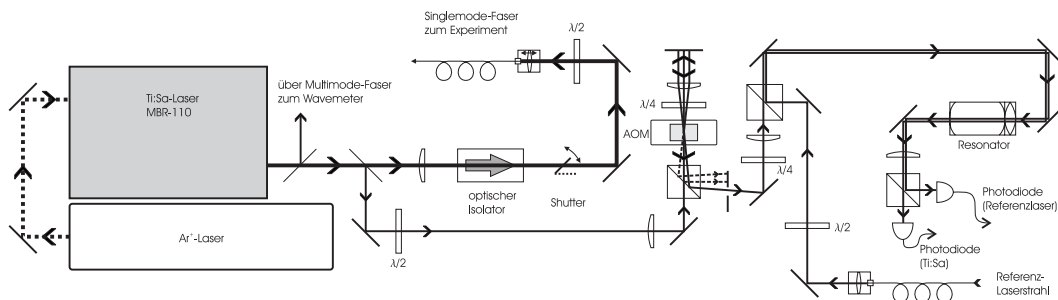


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung des gesamten Ti:Sa-Systems

auch von seiner Wellenlänge abhängig. Die wellenlängenabhängigen Schwankungen betragen bis zu 30 %. Bei den für die Cäsiumphotoassoziation benötigten Frequenzen (852 nm bis 858 nm) lieferte er eine Leistung von bis zu 220 mW. In Abbildung 3.2 ist das gesamte Titan-Saphir-Lasersystem zu sehen. Im linken Teil der schematischen Darstellung sieht man den Titan-Saphir-Laser (Ti:Sa-Laser) und den Argonionenpumplaser. Noch vor dem Isolator wird zweimal ein Bruchteil des Strahls (wenige mW) aus dem Strahlengang herausgespiegelt. Der eine Anteil wird zu einem Wavemeter und der andere in einen Resonator-Aufbau geführt. Beides dient der Frequenzzeichnung und wird in 3.2.4 näher beschrieben. Der größte Anteil des Laserlichts wird aber - nachdem er einen Isolator passiert hat - in eine Faser eingekoppelt, die zur Vakuumkammer führt. Der Isolator ist notwendig, um Rückreflexe des Ti:Sa-Lasers zu verhindern, die zu Frequenzinstabilitäten führen würden.

3.2.2 Strahlengang in der Vakuumkammer

Nachdem der Strahl aus der optischen Faser ausgekoppelt ist, wird er in die Vakuumkammer geleitet. Ziel des Strahlengangs ist es, den Photoassoziationslaser möglichst gut mit der Atomwolke zu überlagern und am Ort der Falle hohe Intensitäten zu erhalten. Der Photoassoziationslaser und der Fallenlaser schneiden sich im Kammerzentrum in einem Winkel von etwa $22,5^\circ$. Um hohe Intensitäten zu erhalten, wird der Strahl auf die Fallenmitte fokussiert.

In Abbildung 3.3 ist der genaue Verlauf zu sehen. Zuerst durchläuft der Strahl ein Teleskop, dessen Brennweiten ein Verhältnis 1 (Linse L1) zu 3 (Linse L2) besitzen, um den Strahl aufzuweiten. Danach wird er von einer weiteren Linse (L3, Brennweite 20 cm), die möglichst dicht vor der Kammer steht (1,3 cm Entfernung), auf die Mitte der Kammer fokussiert. Die Länge der Kammer beträgt 38 cm. Nach Austritt aus der Kammer wird der Strahl nach ca. 1,5 cm durch eine Linse (L4, Brennweite 200 mm) geleitet und an einem

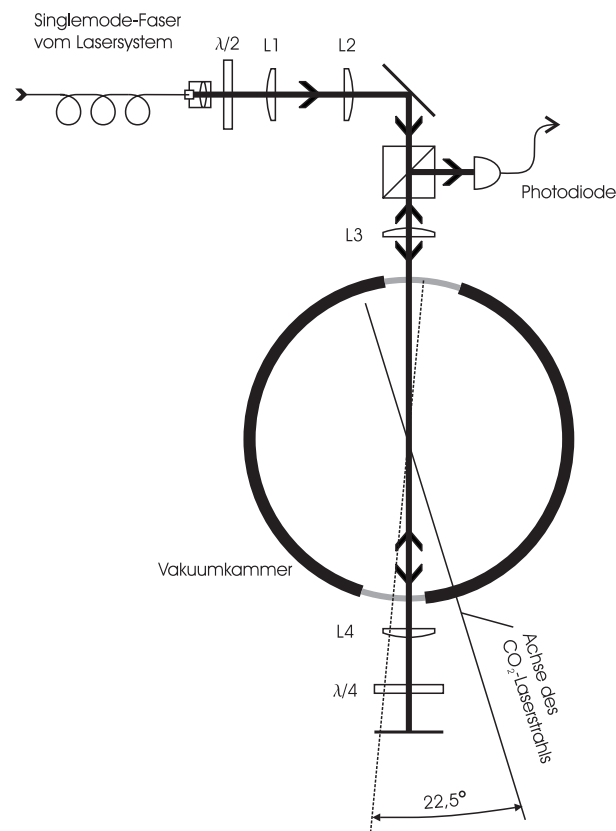


Abbildung 3.3: Strahlengang des Photoassoziationslasers durch die Vakuummkammer. Der Winkel zwischen den Achsen der jeweiligen Fensterpaare von Fallenlaser und Photoassoziationslaser beträgt $22,5^\circ$. Da der Photoassoziationslaserstrahl das Fenster jedoch nicht mittig trifft, entspricht dies nur in etwa dem Winkel zwischen beiden Strahlen.

Spiegel im Abstand von 20 cm retroreflektiert. L4 steht hinter der Kammer, damit der Strahl genau in sich zurückreflektiert wird. Ein zusätzliches $\lambda/4$ -Plättchen zwischen Spiegel und Linse L4 dreht den zurückreflektierten Strahl um 90° . Der rückreflektierte Strahl wird durch den Polarisationsstrahlteiler geführt und dann auf eine Photodiode gespiegelt. Mit Hilfe der Photodiode wird die Leistung des Titan-Saphir-Lasers überwacht.

Mit Hilfe einer Klinge wurde die Strahltaile am Ort der Kammermitte auf $16,5 \mu\text{m}$ bestimmt. Da die Position der Atomwolke nicht unbedingt mit der Fallenmitte übereinstimmt, besitzt diese Messung einen großen Fehler. Bei einer angenommenen Ungenauigkeit der Position der Atomwolke von 2 cm und einem sich mit Hilfe gaußscher Strahlenoptik ergebenden Rayleighlänge von 3,9 mm ergibt sich eine Ungenauigkeit für die Strahltaile von $160 \mu\text{m}$. Aus

diesem Grund wird im übernächsten Unterkapitel eine Messung präsentiert mit deren Hilfe die Strahltaile genauer bestimmt werden kann.

3.2.3 Bestimmung der Strahltaile des Titan-Saphir-Lasersystems

Der Photoassoziationslaser wirkt auf die Atome aufgrund seiner hohen Leistung und seiner Rotverstimmung von der atomaren Resonanz wie eine Dipolfalle. Dies wird hier in zweierlei Hinsicht ausgenutzt. Zum einen kann die Überlagerung der Dipolfalle des CO₂-Lasers mit dem Strahl des Ti:Sa-Laser durch Aufnahme von Absorptionsbildern optimiert werden. Dies ist wichtig, um möglichst hohe Photoassoziationsraten zu erhalten. Zum anderen kann die Strahltaile des Ti:Sa-Lasers bestimmt werden, indem die Anpassung einer die Verteilung beschreibenden Gleichung an ein aufgenommenes Bild der Atomverteilung erfolgt.

Da die Frequenz des Ti:Sa-Lasers relativ nah an der atomaren Resonanzfrequenz ist, d.h. $|\Delta| \ll \omega_0$, gilt Gleichung 2.12 für das Fallenpotential des Ti:Sa-Lasers. Die Intensität des Ti:Sa-Strahls wird in guter Näherung durch die eines Gauß-Strahls (siehe Kapitel 2.2.4) beschrieben: Unter der Annahme, dass der Fokus des Strahls zumindest in der Nähe der Fallenmitte ist, gilt $z \ll z_r$. Wenn die thermische Energie der Teilchen klein gegen das Fallenpotential ist, sind die Teilchen räumlich stark gebunden, d.h. die radiale Ausdehnung ist klein gegen die Strahltaile: $r \ll w_0$. Die Atome spüren dann den anharmonischen Anteil des Potentials nicht mehr, und das Potential ist durch

$$U_{dip}(\mathbf{r}) = -U_0 \left(1 - \frac{2r^2}{\omega_0^2} - \frac{z^2}{z_r^2} \right) \quad (3.10)$$

gegeben, wobei U_0 die Potentialtiefe ist:

$$U_0 = \frac{3c^2 P \Gamma}{w_0^2 \omega_0^3 \Delta} \quad (3.11)$$

Hier ist Γ die Linienbreite, ω_0 die Resonanzfrequenz, Δ die Verstimmung des Ti:Sa-Lasers von der Resonanz und P die Laserleistung. w_0 ist die gesuchte Taille. Die Dichteverteilung der Atomwolke lässt sich durch eine Gaußfunktion anpassen:

$$n(\mathbf{r})_{\text{Fit}} = n_0 \exp \left(-\frac{r^2}{2\sigma_r^2} - \frac{z^2}{2\sigma_z^2} \right) \quad (3.12)$$

Die Breiten σ_r und σ_z der Atomwolke werden so mit Hilfe der Anpassung bestimmt. Durch Gleichsetzen dieser Dichteverteilung mit einer aus dem Potential der Gleichung 3.10 bestimmten Dichteverteilung erhält man die Ab-

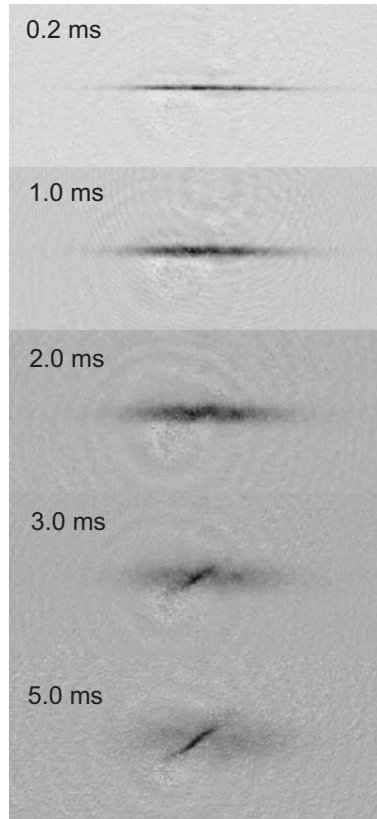


Abbildung 3.4: Absorptionsbilder der expandierenden Cäsiumwolke.

hängigkeit der Breiten von der Temperatur, der Potentialtiefe und der Taille des Laserstrahls. Schließlich kann man so den Strahldurchmesser bestimmen:

$$w_0^4 = \frac{12\sigma_r^2 c^2 P \Gamma}{kT \omega_0^3 \Delta} \quad (3.13)$$

Um die Absorptionsbilder aufzunehmen, sind anfänglich CO₂-Laser und Ti:Sa-Laser angeschaltet. Ca. 4 ms vor Aufnahme eines Absorptionsbildes wird der CO₂-Laser ausgeschaltet, um den sehr großen Stark-Shift (~ 40 MHz) des CO₂-Lasers zu vermeiden. Außerdem wird durch die Expansion der in durch den CO₂-Laser gefangenen Atomwolke vermieden, dass das Abbildungssystem an seine Auflösungsgrenze ($\sim 10 \mu\text{m}$) stößt. Im Gegensatz zum CO₂-Laser kann man auch bei eingeschaltetem Ti:Sa-Laser die Atomverteilung noch sinnvoll durch Absorptionsbilder abbilden. Der AC-Stark-Shift in der QUEST ist nämlich sehr viel größer als der der Ti:Sa-Laser-Falle, wie folgende Abschätzung mit Hilfe von Gleichung 2.12 zeigt: Bei einer typischen Leistung von 170 mW und einem Strahlradius von $170 \mu\text{m}$ und einer hier

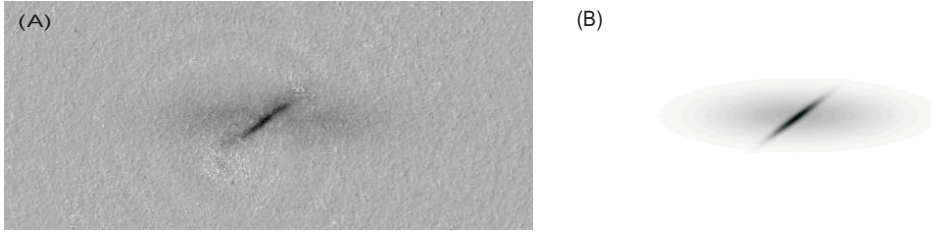


Abbildung 3.5: Absorptionsbild (A) und die entsprechende Doppel-Gauß-Anpassungsfunktion (B).

gewählten Verstimmung von der atomaren Resonanz von 400 GHz kann der AC-Stark-Shift zu 6 MHz abgeschätzt werden. In Abbildung 3.4 sieht man die Bilder der expandierende Atomwolke, die wie eben beschrieben gewonnen wurden.

Die Temperatur wird aus demselben Absorptionsbild gewonnen. Es erfolgt nämlich nicht nur eine Gauß-Funktions-Anpassung an die Dichteverteilung in der Ti:Sa-Laser-Falle, sondern zuerst wird der „Untergrund“, die expandierende Cäsiumwolke, ebenfalls durch eine Gauß-Funktion angepasst. Aus den Breiten der CO₂-Falle kann man nun bei bekannter Expansionszeit die Temperatur ermitteln. Dazu nutzt man den Zusammenhang zwischen Expansionszeit und Breite aus:

$$\sigma_{rad}^2 = \frac{k_B T}{m} \left(\frac{1}{\omega_{rad}^2} + t_{exp}^2 \right) \quad (3.14)$$

Auch hier geht wieder in die Gleichung ein, dass es sich näherungsweise um ein harmonisches Potential handelt, was bei hier gemessenen Temperaturen gut erfüllt ist. Die Temperatur wird hier auf 31 μK bestimmt. Qualitativ kann man das Verhalten der Breite, wie man es nach Gleichung 3.14 erwartet, auch in Abbildung 3.4 sehen. Die radiale Breite der Atomwolke scheint linear mit der Expansionszeit anzuwachsen. Die axiale Breite dagegen bleibt etwa konstant, weil der fallenfrequenzabhängige Term in Gleichung 3.14 gegenüber dem zeitabhängigen Term dominiert. Unter Fixierung der so gewonnenen CO₂-Fallen-Parameter wird in einem nächsten Schritt die gesamte Dichteverteilung durch das Produkt einer fixierten Gauß-Funktion für die CO₂-Falle und einer variablen Gaußfunktion („Doppel-Gauß-Anpassungsfunktion“) für die Ti:Sa-Laser-Falle angepasst. In Abbildung 3.5 sieht man ein Absorptionsbild (A) und dessen Doppel-Gauß-Anpassungsfunktion (B). Man sieht jeweils die schon recht stark expandierte Cäsiumwolke und prominent die vom Ti:Sa-Laserstrahl gefangenen Atome. Die Anpassungsfunktion scheint

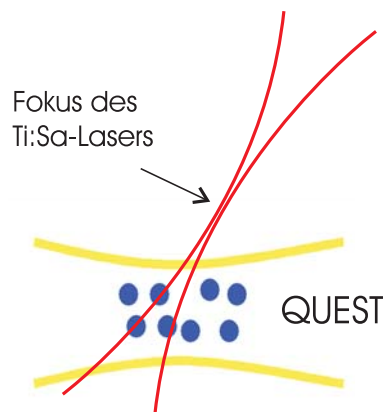


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung des Überlapps der Dipolfalle mit dem Photoassoziationslaser. Der Fokus des Photoassoziationslasers liegt außerhalb der Dipolfalle.

die gemessene Dichteverteilung gut zu beschreiben.

Experimentell konnte auf diese Weise keine Strahltaile, sondern nur ein Durchmesser am Ort des Fallenmittelpunkts bestimmt werden, da Fallenmittelpunkt und Fokus ungefähr 1 cm auseinander liegen. In Abbildung 3.6 ist die Dipolfalle und der Photoassoziationslaser schematisch dargestellt. Am Ort der Atomwolke ist der Durchmesser des Photoassoziationslasers wesentlich größer als in seinem Fokus. Für den Fokus wurde für hin- und rücklaufenden Strahl ein effektiver Strahldurchmesser am Fallenmittelpunkt von $170 \pm 20 \mu\text{m}$ bestimmt.

3.2.4 Frequenzeichung des Titan-Saphir-Lasers

Während der Photoassoziationsmessungen wird der Photoassoziationslaser in seiner Frequenz durchgestimmt. Um während des Durchstimmens jeweils die Frequenz ermitteln zu können benötigt man ein Gerät zum Messen der Laserfrequenz. Zur absoluten Bestimmung der Laserfrequenz des Photoassoziations-Lasers dient ein Wavemeter der Firma Burleigh Instruments (Modell WA-1000), welches die absolute Frequenz auf $\pm 500 \text{ MHz}$ genau bestimmt. Da im weiteren aber eine Genauigkeit von wenigen MHz für relative Frequenzmessungen benötigt wird, wurde zusätzlich ein Fabry-Perot-Etalon aufgebaut, das zur relativen Frequenzeichung dient.

Relative Frequenzeichung Unter den möglichen Resonatoranordnungen wurde die des konfokalen Resonators gewählt. Um eine möglichst hohe Fre-

quenzstabilität des Resonators zu erreichen, ist er auf einen Cs-Diodenlaser ($\lambda \cong 852 \text{ nm}$) stabilisiert. Dazu ist zusätzlich zu einem vom Ti:Sa-Laser abgezwigten Strahl, der der Frequenzzeichnung des Ti:Sa-Laser dient, der Cs-Dioden-Laserstrahl in den Resonator eingekoppelt. Die Polarisierungen sind beim Einkoppeln in den Resonator senkrecht zueinander gewählt, wodurch die Strahlen hinter dem Resonator wieder mit Hilfe eines Polarisationsstrahlteilers voneinander getrennt werden und jeweils eine Photodiode die transmittierte Intensität detektieren kann. Der Strahlengang für das Fabry-Perot-Etalon ist in Abbildung 3.2 im rechten Teil dargestellt.

Die Flanke einer Cs-Dioden-Laser-Mode dient als Fehlersignal für eine Regelschaltung mit der die Länge des Resonators über das in den Resonator eingebaute Piezoelement geregelt wird. Die Frequenzstabilität der Cs-Diode, die sich auf die des Resonators überträgt, ist ungefähr 5 MHz.

Der verwendete Resonator besteht aus Quarzglas. Dieses nicht kristalline, farblose Glas besitzt einen sehr niedrigen thermischen Ausdehnungskoeffizienten. Daher konnte hier auf eine mögliche aktive Temperaturstabilisierung des Resonators zur zusätzlichen Frequenzstabilisierung verzichtet werden.

Um eine sehr gute relative Frequenzzeichnung zu erhalten, wird der Spektralbereich von hier $\Delta_\nu = 500 \pm 6 \text{ MHz}$ weiter unterteilt. Mit Hilfe eines AOMs (Akusto-optischen-Modulator; Chrystal Technologies Modell 3080-120) ist der freie Spektralbereich hier gedrittelt. Der AOM ist hierzu in den Strahlengang des Ti:Sa-Laserstrahls eingebaut und an ihn wird ein RF-Signal von $500/6 \text{ MHz} = 83.3 \text{ MHz}$ angelegt. Wie man in Abbildung 3.2 sieht, geht der Strahl zweimal durch den AOM und wird beim zweiten mal in sich zurückreflektiert. Über Blenden, Linsen und eine optimale Justage ist der Strahlengang des AOMs so aufgebaut, daß zum einen ein Teil des Strahls ohne Modulation durch ein RF-Signal den AOM passiert (also jeweils in nullter Ordnung). Ein anderer Teil des Strahls stellt im Hinstrahl die erste (minus erste) Ordnung dar und geht im Rückstrahl in erster (minus erster) der ersten Ordnung (minus erster) des Hinstrahls durch den AOM. Diese Strahlen unterscheiden sich vom ursprünglichen in der Frequenz um $\pm 500/3 \text{ MHz} = \pm 166.6 \text{ MHz}$, wodurch der freie Spektralbereich gedrittelt wurde.

Ein weiterer Aufbau zur Frequenzzeichnung, der in einer früheren Phase des Experiments genutzt wurde, wird im Anhang A beschrieben.

3.3 Photoassoziationsinduzierte Verlustprozesse

In diesem Abschnitt der Arbeit wird die Fallendynamik in der Dipolfalle bei Photoassoziation untersucht. Zuerst wird der Photoassoziationszyklus in der Dipolfalle beschrieben. Danach wird ein erstes Photoassoziationsspektrum präsentiert. Ein Model zur Fallendynamik wird aufgestellt und an Hand der aufgenommenen Daten überprüft.

3.3.1 Photoassoziationsmesszyklus

Das Laden der Cäsiumatome in die QUEST erfolgt wie in Kapitel 2 beschrieben. In Abbildung 3.7 ist der gesamte Photoassoziationszyklus einschließlich des Ladens der QUEST zu sehen. Nach dem Laden in die Dipolfalle wird der Photoassoziationlaser eingestrahlt, wobei die Dauer des Pulses zwischen wenigen Millisekunden und einigen Sekunden variiert werden kann. Um hyperfeinändernde Stöße zu verhindern (siehe Kapitel 3.1.2) und die Atome im $6^2s_{1/2}$ $F=3$ -Zustand zu präparieren, strahlt man einen Laser auf dem $F = 4 \rightarrow F' = 4$ Übergang ein. Nach dem Ende der Photoassoziationsphase und dem Ausschalten der Dipolfalle werden durch Wiedereinschalten der MOT-Laser und des MOT-Magnetfeldes die verbliebenen Atome in der MOT gefangen. Die Aufnahme eines Fluoreszenzbildes ermöglicht die Bestimmung der Teilchenzahl. Wahlweise werden aber auch direkt nach dem Ausschalten der Dipolfalle Absorptionsbilder aufgenommen, durch die dann Teilchenzahl, Temperatur und Dichte bestimmt werden können. Jeder dieser Zyklen liefert genau eine Teilchenzahl (Fluoreszenzbilder) bzw. Teilchenzahl, Dichte und Temperatur (Absorptionsbilder). Für die Aufnahme weiterer Messpunkte, eventuell bei anderen Verstimmungen oder Dauern, ist jeweils ein neuer Zyklus nötig. Die Dauer eines gesamten Zyklus beträgt je nach Photoassoziationsdauer 2-10 Sekunden.

Die Frequenz des Ti:Sa-Lasers wird bei einem Teil der Messungen durchgestimmt und zwar typischerweise über einen Bereich von 5 GHz. Das Durchstimmen erfolgt dabei über eine externe Ansteuerung des Titan-Saphir-Lasers durch den Experimentsteuerungscomputer. Dabei wird an ein Piezoelement des temperaturstabilisierten Referenz-Resonators des Titansaphirlasers eine Spannung angelegt. Dieses Piezoelement stellt über die Position einer der Referenz-Resonator-Spiegel die Länge des Referenz-Resonators ein und damit auch die Frequenz des Titansaphirlasers. In Schritten von wenigen mV erfolgt dabei ein Durchstimmen des Lasers in Schritten von typischerweise 5 MHz. In einem anderen Teil der Messungen wird der Ti:Sa-Laser nicht durchge-

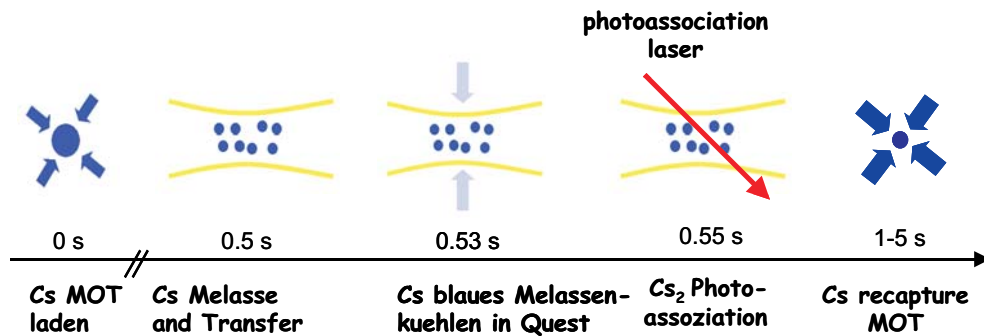


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung des gesamten Photoassoziationszyklus.

stimmt, sondern möglichst auf einer Frequenz gehalten. Dies geschieht durch externes Ansteuern des Referenz-Resonators mit einer konstanten Spannung, wobei die Frequenzstabilität bei mindestens 5 MHz liegt.

3.3.2 Fallendynamik

Motivation Im Kapitel 4.8 werden Intensitätsuntersuchungen am $v=6$ Vibrationszustand des äußeren Potentialtopfs des 0_g^- -Zustands an der $6s6p_{3/2}$ -Asymptote durchgeführt. Untersucht wird die Intensitätsabhängigkeit des Ratenkoeffizienten.

In Abbildung 3.8 ist die Substruktur dieses Zustands dargestellt. Jeder Datenpunkt ist durch den oben beschriebenen Messzyklus entstanden. Der Photoassoziationslaser wurde wie oben beschrieben durch externes Ansteuern durchgestimmt.

Man erkennt die Rotationslinien, die bis zur Rotationsquantenzahl $J=4$ vorhanden sind. Auffallend ist, daß die Falle bis zu einem Niveau von ungefähr 30% entleert wird. Dies ist erstaunlich, wenn man bedenkt, daß bei einem so tiefen Vibrationsniveau die Kernabstände am Franck-Condon-Punkt sehr klein sind. Man kann nur aufgrund der hohen Dichte in der Dipolfalle dieses Vibrationsniveau noch über Fallenverluste nachweisen. Aufgrund des hohen Fallenverlusts ist aber klar, dass man, um einen Photoassoziationsratenkoeffizienten angeben zu können, die zeitliche Entwicklung von Teilchenzahl, Dichte und Temperatur kennen muss. Das Verständnis der Fallendynamik der Dipolfalle bei Photoassoziation ist damit grundlegend für weitere Photoassoziationsuntersuchungen. Deswegen wird jetzt ein Modell zur Fallendynamik präsentiert. Insbesondere soll eine verlässliche Methode entwickelt werden mit deren Hilfe schon aus der Teilchenzahl und der Photoassoziationsdauer ein Ratenkoeffizient bestimmt werden kann. In Kapitel 4.8 werden

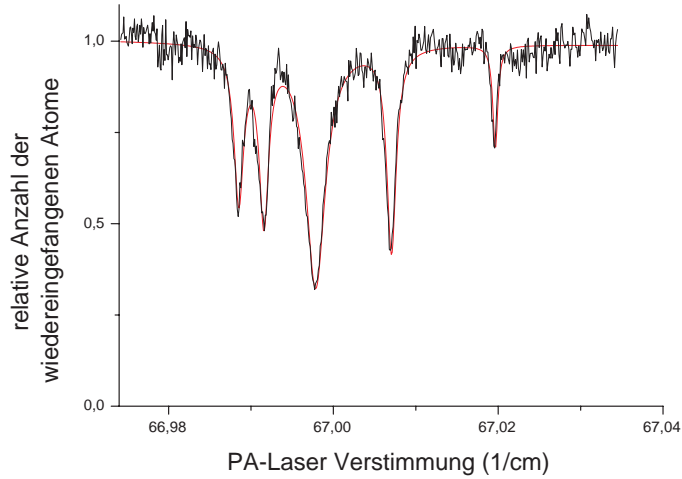


Abbildung 3.8: Rotationsstruktur des $v=6$ Vibrationszustand des äußeren Potentialtopfs des 0_g^- -Zustands an der $6s6p_{3/2}$ -Asymptote. Die Form einer Rotationslinie ist nach Gleichung 3.9 lorentzförmig. Aus diesem Grund wird an die Photoassoziationsspektren die Summe einer Untergrundfunktion und fünf Lorentzfunktionen angepasst. Die Untergrundfunktion ist die einer Geraden mit anzupassender Steigung und berücksichtigt langfristige zeitliche Schwankungen des Fallensignals in Abwesenheit eines Photoassoziationslasers.

nämlich nur Fluoreszenzmessungen präsentiert, die den Vorzug haben, daß sie rauschärmer als die Absorptionmessungen sind.

Modell Der Zweikörper-Photoassoziationsprozess ändert die Dichte in der Falle lokal nach [McK02] wie:

$$\dot{n}(t, \mathbf{r}) = -2G(I, \omega, T)n^2(t, \mathbf{r}) \quad (3.15)$$

Hierbei ist G der von der Frequenz, Intensität und Temperatur abhängige Ratenkoeffizient. Der Faktor zwei berücksichtigt hier, dass es sich um einen Einteilchenratenkoeffizienten handelt. Würde man die Atome zweier verschiedener Atomsorten photoassoziiieren, würden sich die Dichten jeweils wie folgt entwickeln:

$$\dot{n}_1 = \dot{n}_2 = -Gn_1n_2 \quad (3.16)$$

Da es sich im Falle der hier durchgeführten Photoassoziationsuntersuchungen nur um eine Atomsorte handelt, können die beiden Ratengleichung zu einer

addiert werden, die dann durch

$$\dot{n} = -2Gn^2 \quad (3.17)$$

gegeben ist. Integriert man über das Volumen, erhält man eine Ratengleichung für die Teilchenzahl:

$$\dot{N}(t) = \frac{-2G(I, \omega, T)N^2(t)}{V(T)} \quad (3.18)$$

Hier ist $V = V_0 T^{3/2}$ das temperaturabhängige effektive Volumen. In $V_0 = (\frac{4\pi k_B}{m})^{3/2} \frac{1}{\omega_r^2 \omega_{ax}}$ ist k_B ist der Boltzmannfaktor, ω die axiale bzw. radiale Fallenfrequenzen und m die Atommasse. In die explizite Berechnung des Volumens geht insbesondere die Annahme eines harmonischen Potentials ein [Mudb]. Im Weiteren ist vor allem dessen Temperaturabhängigkeit interessant, weil die Atomwolke sich mit zunehmender Photoassoziationdauer aufheizt und damit expandiert.

Wenn man in diesem Zusammenhang von Temperaturen spricht, sollte man eigentlich besser vom Quadrat der Breiten sprechen. Denn die axiale Temperatur wird über die axiale Breite der Atomwolke gemessen. Die radiale Temperatur wird analog zu Kapitel 3.2.3 über die ballistische Expansion der Atomwolke nach dem Ausschalten des CO_2 -Lasers bestimmt. Da es sich bei dem betrachteten System nicht zwingend um ein System im thermischen Gleichgewicht handelt, wird hier nicht mehr von Temperaturen gesprochen, sondern von effektiven Temperaturen.

Die Abhängigkeit des Ratenkoeffizienten von der Temperatur ist aber aus Gleichung 3.6 bekannt. Der thermisch gemittelte Ratenkoeffizient ist nämlich:

$$G = \left\langle \frac{\pi v}{k^2 p} \right\rangle \quad (3.19)$$

Hier ist v die Relativgeschwindigkeit, k der Wellenvektor der Relativgeschwindigkeit und p die Streuwahrscheinlichkeit. Führt man diese Mittelung unter Annahme einer thermischen Verteilung explizit durch, so erhält man

$$G = G_0 T^{-\nu} \quad (3.20)$$

Hier sind $G_0 = \frac{p}{2} \hbar^2 (\frac{\pi}{k_b m^3})^{1/2}$ und $\nu = 1/2$. Da die Temperaturabhängigkeit sowohl für den Ratenkoeffizienten als auch für das effektive Volumen bekannt sind, lässt sich Gleichung 3.18 jetzt schreiben als:

$$\dot{N}(t, \mathbf{r}) = \frac{-2G_0}{V_0} T^{-2} N^2 \quad (3.21)$$

Für den Zusammenhang zwischen Temperatur und Teilchenzahl macht man folgenden Ansatz:

$$T = T_0 \left(\frac{N}{N_0} \right)^{q-1} \quad (3.22)$$

Der Parameter q wird hier als rein phänomenologischer Parameter aufgefasst. Gleichung 3.22 lässt sich aus einem einfachen Stoßmodell ableiten, welches thermodynamisches Gleichgewicht voraussetzt [Muda]. Bei dem vorliegenden System handelt es sich aber nicht zwingend um ein System im thermodynamischen Gleichgewicht.

Durch Einsetzen des Zusammenhangs 3.22 in die Ratengleichung für die Teilchenzahl kann die Abhängigkeit von der effektiven Temperatur eliminiert werden. Man erhält:

$$\dot{N} = A'_N N^{x_N} \quad (3.23)$$

Diese Ratengleichung wird sowohl für die Teilchenzahl als auch unter Ausnutzung von 3.22 für die effektive Temperatur gelöst. Es ergibt sich:

$$N(t) = N_0(1 + A_N t)^{q_N} \quad (3.24)$$

$$T_{\text{eff}}(t) = T_0(1 + A_T t)^{q_T} \quad (3.25)$$

wobei N_0 und T_0 Anfangstemperatur und Anfangsteilchenzahl sind. q_N beziehungsweise q_T stehen mit dem oben beschriebenen q über $q_N = \frac{1}{2q-3}$ und $q_T = \frac{q-1}{2q-3}$ in Beziehung. Aus A erhält man den gesuchten Ratenkoeffizienten G_0 :

$$A_T = A_N = 2(3 - 2q) \frac{G_0}{V_0} N_0 T_0^{-2} \quad (3.26)$$

Analyseprozedur Um die Teilchenzahlen und die effektiven Temperaturen durch die oben angegebene Funktionen anzupassen, wählt man das jetzt folgende Verfahren. Zunächst wird der für die Anpassungsfunktion benötigte q -Parameter bestimmt. Da für die effektiven Temperaturen und die Teilchenzahlen der Zusammenhang 3.22 angenommen wird, wird aus der Steigung einer Teilchenzahl- effektiven Temperatur-Darstellung der q -Parameter bestimmt. Schließlich werden die Fallendynamikuntersuchungen angepasst und Ratenkoeffizienten bestimmt. Zum Schluss werden die Ratenkoeffizienten verglichen und damit die Güte des Verfahrens bestimmt.

In Abbildung 3.9 ist der Zusammenhang zwischen Teilchenzahl und effektiver Temperatur doppellogarithmisch dargestellt. Die Daten wurden durch Photoassoziation am $v=20$ -Vibrationszustand des äußeren Potentialtopfs des 0_g^- -Zustands aufgenommen. Die Frequenz des Photoassoziationslasers ist so

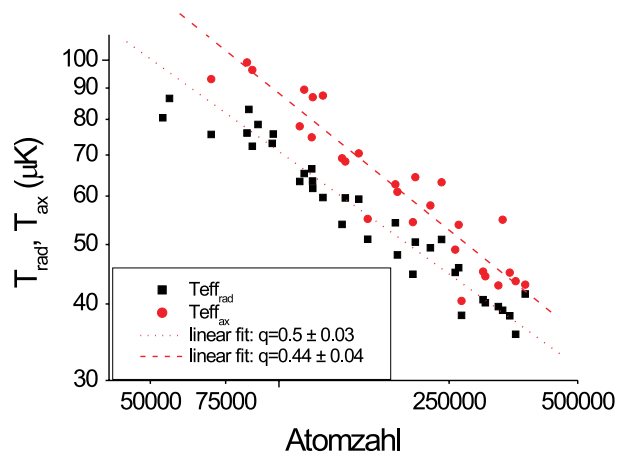


Abbildung 3.9: Darstellung der effektiven Temperaturen über den Atomzahlen in einer log-log-Skala. Aus der Steigung der effektiven Temperaturen wird der q -Parameter bestimmt.

stabilisiert, dass maximale Fallenentleerung der $j=2$ Rotationslinie erreicht wird. Aus der Steigung der effektiven Temperatur wird der q -Parameter bestimmt. Wie man in Abbildung 3.9 sieht, werden die effektiven Temperaturen in doppel-logarithmischer Darstellung gut durch Geraden beschrieben, was in Übereinstimmung mit der in Gleichung 3.22 gemachten Annahme ist. Die Geraden besitzen nahezu die gleiche Steigung (der sich ergebende q -Parameter ist $q_{rad} = 0.5$ und $q_{ax} = 0.44$). Sie sind allerdings gegeneinander verschoben. Die Ursache hierfür ist vermutlich, dass zumindest bei hohen Raten (und damit in der Abbildung 3.9 geringen Teilchenzahlen) kein thermisches Gleichgewicht mehr vorherrscht. Ist der Photoassoziationslaser hingegen nicht eingeschaltet (d.h. bei in Abbildung 3.9 maximaler Teilchenzahl) ist der Unterschied in den Temperaturen vermutlich nur auf einen geringfügigen Unterschied in den Eichfaktoren der zur Berechnung verwendeten Gleichungen zurückzuführen.

Im nächsten Schritt wird mit Hilfe der Ratengleichung 3.25 der Temperatur und der Ratengleichung 3.24 der Teilchenzahl die Anpassung an die Daten durchgeführt. Angepasst werden A_T, A_N, T_0, N_0 .

Bei einer Leistung von 150 mW wurde beginnend im ms-Bereich bis zu 10 s photoassoziiert. Die Teilchenzahlabnahme und die effektiven Temperaturen werden mit Absorptionsspektren bestimmt. Die Absorptionsspektren in Abbildung 3.10 wurden unter unveränderten Bedingungen dreimal hintereinander durchgeführt. Aufgetragen sind die Mittelwerte über diese drei Messungen

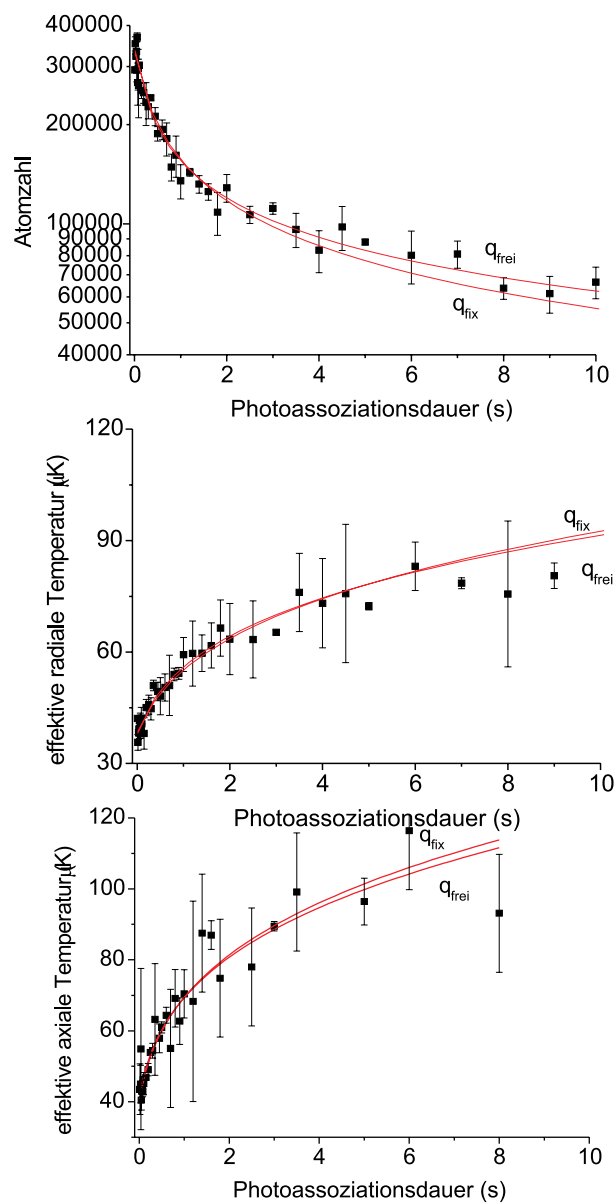


Abbildung 3.10: Fallendynamikuntersuchung des $v=20$ -Zustandes durch Photoassoziaton mit Hilfe von Absorptionsbildern. Eingezeichnet sind zudem die Anpassungsfunktionen. In der Darstellung der Teilchenzahl ist die obere Anpassungsfunktion jene mit freiem q -Parameter. In der Darstellung der effektiven Temperaturen ist es hingegen jeweils die untere.

und die entsprechenden statistischen Fehler. Die effektive Temperatur wurde sowohl aus den axialen Breiten als auch aus den radialen Breiten bestimmt.

Angepasst wurden an die Datensätze der effektiven Temperatur und die der Teilchenzahl sowohl mit freiem q -Wert als auch mit dem oben gewonnenen $q = 0.5$ (im Fall der variablen q -Werte ergaben sich folgende Werte: $q_N = 0.3$, $q_T^{ax} = 0.53$, $q_T^{rad} = 0.52$). Da bei hohen Teilchenzahlen der relative Fehler des Temperaturwertes geringer ist, erfolgte beim Anpassen eine Gewichtung mit der Teilchenzahl. Aus diesem Grund erfolgte für die Teilchenzahl eine Gewichtung mit dem statistischen Fehler. Im Rahmen des Rauschens der Messwerte werden die Daten gut durch die angepassten Funktionen beschrieben. Außer für große Zeiten ($t_{PA} > 5s$) scheint die Beschreibung mit festgehaltenem q -Wert nicht wesentlich schlechter zu sein als mit freiem. Auffallend ist dagegen, axiale und radiale Temperatur stimmen nicht überein. Mit der Zunahme der Photoassoziationsdauer unterscheiden sich effektive radiale und effektive axiale Temperatur immer mehr. Die radiale effektive Temperatur steigt bei 10 s Photoassoziationsdauer bis auf $90 \mu\text{K}$, während die axiale bis auf steigt $120 \mu\text{K}$. Man muss daraus schließen, wie bereits bei der Bestimmung des q -Parameters beschrieben, dass dann kein thermisches Gleichgewicht vorliegt.

Die aus den Anpassungen gewonnenen Ratenkoeffizienten sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst. Man sieht, dass die aus den Absorptionbildern bestimmten Ratenkoeffizienten mit Ausnahme des aus der axialen Temperatur bestimmten kaum voneinander abweichen. Dies trifft insbesondere auch auf den Vergleich zwischen festgehaltenem q und bei freiem q zu. Nur der aus der axialen effektiven Temperaturen gewonnene Ratenkoeffizient weicht deutlich ab. Weil die Falle in axialer Richtung flacher verläuft, sind die aus der entsprechenden Anpassungsfunktion bestimmten Werte vermutlich weniger verlässlich. Bei der Bestimmung des Ratenkoeffizienten aus der Teilchenzahl werden deswegen immer die radialen Breiten benutzt. Da aber eine Methode zur zuverlässigen Bestimmung des Ratenkoeffizienten aus den Fluoreszenzmessungen gewonnen werden soll, ist in Abbildung 3.11 eine Fallendynamikmessung, die auch am $v=20$ -Vibrationsniveau durchgeführt ist,

<i>Ratenkoeffizient</i>	q_{frei}	q_{fix}
GTrad	$1,20 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$	$1,18 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$
GTax	$2,32 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$	$2,70 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$
GNabs	$1,19 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$	$1,26 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$
GNfluo	$0,82 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$	$2,80 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^3/\text{s}$
GNfluoOFF	$0,68 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$	$0,63 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$

Tabelle 3.1: Zusammenstellung der aus Absorptionbildern und Fluoreszenzbildern bestimmten Ratenkoeffizienten.

präsentiert. Die Leistung beträgt auch in diesem Fall 150 mW. Aufgetragen ist der Datensatz einer Messung und nicht wie in Abbildung 3.10 der Mittelwert über drei Messungen. Das Rauschen ist sehr viel geringer. Dieser Datensatz ist zweimal dargestellt und zwar mit zwei unterschiedlichen Anpassungsmethoden. In der oberen Darstellung wird die Teilchenzahl nach Gleichung 3.24 angepasst. Während der Ratenkoeffizienten für den variabel gelassenen q -Parameter ($q_N = 0.11$) gut mit denen der Absorptionmessung

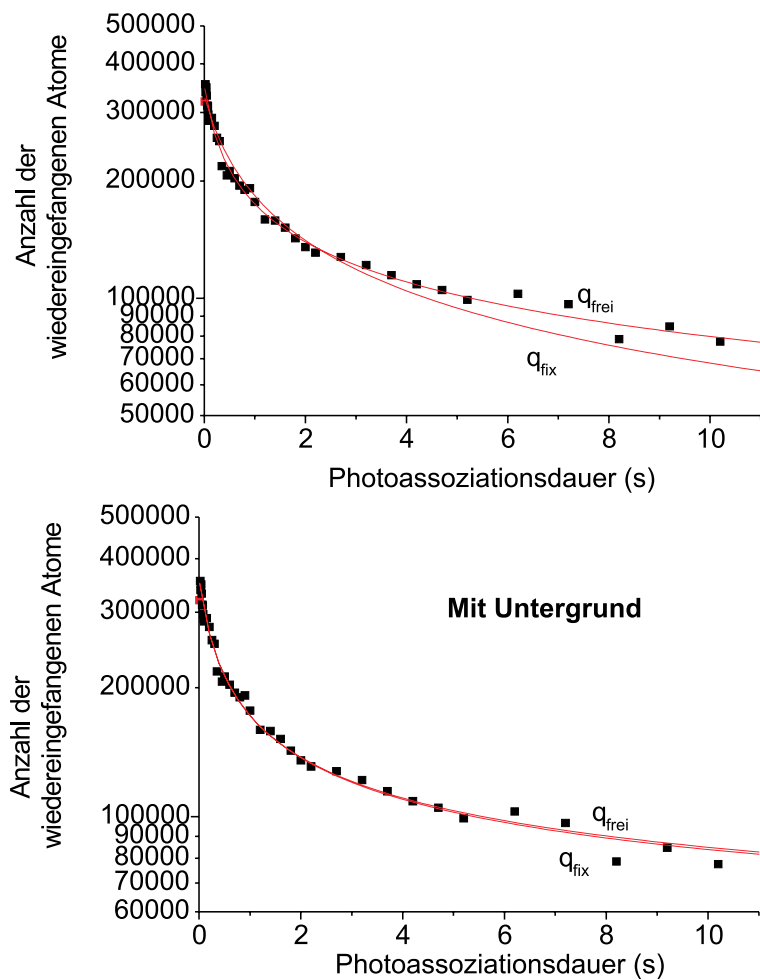


Abbildung 3.11: Darstellung der Fallendynamikmessungen mit Fluoreszenzbildern für das $v=20$ Vibrationsniveau. Dargestellt ist in der oberen Graphik die Anpassung an die Teilchenzahl. In der unteren Graphik wurde für denselben Datensatz in der Anpassung zusätzlich ein Untergrund zugelassen. Der daraus bestimmte Ratenkoeffizient stimmt besser mit den aus den Absorptionmessungen bestimmten Ratenkoeffizienten überein.

übereinstimmt, ist dies für den fixierten q -Parameter nicht der Fall (siehe Tabelle 3.1). Diese Abweichung könnte durch das Abziehen eines falschen Hintergrundbildes entstanden sein. Aus diesem Grund ist in der unteren Hälfte von Abbildung 3.11 für den gleichen Datensatz eine Anpassung mit einem zusätzlichen Untergrund durchgeführt. Bei einem Untergrund von ca. 10 % der Gesamtteilchenzahl stimmt jetzt sowohl für variablen q -Parameter ($q = 0.47$) als auch für fixierten q -Parameter der bestimmte Ratenkoeffizient gut mit denen aus der Absorptionsmessung überein. Da der von den Fluoreszenzbildern abzuziehende Untergrund aber von Messreihe zu Messreihe wechselt, kann diese eigentlich notwendige Korrektur bei der Bestimmung der Ratenkoeffizienten nicht durchgeführt werden.

Insgesamt wurde eine Methode entwickelt, mit der sich mit einer gewissen Genauigkeit aus den rauscharmen Fluoreszenzbildern ein Ratenkoeffizient bestimmen lässt.

3.3.3 Atom-Molekül-Stöße

Neben den photoassoziationsinduzierten Fallenverlusten selbst können auch Atom-Molekül-Stöße zu einem Fallenverlust führen. Aufgrund der freiwerdenden Vibrations- und Rotationsenergie sollte bei einer so geringen Fallentiefe wie in der hier eingesetzten Dipolfalle ($\sim 740 \mu\text{K}$) ein Atom-Molekül-Stoß sogar mit fast 100% Wahrscheinlichkeit zu einem Fallenverlust führen. Die Signatur für Atom-Molekülstöße wäre also ein schnellerer Verlust aus der Dipolfalle. Allerdings erwartet man nur einen schnelleren Verlust und keine prinzipiell andere Fallendynamik, wie folgende Überlegung zeigt. Erweitert man Gleichung 3.18 in einem einfachen Modell um Molekülstöße, so erhält man das folgende Gleichungssystem:

$$\dot{N} = -N(aN + bM) \quad (3.27)$$

$$\dot{M} = N(aN - bM) \quad (3.28)$$

Ist der Parameter b gleich Null, bleiben Atom-Molekül-Stöße unberücksichtigt. Im Vergleich zu Gleichung 3.18 wird das effektiven Volumen hier als konstant angenommen. In Abbildung 3.12 ist die numerische Lösung des Gleichungssystems dargestellt. Man sieht, dass Atom-Molekül-Stöße keine prinzipiell andere Fallendynamik aufweisen, sondern das nur ein schnellerer Fallenverlust erwartet wird. Die Teilchenzahl sollte also auch in Anwesenheit von Atom-Molekül-Stößen gut durch Gleichung 3.24 beschrieben werden. Der bestimmte Photoassoziationsratenkoeffizient sollte in Anwesenheit von Atom-Molekülstößen allerdings überschätzt werden.

Dies soll jetzt an Hand experimenteller Daten überprüft werden. Nach

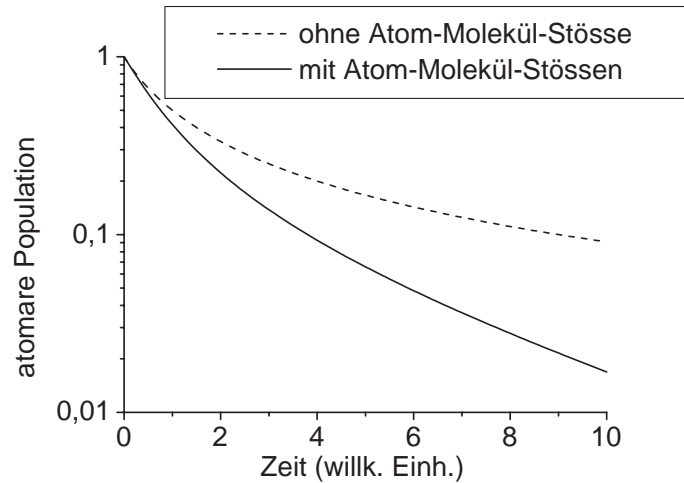


Abbildung 3.12: In Anwesenheit von Atom-Molekülstößen wird ein schnellerer Fallenverlust erwartet, wie ein einfaches Ratenmodell zeigt. Ein prinzipiell anderes Verhalten wird jedoch nicht erwartet.

[Dra00b] unterscheiden sich die Molekülbildungsraten für Photoassoziation am $v=1$ - bis $v=10$ -Vibrationszustand des äußeren Potentialtopfs des 0_g^- -Zustands an der $6s6p_{3/2}$ -Asymptote signifikant von denen höherer Vibrationszustände. Während zum Beispiel für den $v=6$ -Vibrationszustand eine Molekülbildungsrate von 0,8 Molekülen pro angeregtem Atompaar vorausgesagt wird, sind es beim $v=20$ nur 0,2. In Abbildung 3.13 sind Fallendynamikmessungen für beide Vibrationsniveaus dargestellt. Im Rahmen des Rauschens könnte man eine schnellere Entleerung des $v=6$ Vibrationsniveaus feststellen. Die prinzipielle Fallenverlustdynamik unterscheidet sich jedoch nicht von der des $v=20$ Vibrationsniveaus. Der möglicherweise schnellere Verlust kann auf Atom-Molekül-Stöße zurückgeführt werden, er kann seine Ursache aber auch in einem grösseren Franck-Condon-Faktor haben. Sollte er auf Atom-Molekül-Stöße zurückzuführen sein, werden die Ratenkoeffizienten im nächsten Kapitel tendenziell überschätzt.

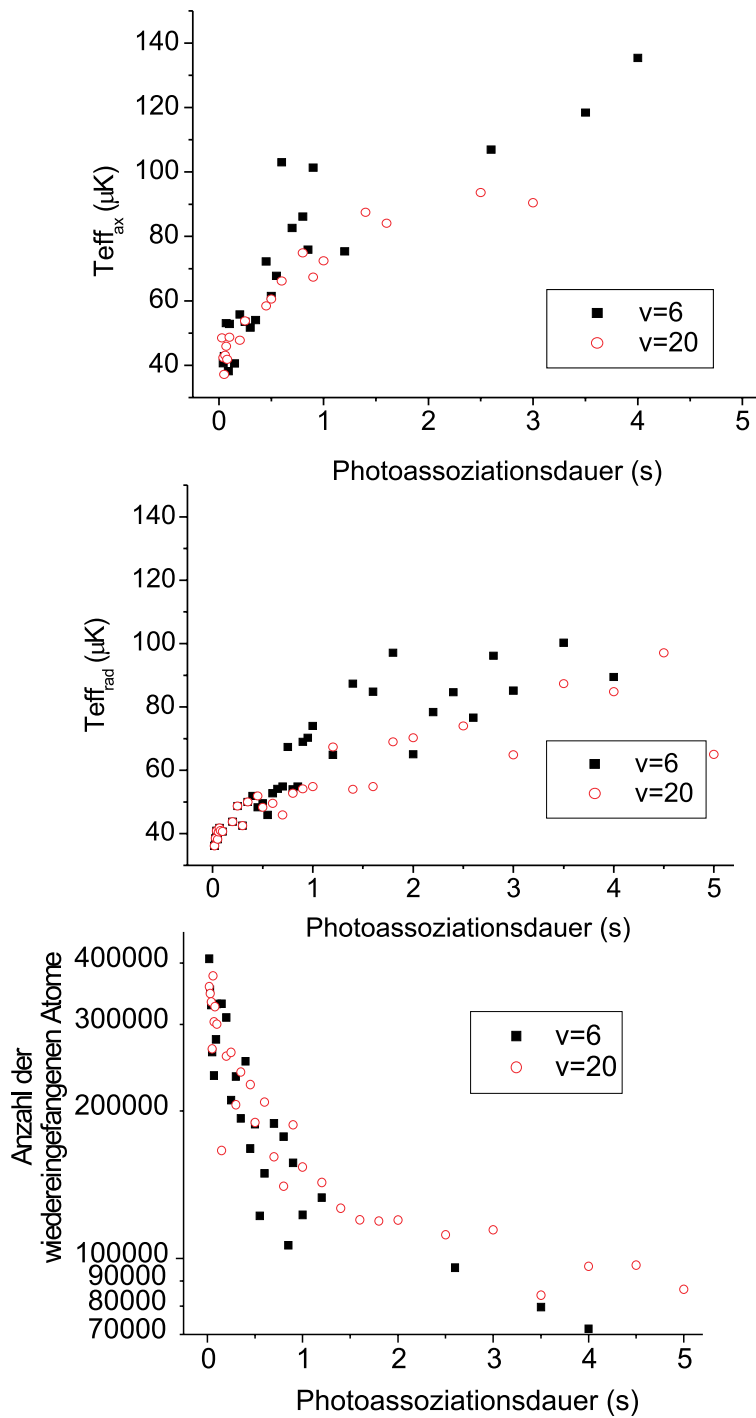


Abbildung 3.13: Vergleich der Fallenverlustdynamik des $v = 6$ und des $v = 20$ Vibrationszustandes. Die möglicherweise schnellere Entleerung der Falle für das $v = 6$ -Vibrationsniveau kann neben Atom-Molekül-Stößen auch durch höhere Anregungsraten verursacht sein.

Kapitel 4

Intensitätseffekte

Wie in Kapitel 3.1.1 bereits beschrieben, stellt die Photoassoziationsspektroskopie eine ausgezeichnete experimentelle Methode zum Verständnis der quantenmechanischen Streuung zwischen ultrakalten Alkaliatomen dar. Zur Evaluation der im Experiment gewonnenen Daten ist der Zusammenhang zwischen Fallenverlust oder einer anderen experimentellen Nachweismethode und der tatsächlichen Stärke eines Übergangs nötig. Für niedrige Intensitäten wird in der Literatur ein linearer Zusammenhang angenommen [Pil97]. Die Linienform einer isolierten Photoassoziationsresonanz wird in diesem Regime gut durch eine einfache Lorentz-Kurve beschrieben. Im Falle hoher Intensitäten kann kein störungstheoretisches Modell mehr benutzt werden, und die Resonanzen weisen laserinduzierte Verbreiterungen und Linienverschiebungen auf [Sim02]. Die Rate hängt für sehr große Intensitäten nicht mehr linear von der Intensität ab.

Die Untersuchung der Photoassoziation im Regime hoher Intensitäten ist in mehrerer Hinsicht interessant. Zum einen besteht die Möglichkeit, dass man im Regime maximaler Anregungsraten den Kontinuumszustand eines freien Atompaares kohärent an einen gebundenen Molekülzustand koppeln kann. Zum anderen liefert sie Erkenntnisse über die Abhängigkeit der induzierten Verbreiterung und der Lichtverschiebung von der Intensität und damit der Molekül-Lichtfeld-Wechselwirkung. Mit den so gewonnenen Erkenntnissen lassen sich Streumodelle überprüfen. Zudem werden Informationen über die Potentiale gewonnen, die mit denen bei niedrigen Intensitäten verglichen werden können. Intensitätsuntersuchungen wurden bisher unter anderem für Na [McK02] $^6\text{Li}^7\text{Li}$ [Sch01, Sch02] und Cs [Dra00a] durchgeführt.

In diesem Kapitel wird die Intensitätsabhängigkeit der Streuwahrscheinlichkeit am Vibrationsniveau $v=6$ des 0_g^- -Zustands an der $6s6p_{3/2}$ -Asymptote untersucht. Dazu wird zunächst die in Kapitel 3 dargestellte Theorie erweitert. Im Anschluß daran werden die Datenaufnahme und das Verfahren

zur Gewinnung der Streuwahrscheinlichkeit beschrieben. Die Lichtverschiebung und die Linienverbreiterung werden in Abhängigkeit der Intensität bestimmt. Schließlich wird die Streuwahrscheinlichkeit im Regime hoher Intensitäten untersucht und eine Sättigungsintensität bestimmt.

4.1 Ratenkoeffizient

Zur Bestimmung der Übergangsstärke einer Photoassoziationsresonanz dient der maximale Photoassoziationsratenkoeffizient. Der Ratenkoeffizient in Gleichung 3.9 wird gerade dann maximal, wenn die Verstimmung gleich der Differenz aus gesamter Lichtverschiebung und Streuenergie ist, d.h. wenn der Photoassoziationslaser resonant ist. Dann gilt: $E - \Delta - \delta_l^E = 0$, und es folgt für den Ratenkoeffizienten:

$$G_{\max} = \left\langle \frac{\pi\nu}{k^2} \right\rangle \frac{\gamma\Gamma_{\text{eff}}^E}{\frac{1}{4}(\gamma + \Gamma_{\text{eff}}^E)^2} \quad (4.1)$$

Bei gegebener Intensität und Temperatur ist der maximale Ratenkoeffizient dann nur noch durch die spontane Zerfallsrate und die induzierte Breite gegeben.

Die Abhängigkeit der maximalen Rate von der Intensität kann wie folgt hergeleitet werden. Das Quadrat des Atom-Lichtfeld-Wechselwirkungselements (siehe Gleichung 3.3), welches in die induzierte Breite eingeht, hängt linear von der Intensität ab.

Die Sättigungsintensität ist in der Theorie eines Übergangs zwischen zwei gebundenen Niveaus definiert, und zwar für den Fall, dass die induzierte Rate gerade der spontanen Zerfallsrate entspricht. Auch für die Photoassoziation lässt sich ein Sättigungsparameter als Verhältnis aus induzierter Rate und spontaner Rate definieren. Dies entspricht dem Verhältnis aus Intensität und der so definierten Sättigungsintensität. Allerdings ist die Sättigungsintensität hier von der Streuenergie abhängig, da auch die induzierte Rate streuenergieabhängig ist.

Mit Hilfe des Sättigungsparameters $\frac{\Gamma}{\gamma} = \frac{I}{I_{\text{sat}}}$ kann man schließlich den Photoassoziationsratenkoeffizienten in Abhängigkeit der Sättigungsintensität angeben:

$$G_{\max} = \frac{\pi\nu}{k^2} \frac{1}{\frac{1}{2} + \frac{I_{\text{Sättigung,eff}}}{4I} + \frac{I}{4I_{\text{Sättigung,eff}}}} \quad (4.2)$$

Unitäres Limit

Der Photoassoziationsprozess selbst stellt einen inelastischen Stoßprozess dar. Zu inelastischen Stoßprozessen existieren immer auch elastische Stoßkanäle. Dies geht aus den Querschnitten für die beiden Stoßprozesse im Bild der Quantenstreutheorie hervor:

$$\begin{aligned}\sigma_{\text{el}}^l &= \frac{\pi}{k^2}(2l+1)|1-S_l|^2 \\ \sigma_{\text{in}}^l &= \frac{\pi}{k^2}(2l+1)(1-|S_l|^2)\end{aligned}\quad (4.3)$$

Zum gesamten Streuquerschnitt tragen unterschiedliche Partialwellen mit Drehimpuls l jeweils mit einem Streuquerschnitt σ^l bei. Hierbei sind S_l die Eigenwerte der Streumatrix. Ihre Betragsquadrate können maximal eins werden, was eine Folge der Teilchenzahlerhaltung bei rein elastischen Stoßprozessen ist.

In Abbildung 4.1 sind die oberen und unteren Grenzen für den elastischen Streuquerschnitt aufgezeichnet, sofern inelastische Streuung möglich ist. Im Fall des maximalen inelastischen Streuquerschnitts ($S_l = 0$) sind elastischer und inelastischer Streuquerschnitt gerade gleich groß:

$$\sigma_{\text{el}}^l = \sigma_{\text{in}}^l = \frac{\pi}{k^2}(2l+1)\quad (4.4)$$

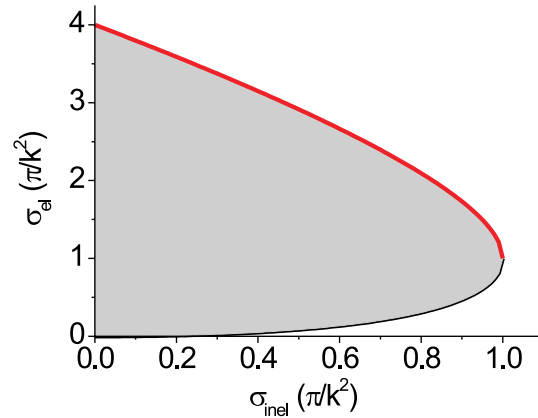


Abbildung 4.1: Darstellung des elastischen Stoßquerschnitts über dem inelastischen Stoßquerschnitt für eine Partialwelle. Die graue Fläche symbolisiert die Menge der Querschnittspaare, die physikalisch möglich ist. Bei maximalem inelastischen Stoßquerschnitt sind inelastischer und elastischer Stoßquerschnitt gerade gleich groß.

Man spricht dann vom unitären Grenzfall. Für die Photoassoziation trifft dies genau dann zu, wenn die Intensität gegen die Sättigungsintensität strebt, die Streuwahrscheinlichkeit gegen eins geht. Der zugehörige Photoassoziationsratenkoeffizient stellt ein absolutes Maximum dar, das nicht überschritten werden kann.

***s*-Wellenstreuung**

Bedingt durch die geringe Temperatur in kalten atomaren Gasen tragen nur bestimmte Partialwellen zum Photoassoziationsprozess bei. Das effektive Potential für ein Molekül ist durch

$$V^{\text{eff}}(R) = V(R) + \frac{\hbar^2 l(l+1)}{mR^2} \quad (4.5)$$

gegeben. Hier ist $V(R)$ das aus 2.3 bekannte Molekülpotential und l ist der Drehimpuls der relativen atomaren Bewegung. In den in Abbildung 4.2 dargestellten effektiven Potentialen ist $V(R)$ das langreichweitige Potential $V(R \rightarrow \infty) = D - \frac{C_6}{R^6} - \frac{C_8}{R^8} - \frac{C_{10}}{R^{10}}$, welches hier nur für die dominierenden Koeffizienten C_6 , C_8 und C_{10} berechnet ist. In Tabelle 4.1 ist das Maximum des effektiven Potentials für die niedrigsten Drehimpulse angegeben. Bei Temperaturen von ungefähr $30 \mu\text{K}$ tragen hier vorallem die *s*-Wellen bei. Höhere Partialwellen tragen aufgrund der bei diesen Temperaturen zu hohen Drehimpulsbarrieren nicht bei.

Die höheren Partialwellen sollten nur durch den Tunneleffekt beitragen. Für die Berechnung der Streuwahrscheinlichkeit wird im folgenden reine *s*-Wellenstreuung angenommen. Der Ratenkoeffizient im unitären Grenzfall ergibt sich dann für reine *s*-Wellenstreuung zu:

$$G_{\text{unitär}} = \left\langle \frac{\pi v}{k^2} \right\rangle \quad (4.6)$$

Drehimpuls l	$V_{\text{max}}/\mu\text{K}$
1	34.8
2	181
3	511
4	1100

Tabelle 4.1: Zusammenstellung der Maxima der effektiven Potentiale für die niedrigsten Drehimpulse.

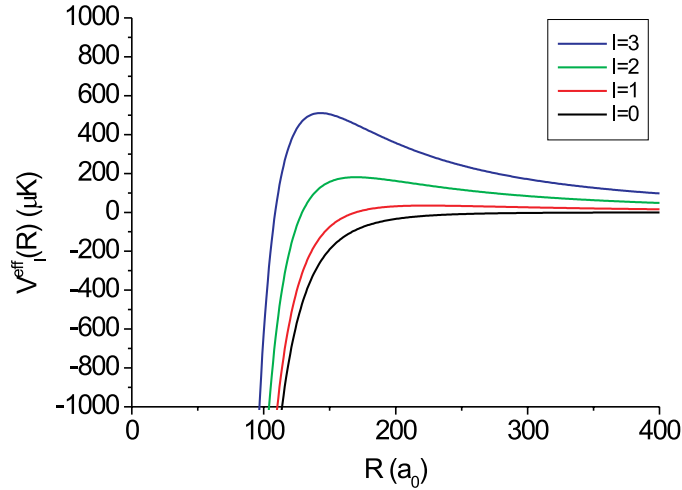


Abbildung 4.2: Darstellung der effektiven langreichweitigen Potentiale des Cs_2 Grundzustandsmolekül berechnet für die niedrigsten Drehimpulse $l = 0, 1, 2, 3$. Bei einem Kernabstand von $R \sim 150a_0$ treten Drehimpulsbarrieren auf.

4.2 Messprozedur und Datenanalyse

Messprozedur

Die Intensitätsabhängigkeit der Photoassoziationsrate wird am $v=6$ Vibrationszustand des äußeren Potentialtopfs des 0_g^- -Zustands an der $6s_{1/2}6p_{3/2}$ -Asymptote durchgeführt. Bei diesem Niveau erhält man einen vergleichsweise hohen Fallenverlust, wie in Kapitel 5 ersichtlich werden wird. Der Laser wurde zur Datenaufnahme über die Rotationslinie mit der Rotationszahl $J=2$ des Niveaus gestimmt. Da diese Rotationslinie im Vergleich zu den anderen Rotationslinien hohe Ratenkoeffizienten aufweist, ist sie besonders geeignet, um Untersuchungen im gesättigten Regime durchzuführen.

Zur Frequenzzeichnung der Spektren wurde das Resonatorsignal jeweils mitgeschrieben. Ansteuerung des Ti:Sa-Lasers und Messzyklus erfolgten wie in 3.3.1 beschrieben. Die Intensität wurde in einem Bereich von 22 W/cm^2 bis 352 W/cm^2 variiert. Um die Intensität variabel einstellen zu können, wurde ein Abschwächungsrads verwendet. Dieses wurde vor der Faser installiert, die den Laserstrahl zur Vakuumkammer leitet. Die Messung der Leistung erfolgt nach der Faser mit Hilfe eines thermischen Leistungsmessgerätes (Spectra-Physics, 407a), die Strahltaile wurde wie in 3.2.3 beschrieben bestimmt.

Datenanalyse

Um aus den Photoassoziationsspektren Streuwahrscheinlichkeiten ableiten zu können, werden zunächst die Photoassoziationsratenkoeffizienten gemäß Kapitel 3.3.2 bestimmt. Dazu wird Gleichung

$$G = \frac{1}{4} V_0 \frac{T_0^2}{N_0} \left(-1 + \left(\frac{N}{N_0} \right)^{-2} \right) \frac{1}{t_{pa}} \quad (4.7)$$

verwendet. Es werden also aus den Teilchenzahlen N bei bekannten Anfangsteilchenzahlen N_0 und Anfangstemperaturen T_0 die Ratenkoeffizienten G berechnet. In Abbildung 4.3 sind ein Photoassoziationsspektrum und die daraus bestimmten Ratenkoeffizienten vergleichend gegenübergestellt. Der Photoassoziationsratenkoeffizient zeigt klar getrennte Resonanzen auf und steigt bis auf ein Maximum von $1.8 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$ an, wobei die Intensität $194 \text{ W}/\text{cm}^2$ beträgt. Aufgrund der optischen Vergleichbarkeit sind die Ratenkoeffizienten negativ aufgetragen. Auffallend ist, dass die Rotationslinien der berechneten Ratenkoeffizienten spitzer verlaufen als die des aufgenommenen Fallenverlustspektrums. Da in der Berechnung aber gerade die nicht-lineare Abnahme von Teilchenzahl, Dichte und die Zunahme der Temperatur während der Photoassoziation berücksichtigt werden, ist dies zu erwarten. Die unkorrigierten Spektren würden also eine Sättigung vortäuschen.

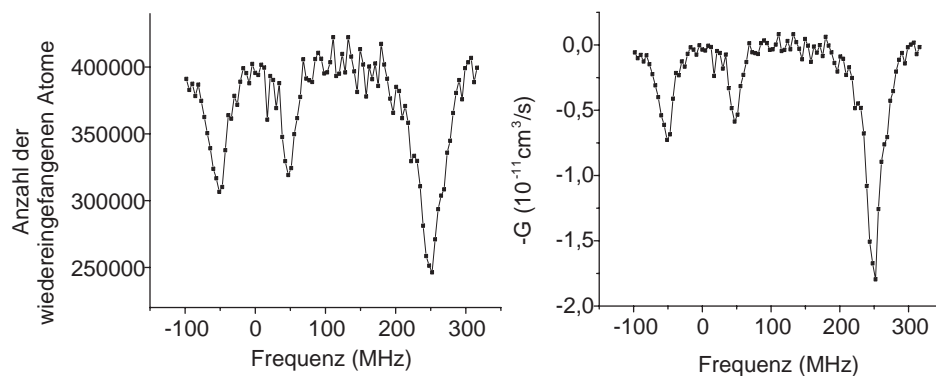


Abbildung 4.3: Vergleich eines Spektrums mit den entsprechenden Photoassoziationsratenkoeffizienten.

Im Weiteren sind die Streuwahrscheinlichkeiten von Interesse. Da die Streuwahrscheinlichkeit im Falle des unitären Limits eins wird, liefert sie ein absolutes Maß für das Erreichen der maximalen Anregungsrate der Atome in den Molekülzustand. Die Umrechnung des Ratenkoeffizienten in die Streuwahrscheinlichkeiten erfolgt gemäß Gleichung 3.20:

$$p = G \frac{1}{2\hbar^2} \left(\frac{k_B m^3}{\pi} \right)^{1/2} T^{1/2} \quad (4.8)$$

Bei der hier zur Berechnung der Streuwahrscheinlichkeiten verwendeten effektiven Temperatur wird folgende Abschätzung verwendet: die effektive Temperatur setzt sich aus der axialen und der radialen wie folgt zusammen:

$$T_{\text{eff}} = \frac{1}{3} (T_{\text{effax}} + 2T_{\text{effrad}}) \quad (4.9)$$

Da der Photoassoziationslaser die zigarrenförmige Atomwolke (20 μm Breite und 1200 μm Länge) unter einem Winkel von 26° schneidet, wechselwirkt nur ein Subensemble mit dem Laser. In radialer Richtung durchstrahlt der Laser die Wolke vollständig. Die radial gemessene effektive Temperatur des gesamten Ensembles entspricht somit der des Subensembles. In axialer Richtung durchstrahlt der Laser (170 μm Durchmesser) dagegen nur etwa ein Zehntel der Wolke (vergleiche Abbildung 4.4). Zur Berechnung der axialen effektiven Temperatur integriert man die kinetischen Energie gewichtet mit ihrer Verteilungsfunktion. Schneidet man die Integration räumlich an der Stelle des Potentials ab, an der der Überlapp mit dem Photoassoziationslaser endet, so erhält man die axiale effektive Temperatur des Subensembles. Sie wird auf

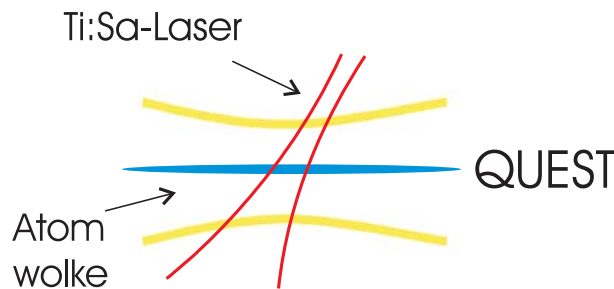


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung der Überlagerung der Atomwolke mit dem Photoassoziationslaser in der Dipolfalle. In axialer Richtung wird nur etwa ein Zehntel der Atomwolke räumlich durch den Photoassoziationslaser überlagert. Im Bereich des Überlapps ist die Taille des Lasers und die Atomwolke in etwa maßstabsgetreu.

diese Weise zu $0.03 \mu K$ abgeschätzt und kann damit gegenüber der radiation vernachlässigt werden. Da die Thermalisierungszeiten (~ 1 s) deutlich länger sind als die Photoassoziationsdauer von hier 0.2 s, rethermalisiert das Subensemble während der Messung nicht. Somit ergibt sich eine effektive Temperatur des Subensembles von:

$$T_{\text{sub}} = \frac{2}{3} T_{\text{rad}} \quad (4.10)$$

Die hier abgeschätzte geringe axiale Temperatur der mit dem Photoassoziationslaser wechselwirkenden Teilchen ist vermutlich die Erklärung für das stärkere Ansteigen der gemessenen axialen Temperatur (siehe Kapitel 3.3). Durch Anpassen einer Lorentzfunktion an die so bestimmten Streuwahrscheinlichkeiten wird schließlich die maximale Streuwahrscheinlichkeit und die Breite und Position der Resonanz bestimmt. In Abbildung 4.5 ist die

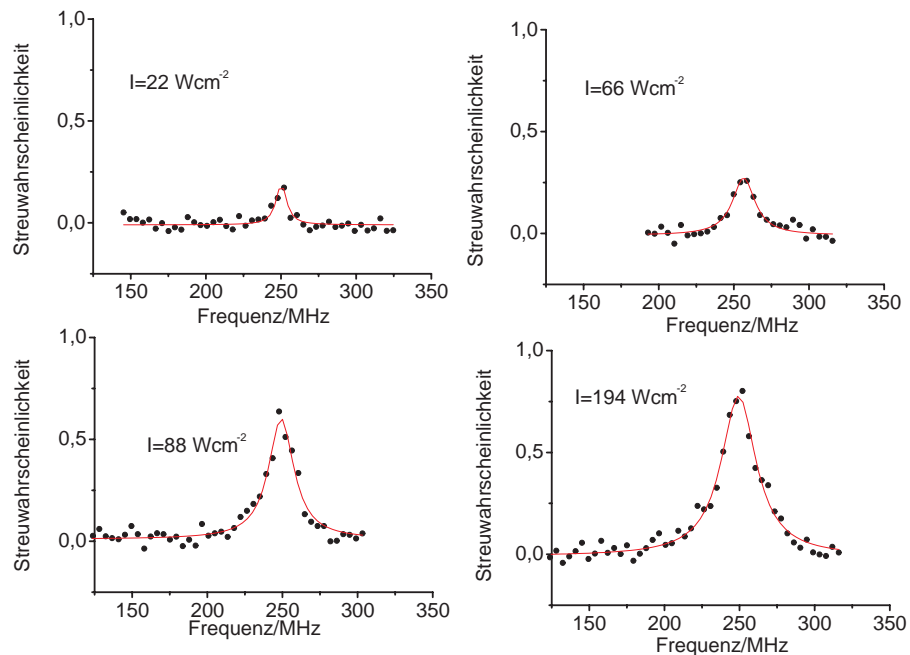


Abbildung 4.5: $J=2$ Rotationslinie des $0_g^-(v=6)$ in Abhängigkeit der Intensität. Die Anpassung einer Lorentzfunktion an die Daten ist ausgezeichnet.

aus dem Fallenverlust bestimmte Streuwahrscheinlichkeit über der Laser-
verstimmung bei vier unterschiedlichen Intensitäten aufgetragen. Die Daten
werden durch eine Lorentzfunktion gut angenähert. Qualitativ können an
Hand von Abbildung 4.5 folgende Aussagen getroffen werden:

- Mit zunehmender Intensität wächst die Streuwahrscheinlichkeit. Für
große Intensitäten scheint der Anstieg schwächer zu sein als im Bereich
kleiner Intensitäten.
- Die Streuwahrscheinlichkeit wächst bis zu einem Wert im Bereich von
eins an.
- Die Position der Linienmitte variiert im Bereich einiger MHz. Ein
genereller Trend ist nicht erkennbar.
- Die Breite der Linien nimmt mit der Intensität zu. Genau wie im
Fall der Streuwahrscheinlichkeit scheint die Zunahme im Bereich großer
Intensitäten geringer zu sein.

Systematische Effekte

Die Bestimmung der hier angegebenen Streuwahrscheinlichkeit beinhaltet
systematische Fehler. Zum einen ist die in den Ratenkoeffizienten als Ab-
solutwert eingehende Teilchenzahl nur auf ungefähr 30 % bekannt. Sie wird
nämlich aus Fluoreszenzbildern bestimmt, wobei die absolute Teilchenan-
zahl wiederum auf die Teilchenzahl der Absorptionbilder geeicht ist. Da der
genaue m_F -Unterszustand der Atome nicht bekannt ist, beinhaltet die Bere-
chnung mit Hilfe eines vom Unterszustand abhängigen Absorptionsquerschnitts
einen Fehler. Außerdem verursacht gerade bei geringen Teilchenzahlen das
Abziehen eines rauschunabhängigen Untergrundes einen Fehler in der Teil-
chenzahl.

Für die Berechnung der Streuwahrscheinlichkeit wurde hier reine s -
Wellenstreuung angenommen. Da bei der Photoassoziation die effektive Tem-
peratur auf bis zu 50 μK ansteigt, können nach Tabelle 4.1 auch p -Wellen
beitragen. Hierdurch werden die tatsächlichen Streuwahrscheinlichkeiten ver-
mutlich überschätzt.

4.3 Lichtverschiebung und Linienverbreiterung

Sowohl die Lichtverschiebung als auch die Linienverbreiterung sind dichteunabhängige Größen, die experimentell untersucht werden können. Sie hängen im Allgemeinen vom Unterzustand und der Streuenergie ab. Ihre Untersuchung ist an sich interessant und trägt zudem zum Verständnis der Photoassoziation bei hohen Intensitäten bei.

Lichtverschiebung

Die Lichtverschiebung wird bestimmt, indem die Daten wie oben beschrieben angepasst werden. Die absolute Position der Linienmitte wird dabei in Abbildung 4.6 gegen die Intensität aufgetragen. Die absolute Position der Linienmitte bezieht sich auf eine bestimmte Resonatormode, mit deren Hilfe das Spektrum frequenzgeeicht ist (siehe Kapitel 3.2.4). Die dargestellten Daten stammen aus zwei unterschiedlichen Messreihen. In der einen Messreihe wurde für die Rotationslinien J=0 bis J=3 bei jeweils vier

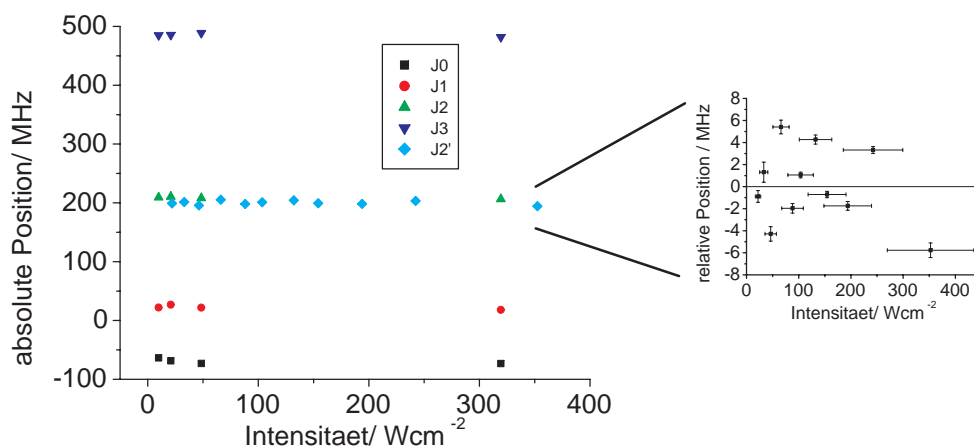


Abbildung 4.6: Position der Linienmitten in Abhängigkeit der Intensität für die verschiedenen Rotationslinien des $0_g^-(v=6)$ Zustands. Im kleinen Fenster ist die Lichtverschiebung für die J=2 Rotationslinie vergrößert dargestellt.

unterschiedlichen Intensitäten die Linienmitte bestimmt. In der anderen Messreihe wurde die Linienmitte der J=2-Rotationslinie für elf verschiedene Intensitäten bestimmt. Für beide Messreihen ist die Position des absoluten Linienmittelpunkts im großen Fenster dargestellt. Die relative Position der beiden J=2-Rotationslinien ist willkürlich gewählt. Im kleinen Fenster ist die relative Position der J=2 Rotationslinien dargestellt. Der Fehler in der Intensität ist durch den Fehler bei der Bestimmung der Strahltaile des Ti:Sa-Lasers gegeben ($170 \mu\text{m} \pm 20 \mu\text{m}$). Der Fehler in der Position des Maximums ist durch die Frequenzstabilität einer Resonatormode ($\sim 7 \text{ MHz}$), die Frequenzzeichnung des Spektrums ($\sim 5 \text{ MHz}$) und die Güte der Anpassungsfunktion ($\sim 3 \text{ MHz}$) gegeben. Innerhalb dieses Fehlers von 9 MHz ist kein Trend für eine Lichtverschiebung erkennbar.

Die Lichtverschiebung hängt nach Gleichung 4.6 linear von der Intensität ab. Dass trotz der hohen Laserintensitäten im Rahmen des Fehlers keine Lichtverschiebung messbar ist, muss in der Streuenergieabhängigkeit der Lichtverschiebung begründet sein. Durch die thermische Mittelung der Lichtverschiebung kann es zu einer Abweichung vom linearen Verhalten kommen. Es ist aber auch möglich, dass für den anderen Hyperfeinzustand ($F=4$) als den hier gewählten $F=3$ -Zustand bei gleichen Temperaturen eine Lichtverschiebung messbar wäre. So wurde in [Sch02] für die Photoassoziation von ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ in dem $F_6 + F_7 = 3/2 + 2$ Hyperfeinniveau eine Lichtverschiebung von maximal 5 MHz gemessen, was mit der hier durchgeführten Auswerteprozedur nicht erkennbar gewesen wäre. In einem anderen Hyperfeinzustand ($F_6 + F_7 = 1/2 + 1$) wurde dagegen eine Lichtverschiebung von bis zu 50 MHz gemessen.

In [Sch02] und [McK02] wird zur Untersuchung der Sättigung des Ratenkoeffizienten ein *korrigierter Ratenkoeffizient* angegeben. Dies geschieht, um die ortsabhängige Lichtverschiebung und die damit einhergehende Verbreiterung der Resonanzen zu korrigieren. Gäbe es nämlich eine intensitätsabhängige Lichtverschiebung, so wäre die Resonanzfrequenz ortsabhängig. Dieser Effekt würde zudem von der Gesamtlaserintensität abhängen, weil mit zunehmender Intensität der Intensitätsgradient zunimmt. Da hier aber keine Lichtverschiebung gemessen wird, wird die Annahme gemacht, dass es auch keine inhomogene Lichtverschiebung gibt, die zu einer Verbreiterung führen würde.

Linienverbreiterung

In Abbildung 4.7 ist die absolute Linienbreite als Funktion der Laserintensität dargestellt. Die Linienbreite bei Intensität Null ist endlich und steigt bis zu einer Intensität von ungefähr 120 Wcm^{-2} linear an. Im Bereich höherer

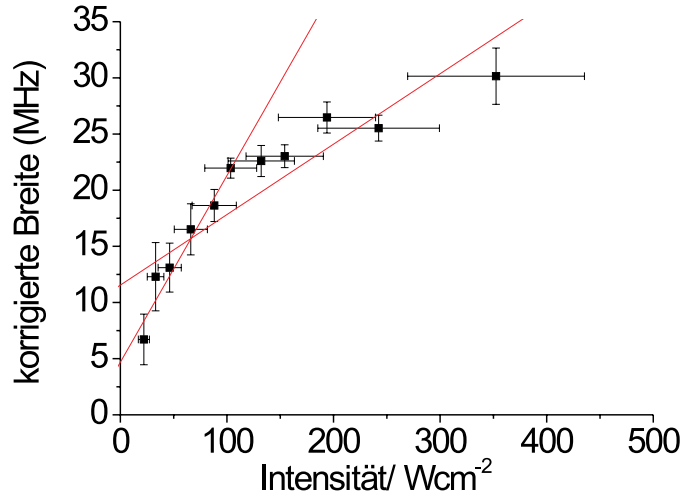


Abbildung 4.7: Linienbreite als Funktion der Laserintensität. Die Anpassung einer linearen Funktion an die Daten erfolgte sowohl im linearen als auch im gesamten Bereich.

Intensitäten nimmt die Breite zwar noch zu, die Zunahme flacht allerdings ab. Bei Intensität Null setzt sich die Linienbreite aus folgenden Anteilen zusammen:

Die *natürliche Linienbreite* entspricht für das 0_g^- -Potential bei grossen internuklearen Abständen der zweifachen atomaren natürlichen Linienbreite [Jul91]. Da die Linienbreite für das Cäsiumatom 5,2 MHz ist, kann die Linienbreite in diesem Fall zu 10,4 MHz abgeschätzt werden. Da bei den hier untersuchten Vibrationsniveaus der internukleare Abstand etwa 14 Å beträgt, ist die Annahme grosser internuklearer Abstände nicht mehr gegeben. Man erwartet aus diesem Grund eine natürliche Linienbreite zwischen der atomaren und der zweifachen atomaren Breite.

Die *thermische Verbreiterung* kann bei einer Temperatur von 40 μ K mit Hilfe von $\Delta_\nu = \frac{1}{\lambda} \frac{8k_B T \ln 2}{m}$ zu 0,14 MHz abgeschätzt werden. Die Abschätzung leitet sich aus der Dopplerverschiebung unter Annahme einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung her. Die thermische Verbreiterung ist damit vernachlässigbar.

Da es sich bei dem 0_g^- -Zustand um einen $\Omega = 0$ -Zustand handelt, der gesamte elektronische Drehimpuls also zu Null koppelt, sollte *Hyperfeinwechselwirkung* im Molekül keinen Beitrag zur Verbreiterung liefern.

Für die intensitätsabhängige Linienverbreiterung sind folgende Mechanismen zu berücksichtigen:

Die durch die Fokussierung bedingte *Ortsabhängigkeit* der Intensität des *Photoassoziationslasers* könnte zu einer Verbreiterung führen. Da aber keine intensitätsabhängige Lichtverschiebung gemessen wurde, wird hier die Annahme gemacht, dass dieser Effekt auch nicht in der Bestimmung der Breite zu berücksichtigen ist (siehe Kapitel 4.3).

Anders verhält es sich mit der *Ortsabhängigkeit* der Intensität des 100 Watt starken CO₂-Fallenlasers. Auch hier führt die Fokussierung zu einer Ortsabhängigkeit des AC-Stark-Shifts. Die Verbreiterung der Resonanz aufgrund dieses Effekts lässt sich zu

$$\Delta\nu = \left(\frac{\alpha_{exc}}{\alpha} - 1\right) \left(\frac{3}{2}\right)^{1/2} \frac{k_B T}{h} \quad (4.11)$$

abschätzen. α und α_{exc} sind die Polarisierbarkeiten des Grundzustands und des angeregten Zustands und T ist die Temperatur. In diese Abschätzung ist die Maxwell-Verteilung der potentiellen Energie im harmonischen Potential eingegangen. Die laserinduzierte Verschiebung des Potentials selbst wird nach [Gri00] bestimmt. Bei einer Temperatur von 40 μ K ergibt sich eine durch den Fallenlaser induzierte Verbreiterung von 3.6 MHz. Diese ist in Abbildung 4.7 von der tatsächlich gemessenen Breite abgezogen.

Induzierte Prozesse führen zu einer linearen Zunahme der Breite mit der Intensität (siehe Kapitel 3.1.1). Die Breite nimmt aufgrund induzierter Prozesse mit $\Gamma + \gamma_0 = \gamma_0 \left(1 + \frac{I}{I_{Sättigung}}\right)$ zu.

In Abbildung 4.7 sind die Daten durch eine lineare Funktion angepasst, wie es zu erwarten ist, wenn die induzierte Breite dominierend ist. Dargestellt sind zwei Anpassungen: In einem Fall wurde eine lineare Funktion an den gesamten Datensatz angepasst, in dem anderen Fall nur im Anfangsbereich, in dem ein linearer Anstieg zu sehen ist. Nach [Sim02] würde man ein lineares Verhalten im gesamten Bereich erwarten. Im Bereich hoher Intensitäten wächst die Breite jedoch nicht mehr linear mit der Intensität. Eine Erklärung für das Abweichen vom linearen Verhalten könnte sein, dass eine thermisch gemittelte induzierte Rate gemessen wurde und aufgrund der starken Streuenergieabhängigkeit der induzierten Rate das Verhalten vom linearen abweicht. Zudem ist es möglich, dass im Bereich hoher Intensitäten und damit hoher Raten das hier verwendete Fallenverlustmodell nicht mehr gültig ist, weil die Atomwolke immer schlechter thermalisiert. Aus diesem Grund wurde auch eine zusätzliche Anpassung im Bereich geringer Intensitäten durchgeführt. Zudem liefert eine Anpassung im Bereich geringer Intensitäten eine zuverlässigere Bestimmung der natürlichen Linienbreite. Man sieht allerdings in Abbildung 4.7 deutlich, dass beide Anpassungen die experimentellen Daten nicht im gesamten Bereich gut wiedergeben, was für einen unberücksichtigten Effekt in der Modellfunktion spricht. Für diese Interpretation spricht auch, dass in

[Sch02] für das $F_6 + F_7 = 3/2 + 2$ und das $F_6 + F_7 = 1/2 + 2$ -Hyperfeinniveau ein ähnliches Intensitätsverhalten der Breite beobachtet wurde. Für diese Hyperfeinniveaus wird wie bei dem von uns untersuchten Hyperfeinniveau ein Sättigungsverhalten des Ratenkoeffizienten beobachtet (siehe Kapitel 4.4). Hingegen stellt sich bei den Hyperfeinniveaus bei denen in [Sch02] kein Sättigungsverhalten beobachtet wird ($F_6 + F_7 = 3/2 + 1$ und $F_6 + F_7 = 1/2 + 1$), ein linearer Zusammenhang der Breite mit der Intensität heraus.

Extrapolation im Bereich von Intensität Null liefert eine natürliche Linienbreite von $\Gamma_{\text{gesamtfit}} = 2\pi \cdot 10.2 \text{ MHz}$ für die gesamte Anpassung beziehungsweise von $\Gamma_{\text{linearfit}} = 2\pi \cdot 5.1 \text{ MHz}$ für die Anpassung im linearen Bereich. Da letztere verlässlicher bestimmt ist, spielt die Abstandsabhängigkeit des Dipolmatrixelements vom internuklearen Abstand offensichtlich doch eine entscheidende Rolle. Aus der linearen Anpassung wird mit Hilfe von $\Gamma + \gamma_0 = \gamma_0 \left(1 + \frac{I}{I_{\text{Sättigung}}}\right)$ die Sättigungsintensität zu $I_{\text{SATgesamt}} = 184 \text{ Wcm}^{-2}$ beziehungsweise zu $I_{\text{SATlinear}} = 30 \text{ Wcm}^{-2}$ bestimmt.

Aus einer zweiten Messreihen bei einem etwas anderen Fokus des Ti:Sa-Lasers ($w_0 = 170\mu\text{m} \pm 20\mu\text{m}$ anstatt $w_0 = 150\mu\text{m} \pm 20\mu\text{m}$) werden dagegen folgende Werte bestimmt: $\Gamma_{\text{linearfit}} = 2\pi \cdot 9 \text{ MHz}$, $\Gamma_{\text{gesamtfit}} = 2\pi \cdot 13.2 \text{ MHz}$, $I_{\text{SATlinear}} = 124 \text{ Wcm}^{-2}$ und $I_{\text{SATgesamt}} = 600 \text{ Wcm}^{-2}$. Auch hier zeigt sich an Hand des starken Abweichens der Sättigungsintensität bestimmt aus einer Anpassung im linearen und im gesamten Bereich, dass das Verhalten der Breite mit der Intensität durch die verwendete Anpassungsfunktion nicht gut beschrieben wird. Die Abweichung der beiden Messreihen untereinander erklärt sich vermutlich aus der Ungenauigkeit in der Bestimmung der Breite und einem möglicherweise anderen Überlapp von Falle und Photoassoziationslaser.

4.4 Sättigungsintensität

In Abbildung 4.8 ist die Steuwahrscheinlichkeit über der Intensität dargestellt. Bei geringen Intensitäten liegt die Streuwahrscheinlichkeit im Bereich von etwa 20 % und steigt für große Intensitäten in den Bereich des unitären Limits. Die Daten sind durch Gleichung 4.2 angepasst. Die maximale Streuwahrscheinlichkeit wurde in der Anpassung auf 1 fixiert. Die Anpassung ist sehr sensitiv auf den absoluten Wert der Streuwahrscheinlichkeit, dieser ist aber wie in 4.2 beschrieben nur auf 30 % der Gesamtteilchenzahl bekannt. Um diesen Fehler zu berücksichtigen, geht man wie folgt vor: es werden zwei zusätzliche Anpassung mit maximalen Streuwahrscheinlichkeiten von 0.7 und 1.3 durchgeführt. Die Sättigungsintensität wird so zu $480_{-230}^{+330} \text{ Wcm}^{-2}$ bestimmt. In guter Übereinstimmung mit diesem Wert ergibt sich für die zweite Messrei-

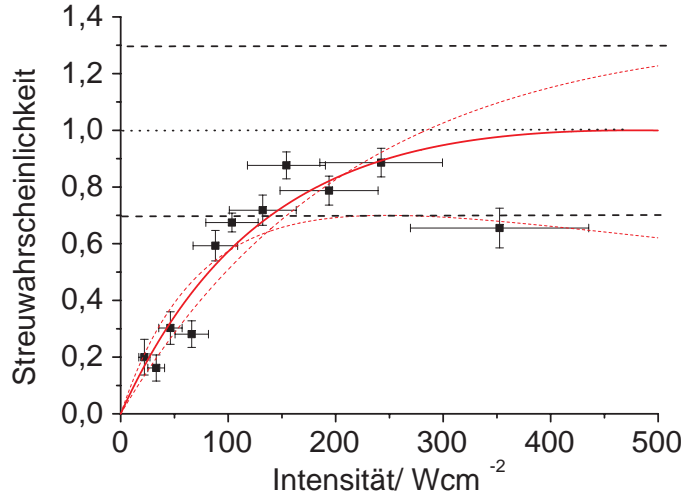


Abbildung 4.8: Die Streuwahrscheinlichkeiten sind als Funktion der Laserintensität aufgetragen. Für hohe Intensitäten strebt die Streuwahrscheinlichkeit gegen eins. Eine Sättigungsintensität wird mittels eines an die Daten angepassten Modells bestimmt (durchgezogene Linie). Die beiden schwach gezeichneten Anpassungsfunktionen geben den Fehlerbereich für diese Anpassung an.

he bei einem Fokus von $150 \mu\text{m}$ eine Sättigungsintensität von $490_{-250}^{+290} \text{ Wcm}^{-2}$. Da die Anpassungsfunktion der Breite die Daten nicht im gesamten Intensitätsbereich gut repräsentiert, ist der hier bestimmte Wert verlässlicher. Insbesondere gibt es eventuell unverstandene Verbreiterungsmechanismen, die nicht in die hier verwendete Anpassungsfunktion eingehen. Interessanterweise stimmt die aus den gesamten Breitendaten bestimmte Sättigungsintensität besser als die aus dem linearen Bereich bestimmte (Faktor 2 zu 10 beziehungsweise für die zweite Messreihe ein Faktor 1.5 zu 7) mit der aus der Streuwahrscheinlichkeit bestimmten überein. Es scheint also, als ob gerade im Bereich geringer Intensitäten die Breite nicht das nach [Sim02] geforderte Verhalten besitzt.

Als Vergleich sei hier die in [Sch02] für ${}^6\text{Li} \text{ } {}^7\text{Li}$ angegebene Sättigungsintensität von 28 Wcm^{-2} ($F_6 + F_7 = 3/2 + 2$) bzw. von 54 Wcm^{-2} ($F_6 + F_7 = 1/2 + 2$) genannt. Sie befindet sich in derselben Größenordnung wie die hier aus der Anpassung an die Breite im linearen Bereich bestimmten Sättigungsintensität. Da es sich in der vorliegenden Arbeit aber um die Photoassoziation in einem anderen System (MOT) und um ein anderes Molekül (${}^6\text{Li} \text{ } {}^7\text{Li}$) handelt,

ist der Vergleich nur bedingt aussagekräftig. Außer in der vorliegenden Arbeit wurde nur in [Sch02] die Sättigung des Atom-Molekülübergangs quantitativ untersucht.

Kapitel 5

Variation der Grundzustandswellenfunktion

Die Wechselwirkungen zwischen den Atomen in einem kalten Gas bestimmen sein Verhalten maßgeblich. Die Thermalisierungszeiten eines atomaren Gases, insbesondere die bei der evaporativen und sympathetischen Kühlung [Ket96, Mud02], sind durch die elastische Stoßrate bestimmt. Für das Erreichen und die Stabilität eines Bose-Einstein-Kondensats sind die Streueigenschaften von kalten Atomen von entscheidender Bedeutung. So ist der Streuquerschnitt in einem Bose-Einstein-Kondensat durch die Streulänge a gegeben: $\sigma = 8\pi a^2$. Da eine negative Streulänge einem attraktiven Potential entspricht und damit zum Kollabieren des Kondensats führen kann, ist es sehr schwer, ein Gas mit einer negativen Streulänge zu kondensieren. Die Streulänge ist für Cäsium sehr gut bekannt. Die aktuellste und genaueste Messung der Streulänge von Cäsium [Chi00], wurde durch Feshbach-Spektroskopie bestimmt.

Die Tripletstreu­länge wurde hier zu $a_T = -2400 a_0$ und der C_6 -Koeffizient zu $C_6 = 6510$ a.u. bestimmt. Aufgrund der hohen negativen Streulänge wurde Cäsium erst kürzlich [Web03a] kondensiert. Die hohe negative Streulänge führt nämlich einerseits zu einem schnelleren Kollabieren des Kondensats und andererseits zu bedeutenden Drei-Körper-Rekombinationsprozessen [Web03b], was beides zu Instabilitäten des Kondensats führen kann.

Auch mit Hilfe der Photoassoziationsspektroskopie lässt sich das Grundzustandspotential und damit die Streulänge genau bestimmen [Dra00a, Abr96]. In diesem Kapitel wird dies zunächst erklärt. Dann werden die Übergangstärken für die 0_g^- -Linie bei -1300 GHz bis -2300 GHz mit Hilfe der Photoassoziationsspektroskopie bestimmt. Aus den experimentell gewonnenen Daten werden die Franck-Condon-Faktoren extrahiert. Mit Hilfe der Franck-Condon-Faktoren lassen sich prinzipiell das Grundzustandspotential und die

Streulänge bestimmen, was in einer zukünftigen Zusammenarbeit mit einer Theoriegruppe geschehen soll. Als ersten Schritt in diese Richtung werden die hier bestimmten Franck-Condon-Faktoren mit theoretisch bestimmten verglichen.

5.1 Modulation des Franck-Condon-Faktors

Wie die Streulänge auch durch Photoassoziationsuntersuchungen bestimmt werden kann, soll im Folgenden beschrieben werden. Man kann sie numerisch aus der Variation der Grundzustandswellenfunktion berechnen, die wiederum durch Photoassoziationsspektroskopie experimentell bestimmt wird. Dies soll folgende Überlegung verdeutlichen: In Darstellung 5.1 ist die Potentialkurve zweier Grundzustandsatome und die eines angeregten Molekülzustandes gezeigt. Das Prinzip der Photoassoziation ist in Kapitel 3.1 erklärt. Das Grundzustandsmolekülpotential für große Kernabstände lässt sich nach 2.3 näherungsweise als

$$V(R \rightarrow \infty) = D - \frac{C_6}{R^6} - \frac{C_8}{R^8} - \frac{C_{10}}{R^{10}} - \dots \quad (5.1)$$

beschreiben. Die Photoassoziationsrate wird durch den Überlapp von Grundzustandswellenfunktion und angeregter Wellenfunktion bestimmt. Die Wel-

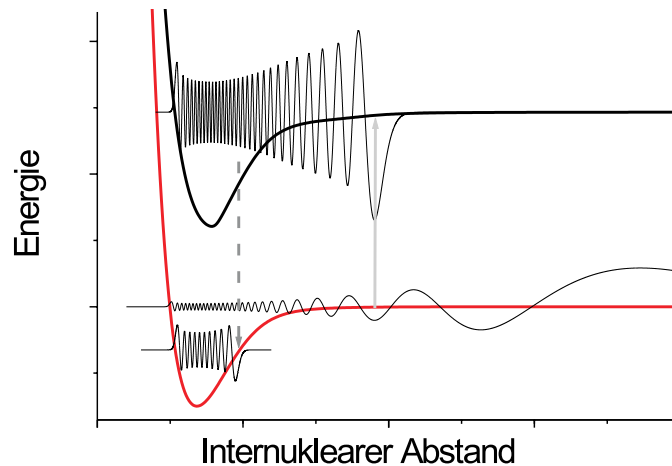


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung des Grundzustandspotentials und des angeregten Potentials. Zusätzlich sind die jeweiligen Wellenfunktionen eingezeichnet.

lenfunktion des Moleküls variiert schnell gegen die des Grundzustandspotentials. Die Amplitude ihres äußersten Wellenbauchs ist groß verglichen mit der ihrer anderen Wellenbäuche. Die Breite ihres äußersten Wellenbauchs ist sehr klein gegen die Breite der Wellenbäuche der Grundzustandswellenfunktion. Aus diesen Gründen gibt der äußerste Wellenbauch des Molekülpotentials, der durch eine Deltafunktion genähert werden kann, den entscheidenden Beitrag zum Überlappintegral. Je nachdem ob die Wellenfunktion des Grundzustandes im Abstand dieses näherungsweise deltaförmigen Wellenbauchs einen Wellenbauch oder einen Knoten hat, resultiert ein Maximum oder ein Minimum im Photoassoziationssignal. Ob die Wellenfunktion am Condon-Punkt einen Knoten hat, ist zum einen durch die C -Koeffizienten des Potentials, aber auch durch die Streulänge bestimmt.

Durch Photoassoziationsspektroskopie wurde in [Dra00a] die Triplet-Streulänge zu $a_T = -530 a_0$ und ein Grundzustandspotentialskoeffizient von $C_6 = 6510$ a.u. bestimmt. Dies geschah durch Photoassoziationsuntersuchungen von Cäsiumatomen in einer MOT, die im $f = 4$, $m_f = 4$ polarisiert waren. Die Berechnung aus den experimentellen Messdaten erfolgte folgendermaßen: Aus den experimentellen Daten kann leicht die Verstimmung der Frequenz des Photoassoziationslasers gegenüber Dissationsgrenze an den Knoten bestimmt werden. Durch Lösung der Schrödingergleichung in einem durch einen C_6 -Koeffizienten und die Streulänge gegebenen Potential wird numerisch die Wellenfunktion berechnet. Die anderen C -Koeffizienten werden der Literatur entnommen. Dies wird für verschiedene Paare von C_6 -Koeffizienten und Streulängen solange durchgeführt, bis die daraus berechnete Verstimmung möglichst gut mit der experimentell gemessenen übereinstimmt.

5.2 Ergebnisse

5.2.1 Messprozedur

Die Bestimmung der Franck-Condon-Faktoren erfolgt über photoassoziative Fallenverluste. Bei der Bestimmung des Franck-Condon-Faktors muss daher sichergestellt sein, dass einerseits die Intensität des Ti:Sa-Lasers groß genug ist, um bei schwachen Übergängen noch ausreichend Fallenverluste nachzuweisen und andererseits der Ratenkoeffizient nicht sättigt (siehe Kapitel 4.8). Um untereinander vergleichbare Franck-Condon-Faktoren zu erhalten, ist es zudem wichtig, gleiche experimentelle Bedingungen für alle Messungen herzustellen. Der absolute Fallenverlust hängt nämlich kritisch von Überlagerung des Ti:Sa-Lasers mit der Atomwolke und dem Transfer in die QUEST und weiteren experimentellen Parametern ab.

Für die im Folgenden vorgestellten Messungen werden zwei Messreihen für die 0_g^- -Linie bei -1300 GHz bis -2300 GHz ($v=0$ bis $v=23$) unterhalb der Dissoziationsgrenze durchgeführt. In der ersten Messreihe ($v=0$ bis $v=10$) variiert die Intensität zwischen 56 Wcm^{-2} und 424 Wcm^{-2} , und zwar jeweils mehrere Messungen bei unterschiedlichen Intensitäten pro Vibrationsniveau. Für die im Anschluß beschriebene Auswertung wird jeweils die Messung analysiert, die die oben genannten Kriterien in Bezug auf die Übergangsstärke erfüllt. Da aufgrund der ersten Messreihe ausreichend experimentelle Erfahrung vorlag, konnte in der zweiten Messreihe ($v=11$ bis $v=23$) bei festgehaltener Intensität von 66 Wcm^{-2} die Übergangsstärke bestimmt werden. Durch das auch zeitliche Aufteilen der beiden Messreihen ist die Vergleichbarkeit der Übergangsstärken zwar eingeschränkt, da das Messsystem aber immer mit denselben Verfahren hochgefahren und optimiert wird, sollte der dadurch entstandene Fehler vernachlässigbar sein.

5.2.2 Datenanalyse

Aus den experimentell bestimmten Fallenverlusten sollen Franck-Condon-Faktoren bestimmt werden. Folgendes Verfahren wird gewählt: Aus Gleichung 4.1 ist die maximale Streuwahrscheinlichkeit p einer Photoassoziationsresonanz bekannt:

$$p_{\max} = \frac{\gamma \Gamma_{\text{eff}}^E}{\frac{1}{4}(\gamma + \Gamma_{\text{eff}}^E)^2} \quad (5.2)$$

Daraus kann die induzierte Rate Γ_{eff}^E in Abhängigkeit der Streuwahrscheinlichkeit und der spontanen Emissionsrate γ angegeben werden. Zwischen induzierter Rate und Franck-Condon-Faktor besteht nach [Boh99] folgender Zusammenhang:

$$\Gamma = 2\pi(V_{eg})^2 |\langle f_0 | \Phi_b \rangle|^2 \quad (5.3)$$

Hier ist V_{eg} das aus Gleichung 3.3 bekannte Atom-Lichtfeld-Wechselwirkungs-Matrixelement und $|\langle f_0 | \Phi_b \rangle|^2$ ist der Franck-Condon-Faktor. Es geht die Annahme ein, dass das Dipolmatrixelement nur schwach vom internuklearen Abstand abhängt. Für die ins Atom-Lichtfeld-Wechselwirkungs-Matrixelement eingehende Lebensdauer ist die zweifache atomare Lebensdauer eingesetzt. Der Franck-Condon-Faktor lässt sich somit mit Hilfe von Gleichung 5.2 zu:

$$|\langle f_0 | \Phi_b \rangle|^2 = \frac{1}{p} \left(2 - p - 2(1 - p)^{-1/2} \right) \frac{\omega_0^3 w_0^2}{24\pi^2 \varepsilon_0 \hbar c^2} \frac{1}{P} \quad (5.4)$$

angeben. P ist die Leistung, ω_0 die atomare Resonanzfrequenz und w_0 die Strahltaile des Ti:Sa-Lasers .

5.2.3 Franck-Condon-Faktoren

In Abbildung 5.2 sind die aus den experimentell gemessenen Daten und mit Gleichung 5.4 berechneten Franck-Condon-Faktoren für die 0_g^- -Linie bei -1300 GHz bis -2300 GHz ($v=0$ bis $v=23$) unterhalb der Dissoziationsgrenze dargestellt. Während im gesamten Bereich die Franck-Condon-Faktoren der Rotationslinie $J=2$ dargestellt sind, sind im Bereich von -1800 GHz bis -2300 GHz zusätzlich die Franck-Condon-Faktoren der Rotationslinie $J=0,1$ dargestellt.

Für die $J=2$ -Rotationslinie sind für die Vibrationsquantenzahlen $v=0$, $v=10$ und $v=18$ Minima in den Franck-Condon-Faktoren zu erkennen. Maxima sind dagegen besonders bei den Vibrationsquantenzahlen $v=4$, $v=13$ und $v=21$ zu erkennen. Die anderen Rotationslinien mit $J=0,1$ folgen diesem Verlauf im Wesentlichen, wenngleich für die Vibrationsquantenzahl $v=5$ und $v=9$ ein leicht anderer Trend vorherrscht.

Die aufgetragenen Franck-Condon-Faktoren sind nicht normiert, da die Grundzustandswellenfunktion nicht normierbar ist. Da die Streuwahrscheinlichkeit mit $1/p$ in Gleichung 5.4 eingeht, ist ihre Genauigkeit für die Bestimmung des Franck-Condon-Faktors entscheidend. Wie in Kapitel 4.2 beschrieben, birgt die Bestimmung des absoluten Werts große Ungenauigkeiten. Da hier aber weniger der absolute Wert, sondern mehr die relative Stärke der Franck-Condon-Faktoren von Interesse ist, ist die Ungenauigkeit in der Streuwahrscheinlichkeit hier ohne nennenswerte Bedeutung. Bedeutender ist dagegen, der von der täglichen Justage des Überlapps des Photoassoziationslasers mit der Atomwolke abhängige Fallenverlust.

5.3 Vergleich der Theorie mit den experimentell gewonnenen Daten

Die in Abbildung 5.2 dargestellten theoretischen Franck-Condon-Faktoren sind von Olivier Dulieu, Laboratoire Aimé Cotton (Frankreich, Orsay), berechnet worden [Dul03]. Er benutzt dazu folgendes Verfahren: Vibrations- oder Kontinuumswellenfunktionen werden durch Lösen der Schrödingergleichung unter Benutzung eines Numerov-Algorithmus bestimmt. Danach wird der Überlapp zwischen Wellenfunktionspaaren mit Hilfe einer trapezoiden Quadratur ausgerechnet. Im Gegensatz zu dem in [Dra00a] verwendeten Verfahren wurden keine Näherungsverfahren benutzt. Die theoretischen Franck-Condon-Faktoren weisen wie in unseren Ergebnissen bei $v=0$ ein Minimum auf. Hingegen sind die anderen Minima gegenüber den experimentell bestimmten verschoben ($v = 6, 9, 14, 22$). Die Maxima liegen dagegen im Bereich der

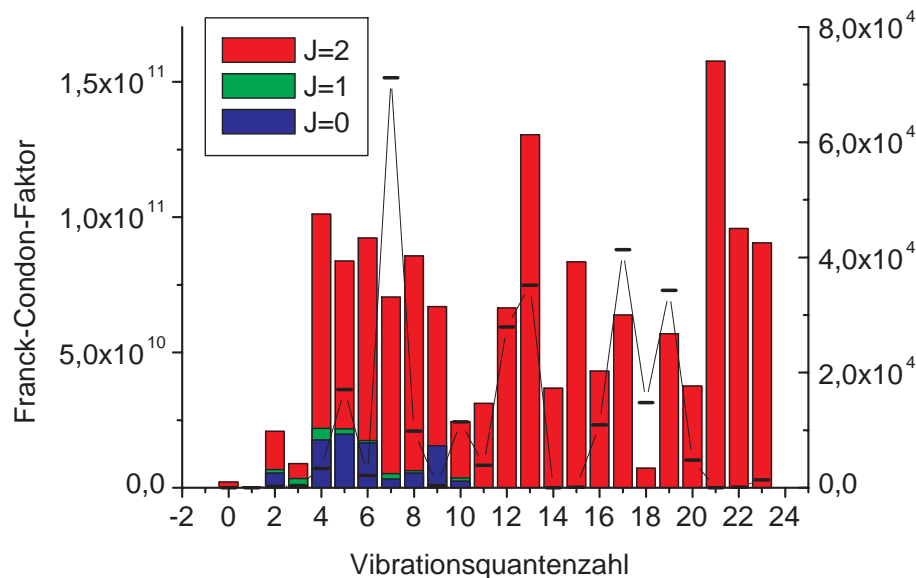


Abbildung 5.2: Die Franck-Condon-Faktoren sind als Funktion der Vibrationsquantenzahlen aufgetragen. Im gesamten Bereich ist der Franck-Condon-Faktor der Rotationslinie J=2 und im Bereich $v=2$ bis $v=10$ zusätzlich die der Rotationslinien J=0 und J=1 dargestellt. Die theoretisch berechneten Franck-Condon-Faktoren werden durch die waagrechten Striche symbolisiert.

experimentell bestimmten Werte ($v = 7, 13, 17$). Im Bereich von $v=20$ bis $v=23$ trifft ein Maximum in den experimentellen Werten auf ein Minimum in den theoretischen Werten.

Die experimentell bestimmten Franck-Condon-Faktoren sind über Fallenverluste nachgewiesen. Dies stellt für die hier durchgeführten Untersuchung der Grundzustandswellenfunktion und damit der Anregungsrate in den Molekülzustand einen Vorteil dar. Der Nachweis der Moleküle in anderen Messungen [Fio98] erfolgt nämlich über einen Ionennachweis der Grundzustandsmoleküle, wodurch die Anregungsrate nur indirekt bestimmt wird. Durch die Unsicherheit in der Bestimmung der absoluten Streuwahrscheinlichkeit entsteht wie oben beschrieben kein zusätzlicher Fehler, da hier vor allem die relative Anregungsrate untersucht werden soll.

Eine Unsicherheit in der oben beschriebenen Bestimmung der theoretischen Werte liegt im zur Berechnung benutzten Potential- dies ist allerdings relativ gut bekannt. Außerdem ist bei der Berechnung der Franck-Condon-Faktoren der Überlapp der Wellenfunktionen und nicht das Übergangsmatrixelement

berechnet worden, d.h. es wurde ein konstantes Dipolmatrixelement vorausgesetzt. Gemessen wurde dagegen das Übergangsmatrixelement, und aufgetragen wurde nach Gleichung 5.4 das auf das atomare Dipolmatrixelement normierte. Aber auch folgender Effekt könnte eine Rolle spielen. Bei großen Raten nimmt die Temperatur stärker zu als bei niedrigen. Es könnte also sein, dass höhere Partialwellen (insbesondere p -Wellen) bei großen Raten wesentlich zur Streuung beitragen. Vermutlich wurde in den theoretisch berechneten Werten von einer konstanten Temperatur ausgegangen.

Diese Fragen und andere hier nicht erörterte Effekte wird die Zusammenarbeit mit der Theoriegruppe des Laboratoire Aimé Cotton womöglich klären.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

6.1 Zusammenfassung

Die vorliegende Diplomarbeit behandelt die folgenden drei thematischen Schwerpunkte, die alle mit der Photoassoziation von ultrakalten Cs₂-Molekülen verknüpft sind:

Fallenverlustdynamik Die Photoassoziation von ultrakalten Atomen führt zu einem Fallenverlust, der hier als Nachweismethode dient. Um aus dem Fallenverlust Ratenkoeffizienten bestimmen zu können, wird die Verlustdynamik eingehend untersucht. In diesem Zusammenhang wird ein Modell aufgestellt, das den photoassoziativen Verlustprozess beschreibt. An Hand von Photoassoziationsmessungen am 0_g^- -Zustand an der $(6^2s_{1/2} + 6^2p_{3/2})$ -Asymptote bei einer Frequenzverstimmung von -1400 GHz und -2000 GHz unterhalb der Dissoziationsgrenze wird dieses Modell als verlässliche Methode verifiziert, um aus dem Teilchenzahlverlust einen Ratenkoeffizienten angeben zu können. Bei maximaler Photoassoziationsrate wird eine Fallenentleerung bis auf 20 % der Anfangsteilchenzahl erreicht, begleitet von einer Erhöhung der effektiven Temperatur von 40 μ K bis auf 120 μ K. Der entsprechende Ratenkoeffizient liegt bei bis zu $4 \cdot 10^{-11} \text{cm}^3/\text{s}$, was annähernd dem unitären Limit für den Stoßquerschnitt entspricht. In diesem Fall haben elastische und photoassoziative Stoßrate die gleiche Größenordnung, so dass nicht mehr ein Atomensemble im thermischen Gleichgewicht vorausgesetzt werden kann.

Intensitätseffekte Die Abhängigkeit der Anregungsrate von der Intensität eines freien Atompaares in einen gebundenen Molekülzustand durch Photoassoziation wird untersucht. Dies erfolgt bei Intensitäten von bis zu 300Wcm^{-2} bei einer Verstimmung von -2000 GHz unterhalb der Dissoziationsgrenze des

0_g^- -Potentials. Für große Intensitäten wird eine nichtlineare Abhängigkeit des Ratenkoeffizienten von der Intensität beobachtet, was auf die Sättigung des Übergangs hindeutet. Die Streuwahrscheinlichkeit wird mittels des für die Fallenverlustdynamik gewonnenen Modells aus den experimentellen Daten extrahiert. Die so bestimmte Streuwahrscheinlichkeit stößt für hohe Intensitäten in den Bereich des unitären Limits vor. Da das unitäre Limit nicht überschritten werden kann, stellt dies ein weiteres Indiz für das Erreichen der Sättigung des Übergangs dar.

Unter Anwendung der Theorie für Intensitätseffekte bei der Photoassoziation von A. Simoni und P. S. Julienne [Sim02] wird die Sättigungsintensität bestimmt. Dies geschieht für zwei unabhängige Datensätze, und zwar jeweils aus der Messung der Breite und der extrahierten Streuwahrscheinlichkeit. Im Fall der Breite wird ein systematisches Abweichen der Intensitätsabhängigkeit der gemessenen Daten vom erwarteten Verlauf beobachtet. Eine mögliche intensitätsabhängige Lichtverschiebung der Resonanzen wird im Rahmen eines Fehlers von 9 MHz nicht beobachtet. Mit Hilfe der Anpassung einer die Abhängigkeit der Streuwahrscheinlichkeit von der Intensität beschreibenden Funktion [Sim02] wird die Sättigungsintensität zu $480_{-230}^{+330} \text{ Wcm}^{-2}$ bestimmt. Dies ist in guter Übereinstimmung mit der aus dem zweiten Datensatz bestimmten Sättigungsintensität von $490_{-250}^{+290} \text{ Wcm}^{-2}$. Außer in den in dieser Arbeit präsentierten Messungen wurde die Sättigung des Atom-Molekül-Übergangs quantitativ nur für ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ [Sch01, Sch02] untersucht.

Modulation der Grundzustandswellenfunktion Im letzten Teil der Arbeit werden die Übergangsstärken für den Atom-Molekül-Übergang für die 0_g^- -Linie bei -1300 GHz bis -2300 GHz Verstimmung von der Dissoziationsgrenze bestimmt. Mittels eines Modells [Boh99] werden die Franck-Condon-Faktoren aus den Fallenverlusten berechnet. Die so bestimmten Franck-Condon-Faktoren werden mit theoretisch berechneten [Dul03] verglichen. Abweichungen der experimentell und von den theoretisch bestimmten Franck-Condon-Faktoren müssen in einer zukünftigen Zusammenarbeit mit der Theoriegruppe am Laboratoire Aimé Cotton untersucht werden.

6.2 Ausblick

Technische Verbesserungen Zum Erreichen hoher Photoassoziationsraten ist ein guter Überlapp zwischen Atomwolke und Photoassoziationslaser essentiell. Im linken Teil von Abbildung 6.1 ist der Überlapp als Funktion der Strahltaile des Photoassoziationslasers dargestellt. Als Überlapp ist das Produkt aus zigarrenförmiger Atomverteilung mit dem gaußschen Strahl

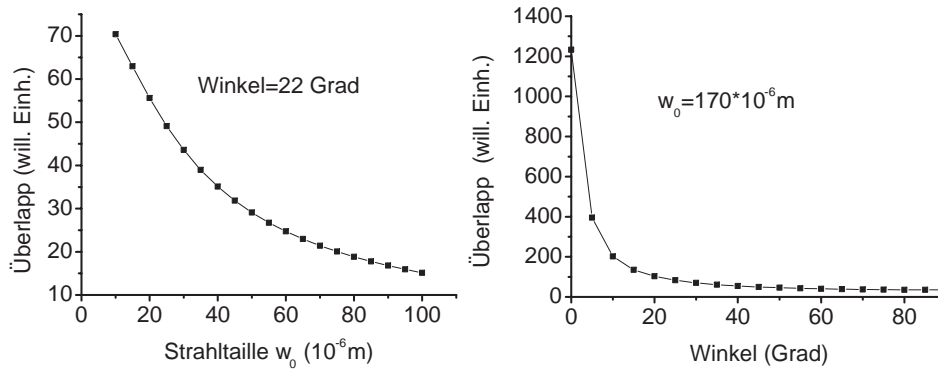


Abbildung 6.1: Berechneter Überlapp von Atomwolke und Photoassoziationslaserstrahl als Funktion der Strahltaile des Photoassoziationslaser (linkes Bild) und als Funktion des Winkels zwischen beiden (rechtes Bild). Bei einem Winkel von 26° Grad, wie er bei den hier im Experiment durchgeführten Untersuchungen gewählt ist, ist der Überlapp bereits um eine Größenordnung kleiner als bei coaxialer Überlagerung.

des Ti:Sa-Lasers über den Raum integriert. Zur Berechnung des in Abbildung 6.1 dargestellten Überlapps ist ein Winkel von 22° Grad zwischen dem Strahl des Ti:Sa-Laser und der Atomwolke und eine Temperatur von $40 \mu\text{K}$ angenommen. Da der Abfall des Überlapps mit der Taille sehr stark ist, ist eine deutliche Vergrößerung der Photoassoziationsrate zu erwarten, wenn der Strahl stärker als auf die bisherige Strahltaile von $170 \mu\text{m}$ fokussiert wird. Schwieriger als eine weitere Fokussierung zu erreichen, ist es, eine bessere Überlagerung des Photoassoziationslaser mit der Atomwolke zu erlangen. Im rechten Teil von Abbildung 6.1 ist der Überlapp als Funktion des Winkels zwischen Atomwolke und Photoassoziationslaser zu sehen. Man sieht, dass bei dem in der Arbeit verwendeten Winkel von 26° der Überlapp schon um etwa eine Größenordnung gegenüber coaxialer Überlagerung abgefallen ist. Um Photoassoziationslaserstrahl und Dipolfalle in Zukunft möglichst parallel zu überlagern, ist folgende Veränderung im Strahlengang denkbar: In den wassergekühlten Strahlblocker in Abbildung 2.7 könnte ein eine wenige Millimeter großes Loch gebohrt werden, durch das der Ti:Sa-Laser die Atomwolke trifft. Der Spiegel mit dessen Hilfe der Ti:Sa-Laser eingekoppelt wird

müsste allerdings gekühlt werden, da er sich durch das auf ihn fallende Licht des CO₂-Lasers zu stark aufheizen könnte. Eine andere Möglichkeit bestünde darin Ti:Sa-Laser und CO₂-Laser mit Hilfe eines kommerziell erhältlichen Strahlkombinierers zu überlagern.

Atom-Molekül-Stöße In Kapitel 3.3.3 wird der Effekt, den Atom-Molekül-Stöße auf den Fallenverlust haben qualitativ beschrieben. In der QUEST gefangene Cs₂-Dimere könnten durch Atom-Molekül-Stöße indirekt nachgewiesen werden. Eine weitergehende Untersuchung soll Gegenstand zukünftiger Untersuchungen am Experiment sein. Insbesondere wird der Einfluss von Atom-Molekül-Stößen auf die Intensitätsuntersuchungen der Photoassoziation untersucht werden. Zusätzlich zu den bereits am $v=6$ des 0_g^- -Zustand durchgeführten Intensitätsuntersuchungen könnte eine Messreihe am $v=20$ interessante Ergebnisse liefern.

Feshbach-Resonanzen Es existieren mehrere Möglichkeiten die Streulänge eines atomaren Gases einzustellen. Eine Möglichkeit besteht darin die starke Veränderung, die die Streulänge in der Nähe einer Feshbach-Resonanz erfährt, auszunutzen. Da Cäsium magnetische Feshbach-Resonanzen besitzt, besteht die Möglichkeit die Streulänge mittels eines äußeren Magnetfeldes durchzustimmen und den Einfluss auf die Photoassoziation zu beobachten. In Analogie zu [Cou98] für Rubidium könnte so die Feshbach-Resonanz von Cäsium bestimmt werden. In Hinblick auf die in dieser Arbeit präsentierten Messungen wären aber insbesondere Sättigungsuntersuchungen bei unterschiedlichen äußeren Magnetfeldern von Interesse. Die Abhängigkeit der Sättigungsintensität von der eingestellten Streulänge würde das bisherige Verständnis des Atom-Molekül-Übergangs erweitern.

Zwei-Farben-Photoassoziation In Erweiterung des hier benutzten Photoassoziationsschemas kann man mit Hilfe eines zusätzlichen Lasers das durch die Photoassoziation angeregte Vibrationsniveau an ein höher angeregtes Molekülniveau oder an den Molekülgrundzustand koppeln. Auf diese Weise könnte die Lage der letzten gebundenen Niveaus des Vibrationsgrundzustands sehr genau bestimmt werden [Tsa97]. Durch spontane Emission aus einem zweifach angeregten Molekülzustand könnten äußerst effizient kalte Grundzustandsmoleküle produziert werden [Bah95].

Photoassoziation von LiCs Das Hauptziel des Experiments in der nahen Zukunft ist die Erzeugung von LiCs-Molekülen. Heteronulkeare Moleküle besitzen ein permanentes elektrisches Dipolmoment, bedingt durch die

unterschiedliche Elektronegativität der Partner (Für LiCs-Moleküle beträgt dies nach [IM86] 5.48 Debye im Grundzustand). Durch das Dipolmoment kann das Molekül an ein externes elektrisches Feld gekoppelt werden. Die Photoassoziation von heteronuklearen Molekülen würde aufgrund der R^{-6} -Abhängigkeit des angeregten Potentials bei - im Vergleich zu homonuklearen Atomen - kleinen internuklearen Abständen stattfinden. So gibt es außer der realisierten Photoassoziation von ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ [Sch02] keine Berichte über die Photoassoziation von heteronuklearen Molekülen. Insbesondere ist die Photoassoziation von heteronuklearen Atomen unterschiedlicher Spezies bisher nicht realisiert worden.

In ersten am Experiment in der QUEST durchgeführten Messungen konnten bisher keine LiCs-Moleküle nachgewiesen werden. Da aber an Hand einer Abschätzung ein etwa zehnmal so kleines Fallenverlustsignal im Vergleich zur Photoassoziation von Cs_2 erwartet wird, ist das Fallenverlustsignal möglicherweise durch das Untergrundrauschen überdeckt gewesen. In diesem Zusammenhang wird die Stabilität des Experiments derzeit durch Umbaumaßnahmen erhöht.

Raman-Seitenband-Kühlung und neue Fallengeometrien Im Moment findet die Implementierung der Methode der Raman-Seitenband-Kühlung [Ker02] für die Cäsiumatome statt. Dadurch wird die Temperatur von Cäsium vermutlich um einen Faktor fünf geringer. Durch sympathetische Kühlung der Li-Atome mit Hilfe von Cs könnte die Paardichte von LiCs um etwa eine Größenordnung erhöht werden. Eine Erhöhung der Paardichte um eine Größenordnung würde mit einer Vergrößerung der Photoassoziationsrate von LiCs um denselben Faktor einhergehen. In diesem Zusammenhang soll außerdem in einer zukünftigen Umbauphase des Experiments die Fallengeometrie geändert werden. Eine gekreuzte Dipolfalle [Gri00] wird die Dichte von Cs und Li um etwa eine Größenordnung erhöhen.

Die Spin-Polarisierung der Atome stellt einen weiteren Vorteil der Raman-Seitenband-Kühlung dar. Die selektive Besetzung von magnetischen Unterzuständen des Grundzustandes ist insbesondere für die Photoassoziation von Bedeutung. So wird für den 0_g^- -Zustand des Cs_2 eine höhere Rate erwartet. Ausserdem wird erwartet, dass inelastische Fallenverluste für nur in den gestreckten magnetischen Unterzuständen ($m_f = \pm f$) präparierte Atome unterdrückt sind. Dann ließen sich auch Photoassoziationsuntersuchungen im $F=4$ durchführen.

Grundzustandsmoleküle Weiterhin sollen die Grundzustandsmoleküle in Zukunft direkt nachgewiesen werden. Mit Hilfe eines REMPI-Schemas

(Resonantly-enhanced multi-photon ionization) werden die Grundzustandsmoleküle in zwei Schritten photoionisiert. Um die ionisierten Moleküle nachzuweisen, wird ein Ionendetektor in die Experimentkammer eingebaut. Sobald es gelingt, die Grundzustandsmoleküle in der QUEST zu fangen und nachzuweisen, können die LiCs Moleküle mittels eines elektrischen Feldes manipuliert werden.

Anhang A

Eichung

In Kapitel 3.2.4 ist die relative Frequenzeichung des Ti:Sa-Lasers beschrieben. In den in der Arbeit präsentierten Messungen wurde dazu ein Fabry-Perot-Etalon verwendet. Dieses ist auf einen Cs-Laser stabilisiert, um unempfindlich gegenüber thermischen Längenänderungen zu sein. Als Gehäuse dient ein Quarzglasgehäuse. Um den freien Spektralbereich weiter zu unterteilen, wird ein AOM eingesetzt.

Bei früheren Messungen wurde zur relativen Frequenzeichung ein leicht modifizierter Aufbau gewählt. Statt des Quarzglasgehäuses, wurde ein Metallgehäuse (Invar) verwendet und zur weiteren Frequenzeichung diente ein Elektro-Optischer-Modulator (EOM). Dieser Aufbau wird hier beschrieben, danach folgt ein Vergleich beider Aufbauten.

Der freie Spektralbereich des Metallresonators wurde mit Hilfe einer RF-Modulation eines Diodenlasers zu $\Delta_\nu = 1021 \pm 10$ MHz und die Halbwertsbreite zu $\delta_\nu = 16.5$ MHz bestimmt (daraus folgt eine Finesse von $F = 62$). Auch hier ist die Länge des Resonators auf einen Cs-Referenzlaser stabilisiert worden. Zudem ist der Metallresonator aktiv temperaturstabilisiert worden, um sicherzustellen, dass das in den Resonator eingebaute Piezoelement Längenänderungen nachregeln kann. Denn in Abhängigkeit der absoluten Temperatur wurde das Durchwandern von bis zu zwei Resonatormoden pro Kelvin beobachtet. Da der Fangbereich des Piezoelements etwa sieben Resonatormoden beträgt, kann der Piezo schon bei etwa 3 Kelvin Temperaturdifferenz nicht mehr nachregeln. Die sehr große Empfindlichkeit gegenüber Temperaturschwankungen, könnte folgende Ursache haben: Bei einem Abstand der Resonatormoden von gerade der halben Wellenlänge haben schon sehr geringe

ge Längenänderungen einen großen Einfluß. Eine grobe Abschätzung:

$$\begin{aligned}
\frac{\Delta\nu}{\Delta T} &= m \frac{\delta\Delta\nu_{\text{FSR}}}{\delta T} \\
&= \frac{c}{\Delta\nu_{\text{FSR}} n \lambda} \frac{c \delta L}{4L^2 \delta T} \\
&= \frac{\alpha c}{n \lambda} \\
&\simeq 180 \text{ MHz/K}
\end{aligned} \tag{A.1}$$

kann den gemessenen Wert in dieser Größe nicht erklären. In der Abschätzung geht ein, dass sich die gesamte Frequenzverschiebung als Produkt der Frequenzverschiebung einer Mode mal der Anzahl der Moden schreiben lässt. Der freie Spektralbereich wurde eingesetzt und abgeleitet. In der Konstante $\alpha = \frac{\delta L}{L} / \delta T$ wurde für die Abschätzung eine Längenänderung im nm-Bereich pro m angenommen. Außerdem erklärt dies auch nicht die beobachtete Abhängigkeit von der absoluten Temperatur. Vielmehr muss man folgenden Gesichtspunkt in Betracht ziehen. Ein nicht weiter temperaturstabiler Resonator ist im Labor immer einem Temperaturgradienten ausgesetzt (z.B. durch die Klimaanlage, Flowbox und die Abwärme anderer elektronischer Geräte). Der Temperaturgradient ist abhängig von der absoluten Temperatur und führt zu Verzerrungen. Zudem ist der thermische Ausdehnungskoeffizienten von Invar zwar sehr gering, allerdings nur in einem Temperaturbereich von ca. 23 C. Deswegen erfolgte eine aktive Temperaturstabilisierung bei 23 C. Es wurde eine Temperaturstabilität von mindestens 20 mK erreicht.

Der zur Unterteilung des freien Spektralbereichs benutzte EOM war in den Strahlengang des Ti:Sa-Lasers eingebaut. Als EOM diente ein in [Gab94] beschriebener Modulator vom Typ eines Travelling-Wave-EOMs. Ein Travelling-Wave-Modulator hat eine Bandbreite von bis zu einem GHz, die sehr viel größer ist als die sonst kommerziell erwerbbarer Modulatoren (typischerweise haben kommerziell erwerbbarer Modulatoren eine Bandbreite von 100 MHz). Um nicht nur ein Seitenband erster Ordnung sondern gleich zwei zu erhalten, wählt man folgenden Aufbau: Der Ausgang zweier VCOs (Voltage Controlled Oscillator) unterschiedlicher Frequenz wird an einem Phasendetektor (ZAD-1, mini-circuits) gemischt und an den EOM angelegt. Mit dem einem VCO (ZOS-300, mini-circuits) und dem anderen VCO (ZOS-535, mini-circuits) werden so zwei Seitenbänder erster Ordnung mit 200 MHz und 400 MHz erzeugt. In Abbildung A.1 sind die Resonatormoden und die wie eben beschrieben erzeugten Seitenbänder zu sehen. Der Ausgang des EOMs ist mit einem 50 Ω Widerstand abgeschlossen. Da der größte Teil der Leistung des Signals erst im Abschlußwiderstand verbraucht wird, kann der EOM mit einigen Watt betrieben werden. Hiedurch lassen sich große Amplituden der

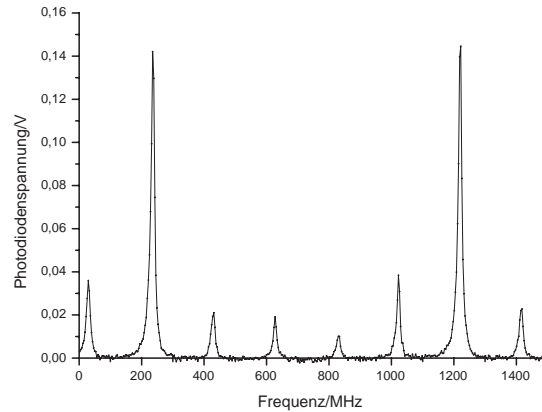


Abbildung A.1: Darstellung der Resonatormoden und ihrer Seitenbänder. Die Seitenbänder sind mit Hilfe eines Elektro-Optischer-Modulator erzeugt.

Seitenbänder erzeugen. Hier wurde ein Hochfrequenzverstärker (ZHL-100-3W mini-circuits) gewählt, der das VCO-Signal auf etwa ein Watt verstärkt hat.

Vergleich Der Resonator aus Quarzglas ist dem aus Invar vorzuziehen, weil keine aktive Temperaturstabilisierung benötigt wird. Im Vergleich ist die Unterteilung des freien Spektralbereichs mit Hilfe eines EOMs deutlich der mit Hilfe eines AOMs vorzuziehen. Zum einen ist die Justage des AOMs und seiner Ordnungen wesentlich aufwendiger und anfälliger als das einfache Einkoppeln des Ti:Sa-Lasers in den EOM. Zum anderen ist der Kristall des AOMs sehr empfindlich und an ihn kann höchstens ein Watt angelegt werden, was die Amplitude der Seitenbänder limitiert. In Abbildung A.2 ist eine Resonatormode und zwei mit Hilfe des AOMs erzeugten Seitenbänder dargestellt. Das eine Seitenband ist nur sehr schwach ausgeprägt.

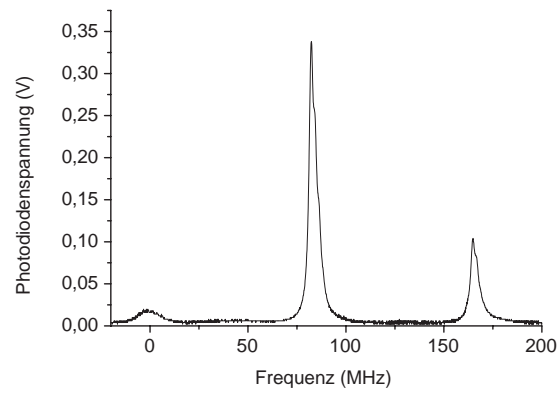


Abbildung A.2: Neben einer Resonatormode sind hier noch zwei Seitenbänder mit stark verschiedener Amplitude dargestellt. Die Seitenbänder sind mit Hilfe eines Akusto-Optischen-Modulators erzeugt.

Literaturverzeichnis

- [Abr96] E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, J. M. Gerton, R. G. Hulet, R. Cote und A. Dalgarno. Triplet s-wave resonance in ${}^6\text{Li}$ collisions and scattering lengths of ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$. *Phys. Rev. A*, 53(R3299), 1996.
- [Bah95] Y.B. Bahns und P.S. Julienne. Ultracold-molecule production by laser-cooled atom photoassociation. *Phys. Rev. A*, 51(R4317), 1995.
- [Bah96] J. T. Bahns, W. C. Stwalley und P. L. Gould. Laser cooling of molecules: A sequential scheme for rotation, translation, and vibration. *J. Chem. Phys.*, 104:9689, 1996.
- [Bet00] Hendrick L. Bethlem, Giel Berden, Floris M. H. Crompvoets, Rienk T. Jongma, André J. A. van Roij und Gerard Meijer. Electrostatic trapping of ammonia molecules. *Nature*, 406:491, 2000.
- [Boh99] J. Bohn und P. Julienne. Semianalytic theory of laser-assisted resonant cold collisions. *Phys. Rev. A*, 60(1):414, 1999.
- [Chi00] C. Chin, V. Vuletic, A. Kerman und S. Chu. High Resolution Feshbach Spectroscopy of Cesium. *Phys. Rev. Lett.*, 85(13):2717, 2000.
- [Chu97] S. Chu, C. Cohen-Tannoudji und W. Phillips. Nobel prize in Physics for development of methods to cool and trap atoms with laser light, 1997.
- [Cli94] R. A. Cline, J. D. Miller und D. J. Heinzen. Study of Rb_2 Long-Range States by High-Resolution Photoassociation Spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 73:632 & 2636 (Errata), 1994.
- [Com03] D. Comparat, N. Vanhaecke, Christian Lisdat und P. Pillet. *Interactions in Ultracold Gases*, Kapitel Formation and Trapping of Cold Molecules. Wiley-VCH, 2003.

- [Cor01] E. Cornell, W. Ketterle und C. Wieman. Nobel prize for the achievement of Bose-Einstein condensation in dilute gases of alkali atoms, and for early fundamental studies of the properties of the condensates, 2001.
- [Cou98] P. Courteille, R.S. Freeland und D.J. Heinzen. Observation of a Feshbach Resonance in Cold Atom Scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 81(1), 1998.
- [DeM02] D. DeMille. Quantum Computation with Trapped Polar Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 88:067901, 2002.
- [Dio01] C. M. Dion, C. Drag, O. Dulieu, B. Laburthe Tolra, F. Masnou-Seeuws und P. Pillet. Resonant Coupling in the Formation of Ultracold Ground State Molecules via Photoassociation. *Phys. Rev. Lett.*, 86:2253, 2001.
- [Don02] Elizabeth A. Donley, Neil R. Clausen, Sarah T. Thompson und Carl E. Wieman. Atom-molecule coherence in a Bose-Einstein condensate. *Nature*, 417:529, 2002.
- [Dra00a] C. Drag, B. Laburthe Tolra, B. T'Jampens, D. Comparat, M. Allegrini, A. Crubellier und P. Pillet. Photoassociative Spectroscopy as a Self-Sufficient Tool for the Determination of the Cs Triplet Scattering Length. *Phys. Rev. Lett.*, 85:1408, 2000.
- [Dra00b] Cyril Drag, Bruno Laburthe Tolra, Olivier Dulieu, Daniel Comparat, Mihaela Vatasescu, Salah Boussen, Samuel Guibal, Anne Crubellier und Pierre Pillet. Experimental Versus Theoretical Rates for Photoassociation and for Formation of Ultracold Molecules. *IEEE J. Quant. Electron.*, 36:1378, 2000.
- [Dul03] Olivier Dulieu. Private Mitteilung, 2003.
- [Eng00a] H. Engler, T. Weber, M. Mudrich, R. Grimm und M. Weidemüller. Very long storage times and evaporative cooling of cesium atoms in a quasi-electrostatic trap. *Phys. Rev. A*, 62(R031402), 2000.
- [Eng00b] Hans Engler. *A quasi-electrostatic trap for neutral atoms*. Dissertation, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, 2000.
- [Fio98] A. Fioretti, D. Comparat, A. Crubellier, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws und P. Pillet. Formation of Cold Cs₂ Molecules through Photoassociation. *Phys. Rev. Lett.*, 80:4402, 1998.

- [Fio99] A. Fioretti, D. Comparat, C. Drag, C. Amiot, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws und P. Pillet. Photoassociative spectroscopy of the $\text{Cs}_2 0_g^-$ long-range state. *Eur. Phys. J. D*, 5:389, 1999.
- [Gab94] Mathias Gabrysch. Chirpkompensation durch elektrooptische Phasenmodulation bei gepulsten Farbstofflaserverstärkern. Diplomarbeit, Ruprecht Karls Universität Heidelberg, 1994.
- [Gab00] C. Gabbanini, A. Fioretti, A. Lucchesini, S. Gozzini und M. Mazzoni. Cold Rubidium Molecules Formed in a Magneto-Optical Trap. *Phys. Rev. Lett.*, 84:2814, 2000.
- [Gri00] Rudolf Grimm, Matthias Weidemüller und Yurii B. Ovchinnikov. Optical dipole traps for neutral atoms. In B. Bederson und H. Walther, Hrsg., *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics*, Jgg. 42, Seite 95. Academic Press, San Diego, 2000.
- [Gri03] Rudolf Grimm. Private Mitteilung, 2003.
- [Hän75] T.W. Hänsch und A.L. Schawlow. Cooling of Gases by Laser Radiation. *optical communications*, 13(68), 1975.
- [Hön79] G. Höning, M Czajkowski, M. Stock und W. Demtröder. High resolution laser spectroscopy of Cs_2 . *J. Chem. Phys.*, 71(2138), 1979.
- [Hud02] J. J. Hudson, B. E. Sauer, M. R. Tarbutt und E. A. Hinds. Measurement of the electron electric dipole moment using YbF molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 89(023003), 2002.
- [IM86] Igel-Mann, U. Wedig, P. Fuentealba und H. Stoll. Ground-state properties of alkali dimers XY (X,Y Li to Cs). *Chem Phys.*, 84(5007), 1986.
- [Jul91] P. S. Julienne und J. Vigue. Cold collisions of ground and excited-state alkali-metal atoms. *Phys. Rev. A*, 44(7):4464, 1991.
- [Ker02] A. J. Kerman, V. Vuletic, C. Chin und S. Chu. Beyond Optical Molasses: 3D Raman Sideband Cooling of Atomic Cesium to High Phase-Space Density. *Phys. Rev. Lett.*, 84(439), 2002.
- [Ket96] W. Ketterle und N. J. van Druten. Evaporative Cooling of Trapped Atoms. *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 37(181), 1996.

- [Kra01] Stephan Kraft. Sympathetische Kühlung in einem Gemisch aus ultrakaltem Lithium und Cäsium. Diplomarbeit, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, 2001.
- [Lan02] J. Lange. Photoassoziationsspektroskopie von ultrakaltem Cäsium in optischen Fallen. Diplomarbeit, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, 2002.
- [Mas01] Françoise Masnou-Seeuws und Pierre Pillet. Formation of Ultracold Molecules ($T \leq 200 \mu\text{K}$) via Photoassociation in a Gas of Laser-cooled Atoms. In B. Bederson, Hrsg., *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics*, Jgg. 47, Seite 53. Academic Press, San Diego, 2001.
- [McA96] W. I. McAlexander, E. R. I. Abraham und R. G. Hulet. Radiative Lifetime of the 2P state of lithium. *Phys. Rev. A*, 54(R5), 1996.
- [McK02] C. McKenzie, J. Hecker Denschlag, H. Häffner, A. Browaeys, Luis de Araujo, F.K. Fatemi, K.M. Jones, J.E. Simsarian, D. Cho, A. Simoni, E. Tiesinga, P.S. Julienne, K. Helmerson, P.D. Lett, S.L. Rolston und W.D. Phillips. Photoassociation of Sodium in a Bose-Einstein Condensate. *Phys. Rev. Lett.*, 88(12):120403, 2002.
- [Met99] H. Metcalf und P. van der Straten. *Laser Cooling and Trapping*. Springer Verlag, New York, 1999.
- [Mil93] J. D. Miller, R. A. Cline und D. J. Heinzen. Photoassociation Spectrum of Ultracold Rb Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 71:2204, 1993.
- [Muda] M. Mudrich, S. Kraft, J. Lange und M. Weidemüller. Hyperfine-changing collisions in a mixture of optically trapped atoms. *in Vorbereitung*.
- [Mudb] Marcel Mudrich. *Interactions in an optically trapped mixture of ultracold lithium and cesium atoms: Thermalization, spin-exchange collisions and photoassociation*. Dissertation, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik.
- [Mud02] Marcel Mudrich, Stephan Kraft, Kilian Singer, Rudi Grimm, Allard Mosk und Matthias Weidemüller. Sympathetic Cooling with Two Atomic Species in an Optical Trap. *Phys. Rev. Lett.*, 88:253001, 2002.

- [Nik99] A. N. Nikolov, E.E. Eyler, X. T. Wang, J. Li, H. Wang, W. C. Stwalley und P. L. Gould. Observation of Ultracold Ground-State Potassium Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 82:703, 1999.
- [Pil97] P. Pillet, A. Crubellier, A. Bleton, O. Dulieu, P. Nosbaum, I. Mourachko und F. Masnou-Seeuws. Photoassociation in a gas of cold alkali atoms. *J. Phys. B*, 30:2801, 1997.
- [Reg03] C. A. Regal, C. Ticknor, J. L. Bohn und D. S. Jin. Creation of ultracold molecules from a Fermi Gas of Atoms. *nature*, 424:47–50, 2003.
- [Ros92] J. M. Rost, J. C. Griffin, B. Friedrich und D. R. Herschbach. Pendular states and spectra of oriented linear molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 68:1299, 1992.
- [San00] L. Santos, G. V. Shlyapnikov, P. Zoller und M. Lewenstein. Bose-Einstein Condensation in Trapped Dipolar Gases. *Phys. Rev. Lett.*, 85:1791, 2000.
- [Sch01] U. Schlöder, C. Silber und C. Zimmermann. Photoassociation of heteronuclear lithium. *Appl. Phys. B*, 763:801, 2001.
- [Sch02] U. Schlöder, C. Silber, T. Deuschle und C. Zimmermann. Saturation in heteronuclear photoassociation of ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$. *Phys. Rev. A*, 66:061403(R), 2002.
- [Sim02] A. Simoni, P.S. Julienne, E. Tiesinga und C.J. Williams. Intensity effects in ultracold photoassociation line shapes. in preparation, 2002.
- [Stw99] William C. Stwalley und He Wang. Photoassociation of Ultracold Atoms: A New Spectroscopic Technique. *J. Mol. Spectrosc.*, 195:194, 199.
- [Tak98] T. Takekoshi, B. M. Patterson und R. J. Knize. Observation of Optically Trapped Cold Cesium Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 81:5105, 1998.
- [Tay72] J. R. Taylor. *Scattering Theory*. Wiley, New York, 1972.
- [Tho87] H. R. Thorsheim, J. Weiner und P. S. Julienne. Laser-Induced Photoassociation of Ultracold Sodium Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 58:2420, Juni 1987.

- [Tow95] C. Townsend, N. Edwards, C. Cooper, K. Zetie und C. Foot. Phase-space density in the magneto-optical trap. *Phys. Rev. A*, 52(2):1423, 1995.
- [Tsa97] C. C. Tsai, R. S. Freeland, J. M. Vogels, H. M. Boesten, B. J. Verhaar und D. J. Heinzen. Two-Color Photoassociation Spectroscopy of Ground State Rb₂. *Phys. Rev. Lett.*, 79(7), 1997.
- [Vat00] M. Vatasescu, O. Dulieu, C. Amiot, D. Comparat, C. Drag, V. Kokoouline, F. Masnou-Seeuws und P. Pillet. Multichannel tunneling in the photoassociation spectrum. *Phys. Rev. A*, 61:044701, 2000.
- [Web03a] T. Weber, J. Herbig, M. Mark, H.-C. Nägerl und R. Grimm. Bose-Einstein Condensation of Cesium. *Science*, 299(232), 2003.
- [Web03b] T. Weber, J. Herbig, M. Mark, H.-C. Nägerl und R. Grimm. Three-body recombination at large scattering lengths in an ultracold atomic gas. to be published, 2003.
- [Wei98] J. D. Weinstein, R. deCarvalho, T. Guillet, B. Friedrich und J. M. Doyle. Magnetic trapping of calcium monohydride molecules at millikelvin temperatures. *Nature*, 395:148, 1998.
- [Wei00] Matthias Weidemüller. *Mixtures of ultracold atoms and the quest for ultracold molecules*. Habilitationsschrift, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, 2000.
- [Win75] D. Wineland und H. Dehmelt. Proposed $10^{-14} \delta\nu/\nu$ Laser Fluorescence Spectroscopy on TI⁺ Mono-Ion Oscillator. *Bull. Am. Phys. Soc.*, 20:637, 1975.
- [Woh00] Wendel Wohlleben. Simultane Speicherung von Lithium und Cäsium in einer quasi-elektrostatischen Dipolfalle. Spinändernde Stöße und sympathetische Evaporation. Diplomarbeit, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, 2000.
- [Wyn00] Roahn Wynar, R. S. Freeland, D. J. Han, C. Ryu und D. J. Heinzen. Molecules in a Bose-Einstein Condensate. *Science*, 287:1016, 2000.

Danksagung

Der Abschluss dieser Diplomarbeit bietet Gelegenheit, mich bei all denjenigen zu bedanken, die zum Gelingen dieser Diplomarbeit beigetragen haben. Mein Dank gilt Prof. Dr. Dirk Schwalm für die Überlassung des Themas und die hervorragende Infrastruktur am Institut.

Ganz besonders danke ich Herrn Prof. Dr. Matthias Weidemüller für die Aufnahme in seine dynamische und nette Gruppe und für die freundliche, aufgeschlossene und hilfsbereite Art der Betreuung bei der Durchführung und Vollendung der Arbeit. Die bewundernswerte Schnelligkeit, mit der er Locks einstellte und Stoßtheoriepaper verstand, wird mir in nachhaltiger Erinnerung bleiben. Auch für die mir ermöglichte Teilnahme an verschiedenen Konferenzen bin ich ihm sehr dankbar.

Roland Wester habe ich ein tiefergehendes Verständnis vieler physikalischer Zusammenhänge zu verdanken. Für die klugen Einfälle und wertvollen Hilfen bei der Auswertung danke ich ihm sehr.

Marcel Mudrich hat mich in viele experimentelle Details eingeführt, und auch bei der Auswertung der Messungen habe ich unglaublich viel von ihm gelernt. Seine Ideen und sein persönlicher Einsatz haben wesentlich zur Lösung vieler Probleme beigetragen - ein herzliches Dankeschön!

Stephan Kraft und Jörg Lange haben mir durch ihre Erfahrung beim Experimentieren sehr viel beigebracht. Auch für die vielen gemeinsamen Stunden und die Zusammenarbeit im Labor möchte ich mich bei ihnen bedanken.

Für viele Tipps und Kniffe in Sachen Elektronik danke ich Marc Eichhorn. Bei den „Rydbergern“ (Kilian Singer, Markus Reetz-Lamour, Simon Fölling und Michaela Tscherneck) möchte ich mich für regen Material- und Gedankenaustausch und fast immer gewonnene Basketballspiele bedanken!

Die interessanten Gespräche mit Jochen Mikosch zu den verschiedensten Tages- und Nachtzeiten hätte ich nicht missen wollen.

Auch bei dem Rest der Laserkühler (Björn Eike, Achim Dahlbokum und Wenzel Salzmann) möchte ich mich für die gute Zusammenarbeit bedanken.

Laserjustage, Kaffee und Kuchen wären ohne Helga Krieger nicht denkbar gewesen.

Meinen Eltern und meiner Schwester möchte ich ganz herzlich für die Unterstützung während der gesamten Dauer der Arbeit danken.

Erklärung:

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den