

**Realisation eines Materiewelleninterferometers für Moleküle
und neue Möglichkeiten zur Beobachtung
von Atom-Molekül-Stößen**

Vom Fachbereich Physik der
Universität Hannover

zur Erlangung des Grades

**Doktor der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.**

genehmigte Dissertation

von

Dipl.-Phys. Christian Lisdat
geboren am 5.7.1972 in Hamburg

2001

Referent: Prof. Dr. E. Tiemann

Korreferent: Prof. Dr. J. Großer

Tag der Promotion: 20. April 2001

Abstract

Christian Lisdat

Realisation eines Materiewelleninterferometers für Moleküle und neue Möglichkeiten zur Beobachtung von Atom-Molekül-Stößen

Diese Arbeit befaßt sich mit der Realisation eines Materiewelleninterferometers mit laser-induzierten Strahlteilern an einem K_2 -Molekülstrahl, sowie Untersuchungen zur Beobachtbarkeit von Stößen zwischen Atomen und Molekülen mit diesem Interferometer.

Der Aufbau besteht aus vier paarweise gegenläufig angeordneten Laserstrahlen zur Aufspaltung und Rekombination der Materiewelle, wie es von Bordé erstmals vorgestellt wurde. Diese Anordnung für optische Übergänge ist vergleichbar mit der von Ramsey für Mikrowellen verwendeten.

Die Übergänge finden zwischen dem elektronischen Grundzustand $X \ ^1\Sigma_g^+$ und dem $b \ ^3\Pi_u(0^+)$ -Zustand statt, dessen Lebensdauer durch Beimischung des $A \ ^1\Sigma_u^+$ -Zustands bestimmt wird. Basierend auf eigenen spektroskopischen Untersuchungen und Literaturdaten wurde eine Entstörung beider Zustände sowohl mit einem lokalen Ansatz, als auch mit einer vollständig gekoppelten Beschreibung (Fourier-Grid) durchgeführt. Nur der Fourier-Grid-Ansatz erlaubte eine befriedigende Beschreibung der Messungen. Es gelang außerdem erstmals die Beobachtung und Interpretation der Hyperfeinstruktur des b-Zustands.

Auf diesen Übergängen wurden Materiewelleninterferenzen beobachtet und mit Simulationsergebnissen verglichen. Verschiedene Modulationsverfahren zur Vereinfachung der Interferogramme auf den Hyperfeinmultipletts wurden erprobt, sowie die Abhängigkeit der Interferogramme von der Rotationsquantenzahl untersucht.

Stöße zwischen Kalium-Atomen und -Molekülen im Strahl finden aufgrund kleiner Relativgeschwindigkeiten der Teilchen bei niedriger Energie statt („kalte Stöße“). Sie führen unter anderem zu einer Phasenverschiebung des Interferogramms.

Durch Anregung der Kalium-Atome wurden die Stoßbedingungen verändert und der Einfluß dieser Änderung auf die Phase des Interferogramms beobachtet. Ein definitiver Nachweis stoßinduzierter Phasenverschiebungen konnte nicht geführt werden. Statistisch sind diese unter bestimmten Bedingungen allerdings wahrscheinlich.

Schlagworte zum Inhalt

Materiewelleninterferometrie, K_2 , Entstörung, Stöße

Abstract

Christian Lisdat

Realisation of a matter-wave interferometer for molecules and new approaches for the investigation of atom-molecule collisions

This thesis deals with the realisation of a matter-wave interferometer with laser-induced beamsplitters in a K_2 beam, as well as with investigations of the feasibility of observing collisions between atoms and molecules with this interferometer.

The setup consists of four travelling laser beams to split up and recombine the matter-wave, as first it was demonstrated by Bordé. This arrangement for optical transitions is comparable to the one realised by Ramsey for micro-waves.

Transitions are induced between the electronic ground state $X^1\Sigma_g^+$ and the state $b^3\Pi_u(0^+)$, of which the lifetime is given by admixture of the $A^1\Sigma_u^+$ state. Based on own spectroscopic investigations and data from literature, a deperturbation analysis of both states was performed with a local approach as well as a fully coupled description (Fourier-grid). Only the Fourier-grid approach led to a satisfactory description of the experimental results. Additionally, the hyperfine structure of the b state was observed and analysed for the first time.

On these transitions, matter-wave interferences were observed and compared to the results of numerical simulations. Several modulation techniques were examined to simplify the interference pattern on the hyperfine multiplets. The dependence of the observed structures on the molecular rotational quantum number was investigated.

Collisions between potassium atoms and molecules within the beam take place at low energies due to low relative velocities of the particles ('cold collisions'). Besides other effects, they introduce a phase shift to the interference pattern.

The conditions for the collisions were changed by the excitation of potassium atoms. It was attempted to observe a so induced phase shift of the interference pattern. Conclusive proof was not found, although under certain experimental conditions collisional influences seem to be likely in a statistical sense.

Keywords of the contents

matter-wave interferometer, K_2 , deperturbation, collisions

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	1
2 Vorbetrachtungen zur Ramsey-Bordé-Interferometrie	5
2.1 Prinzip eines Ramsey-Bordé-Interferometers.....	5
2.2 Theoretische Beschreibung eines Ramsey-Bordé-Interferometers	9
2.3 Simulationen von Interferenzsignalen	15
3 Auswirkung von Stößen auf das Interferenzsignal.....	21
3.1 Einfluß von Stößen auf eine Materiewelle	21
3.2 Berechnung der Streuamplitude	25
3.3 Konsequenzen für ein Ramsey-Bordé-Interferometer	31
4 Experimentelle Komponenten	35
4.1 Der Molekülstrahl.....	35
4.1.1 Geschwindigkeitsmessung	38
4.2 Die Fluoreszenzdetektion.....	39
4.3 Das Laserspektrometer	41
5 Spektroskopie am $A\ ^1\Sigma_u^+ - b\ ^3\Pi_u$ System von K_2	47
5.1 Grundlagen.....	47
5.2 Kopplung von Zuständen in Born-Oppenheimer-Näherung.....	49
5.3 Entstörung des $A\ ^1\Sigma_u^+ - b\ ^3\Pi_u$ Systems	53
5.3.1 Spektroskopische Untersuchungen	54
5.3.2 Lokale Entstörung im Dunham-Formalismus	57
5.3.3 Entstörung mit der Fourier-Grid-Methode	61
5.4 Hyperfeinstruktur im $b\ ^3\Pi_u$ -Zustand.....	67
5.4.1 Analyse der Hyperfeinmultipletts	67
5.4.2 Rotationsabhängigkeit der Hyperfeinparameter	72

6 Materiewelleninterferometrie.....	77
6.1 K_2 als Wellenpaket zur Interferometrie	77
6.2 Der Interferometeraufbau	79
6.3 Charakterisierung des Interferometers.....	82
6.3.1 Variation des Zonenabstands.....	86
6.3.2 Variation des Drehimpulses.....	87
6.4 Modulationstechniken.....	90
6.4.1 Optisches Pumpen.....	90
6.4.2 Amplitudenmodulation von Laserstrahlen im Interferometer	93
6.4.3 Frequenzmodulation von Laserstrahlen im Interferometer.....	95
7 Experimente zu Stößen im Molekülstrahl.....	97
7.1 Abschätzung der Effekte.....	97
7.2 Experimentelle Vorgehensweise.....	99
7.2.1 Manipulation der Atome	100
7.2.2 Aufzeichnung der Spektren	102
7.2.3 Auswertung der Interferenzsignale	104
7.3 Ergebnisse	106
7.3.1 Anregung des 8s-Zustands	106
7.3.2 Anregung des 12s-Zustands	111
7.3.3 Anregung des 4p-Zustands.....	113
8 Zusammenfassung und Ausblick	115
Anhang A	123
Anhang B	126
Literaturverzeichnis	131

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 2.1:	Absorption eines Photons aus einem Laserstrahl zur Aufspaltung einer Materiewelle	6
Abbildung 2.2:	Schema eines Ramsey-Bordé-Interferometers mit allen auftretenden Verzweigungen.....	8
Abbildung 2.3:	Beispiele einer sinc- und einer Gauß-Funktion	15
Abbildung 2.4:	Simulierte Interferenzen	17
Abbildung 2.5:	Simulationsergebnisse eines vollständigen Interferometersignals	18
Abbildung 2.6:	Vergleich zweier Simulationen für unterschiedliche Drehimpulse	20
Abbildung 3.1:	Schematischer Interferometeraufbau mit Gaszelle.....	25
Abbildung 3.2:	Berechnung des Beitrags einzelner Streuwellen l für verschiedene Relativgeschwindigkeiten der Stoßpartner	28
Abbildung 3.3:	Produkt $1/k \cdot \text{Re } f(k,0)$ über der Relativgeschwindigkeit v_{rel}	30
Abbildung 3.4:	Schema eines Interferometers mit verschiedenen Brechungsindizes $n_{1,2}$ für unterschiedliche innere Zustände des Moleküls	32
Abbildung 4.1:	Schematischer Aufbau der Molekülstrahlapparatur	36
Abbildung 4.2:	Doppler-Detektor.....	38
Abbildung 4.3:	Abbildungsoptik für Fluoreszenz.....	40
Abbildung 4.4:	Schematischer Aufbau des Diodenlaserspektrometers	42
Abbildung 4.5:	Schema des verzögerten Selbstheterodyn-Verfahrens	43
Abbildung 4.6:	Selbstheterodyn-Spektrum	43
Abbildung 4.7:	Teil des Hyperfeinspektrums der Rubidium- D_2 -Linie	45
Abbildung 5.1:	Vereinfachtes Potentialschema des K_2 -Moleküls.....	47
Abbildung 5.2:	Schematische Darstellung der Termfolgen von gestörten und ungestörten Rotationsniveaus.....	51
Abbildung 5.3:	Bandenköpfe von $^{39}K_2$ und $^{39-41}K_2$	55
Abbildung 5.4:	Zusammenstellung der verwendeten Daten für den A- und b-Zustand	56
Abbildung 5.5:	Schema des Programmablaufs zur lokalen Entstörung	60
Abbildung 5.6:	Singulettcharakter von A- und $b(0^+)$ -Zustand	63
Abbildung 5.7:	Verschiebungen von gekoppelten Niveaus in A- und $b(0^+)$ -Zustand.	63
Abbildung 5.8:	Überlappintegrale der Vibrationsniveaus 0 und 27 des b-Zustands mit verschiedenen Niveaus des A-Zustands	64
Abbildung 5.9:	Für Na_2 berechnete Abhängigkeit des nichtdiagonalen Spin-Bahn-Parameters vom Kernabstand R	65

Abbildung 5.10: Hyperfeinstruktur des Übergangs $b^3\Pi_u(0^+) \leftarrow X^1\Sigma_g^+$	69
Abbildung 5.11: R(13)-Linie des Übergangs $27 - 0 b^3\Pi_u(0^+) \leftarrow X^1\Sigma_g^+$ mit numerischer Anpassungen.....	71
Abbildung 5.12: Werte der Kopplungskonstante C der magnetischen Dipolwechselwirkung über der Rotationsquantenzahl J'	74
Abbildung 5.13: Termenergien der Vibrationsbanden $v_A = 17$ und $v_{b0} = 27$	75
Abbildung 5.14: Gefittete Werte des eqQ -Parameters für $v_{b0} = 27$	75
Abbildung 6.1: Berechnete Lebensdauern der 0^+ -Komponente des $b^3\Pi_u$ -Zustands.....	79
Abbildung 6.2: Aufbau zur Erzeugung der Laserstrahlen für ein Ramsey-Bordé-Interferometer	80
Abbildung 6.3: Hyperfeinmultiplett in Sättigungsspektroskopie am Strahl	83
Abbildung 6.4: Materiewelleninterferenz am Beispiel der R(25) $27 - 0 b(0^+) \leftarrow X$	84
Abbildung 6.5: Periodenlänge der Interferenzen in Abhängigkeit von D	86
Abbildung 6.6: Interferogramme der R(14)- bzw. R(0)-Linie der $27 - 0$ Bande	87
Abbildung 6.7: Interferenzen bei großen Dunkelzonenlängen D	89
Abbildung 6.8: Aufbau für optisches Pumpen und resultierendes Spektrum.....	91
Abbildung 6.9: A: Spektrum mit optischem Pumpen B: Mit Lock-In-Nachweis	92
Abbildung 6.10: A: Amplitudenmodulation der Laserstrahlen 2 und 3, B: Laserstrahlen 1 und 2	94
Abbildung 6.11: Erste Ableitung des Interferenzsignals durch FM-Spektroskopie	95
Abbildung 7.1: Simulationsergebnisse für typische experimentelle Bedingungen.....	98
Abbildung 7.2: Strahlengang zur Erzeugung eines „Rückpumper“	101
Abbildung 7.3: Frequenz des Maximums aufeinanderfolgender Registrierungen der R(0)-Linie	104
Abbildung 7.4: Gemessene Phasendifferenzen bei Anregung des 8s-Zustands.....	107
Abbildung 7.5: Fourier-transformierte Differenzen von Interferogrammen	108
Abbildung 7.6: Gemessene Phasendifferenzen ohne Anregung von Kalium-Atomen.....	109
Abbildung 7.7: Histogramme ohne und mit Besetzung des 8s-Zustands	110
Abbildung 7.8: Kalium D_2 -Linie mit und ohne AC-Stark-Aufspaltung des 4p-Niveaus ...	111
Abbildung 7.9: Gemessene Phasendifferenzen und Häufigkeit einzelner Meßergebnisse bei Anregung des 4p $^2P_{3/2}$ -Zustands.	113

1 Einleitung

Eine der fundamentalen Aussagen der Quantenmechanik ist der Dualismus von Welle und Teilchen. Dieses in der makroskopischen Welt nicht direkt beobachtbare Phänomen hat seit Einführung der Quantenmechanik zu einer Reihe grundlegender Experimente geführt, die das Wechselspiel von Welle und Teilchen untersuchen.

Zunächst standen dabei Untersuchungen im Vordergrund, die sich mit dem Teilchencharakter von elektromagnetischen Wellen beschäftigten. Durch die Zuordnung des Impulses p zur Wellenlänge λ über die Beziehung $p = h/\lambda$ wurden die Verknüpfung des klassischen, durch Maxwells Theorie beschriebenen Wellenbilds und der Teilcheneigenschaft des Photons geschaffen. Durch diesen Schritt ist beispielsweise die Interpretation des Compton-Effekts oder des Mößbauer-Effekts möglich.

De Broglie kam als erster zu der Überzeugung, daß die Beziehung zwischen Impuls und Wellenlänge nicht nur auf klassische Wellen wie Licht anwendbar ist, sondern auch auf Teilchen übertragbar sein muß. Typische Wellenphänomene wie Beugung und Interferenz müssen folglich auch für Materie beobachtbar sein. Aufgrund der mit den großen Massen der Teilchen verbundenen großen Impulse und damit kurzen de-Broglie-Wellenlängen erfordert deren Beobachtung aber größere Auflösung bzw. kleinere beugende Strukturen, als dies bei Licht der Fall ist. Trotzdem gelang relativ schnell die Realisation von Beugungs- und Interferenzexperimenten mit Elektronen oder Neutronen beispielsweise an Kristallen.

Die Erweiterung der Experimente mit Materiewellen auf komplexere Teilchen wie Atome oder sogar Moleküle ist der konsequente nächste Schritt. Durch die extrem kurzen Wellenlängen um 10^{-12} m bei Raumtemperatur ermöglichen diese prinzipiell Messungen mit höchster Auflösung – Voraussetzung dafür ist aber der Aufbau eines Meßinstruments wie eines Interferometers. Problematisch war lange Zeit die Bereitstellung atomoptischer Komponenten zur Aufspaltung und Rekombination einer Materiewelle, wie sie in einem Interferometer benötigt werden.

Durch die Entwicklung in der Nanotechnologie und der Laserphysik in den letzten zwei Jahrzehnten wurden zwei Wege zur Realisation von atomaren und molekularen Interferometern ermöglicht.

Es können jetzt Transmissionsgitter erzeugt werden, die aufgrund ihrer kleinen Periodizität (um 200 nm) direkt als Strahlteiler für Materiewellen genutzt werden können. Aus einer Folge von Gittern kann so ein komplettes Interferometer konstruiert werden, indem die Ma-

teriewelle an Gittern aufgeteilt, umglenkt und rekombiniert wird. Mit Interferometern dieses Typs können Untersuchungen von Inertiaeffekten wie Rotationen mit hoher Präzision durchgeführt werden [1,2]. Die Rolle der mechanischen Strahlteiler kann aber auch von stehenden, nicht resonanten Lichtfeldern übernommen werden, an denen die Materiewelle durch die Dipolkraft gebeugt wird [3].

Da die zur kohärenten Aufspaltung der Materiewelle verwendeten Gitter nicht den inneren Zustand des Teilchens beeinflussen, eignen sie sich gut für die Verwendung von immer komplexeren Teilchen in der Interferometrie. Experimente dieser Art dienen dem Studium der Bedeutung einer wachsenden Zahl von Freiheitsgraden des Systems für den Verlust der Kohärenz der präparierten Materiewelle. Es wurde bereits Beugung von so komplexen Teilchen wie C_{60} - oder C_{70} -Molekülen an mechanischen Gittern beobachtet [4].

Die inneren Freiheitsgrade des Teilchens sind für das Konzept eines Strahlteilers mit einem resonanten Laserfeld dagegen von großer Bedeutung. Dabei wird ausgenutzt, daß bei der Absorption eines Photons aus einer Lasermode der Photonenimpuls auf das Teilchen übertragen wird. Bei geeigneter Wahl der Wechselwirkungsparameter kann so ein Strahlteiler für die Materiewelle gebaut werden, dessen Ausgänge sich nicht nur im Impuls, sondern auch im inneren Zustand des Teilchens unterscheiden. Eine Abfolge mehrerer Strahlteiler kann wie bei mechanischen Gittern zu einem Interferometer zusammengesetzt werden.

So erreichen symmetrische, den Interferometern mit mechanischen Strahlteilern vergleichbare Aufbauten bei Messungen von Rotationen [5] oder Beschleunigungen [6] die Empfindlichkeit der etablierten optischen Interferometer oder können sie sogar übertreffen [7].

Eine andere mögliche Geometrie für die Abfolge der Strahlteiler durch Laserfelder ist die von Bordé erstmals verwendete unsymmetrische Anordnung (Ramsey-Bordé-Anordnung, z.B. [8,9,10]). Sie bietet die Möglichkeit, das Interferenzsignal durch die Frequenz der Laserstrahlung für den Strahlteiler abzustimmen. Damit ist es möglich, atomoptische Frequenzstandards zu verwirklichen, die aufgrund der verwendeten äußerst scharfen Übergänge und der damit verbundenen hohen Güte das Potential für sehr hohe Präzision haben [11,12,13]. Durch das hohe Auflösungsvermögen sind aber auch andere spektroskopische Experimente möglich, wie die Bestimmung von Einflüssen externer Felder [14] oder unter Ausnutzung des quantenmechanischen Verhaltens der Materie die Messung topologischer Phasen [15].

Obwohl erste Materiewelleninterferometer vom Ramsey-Bordé-Typ mit Molekülen arbeiteten [8], wurde Molekülen bei diesem Interferometertyp im Gegensatz zu denen mit mechanischen Strahlteilern wenig Beachtung geschenkt. Eine mögliche Ursache ist die etwas kompliziertere Auswahl der geeigneten Übergänge, der allerdings eine große Auswahl an Freiheitsgraden und damit Manipulationsmöglichkeiten gegenübersteht. Diese Freiheitsgrade

können außerdem durch den Strahlteilerübergang explizit spezifiziert werden, es muß folglich nicht mit einer Verteilung der interferierenden Teilchen über viele Zustände gearbeitet werden, wie es mit mechanischen Strahlteilern der Fall ist [4,16].

Ziel dieser Arbeit war es, ein Interferometer vom Ramsey-Bordé-Typ für einfache Moleküle aufzubauen und zu erproben. Als Molekül wurde K_2 gewählt, da es als zweiatomiges Molekül eine gut interpretierbare Niveaustuktur hat. Außerdem sind in der Literatur hinreichend spektroskopische Vorarbeiten vorhanden, die eine Auswahl von Strahlteilerübergängen erleichtern. Nicht zu vernachlässigen ist auch der Vorteil, daß diese im Spektralbereich liegen, in dem mit Diodenlasern preisgünstige und gut handhabbare Strahlungsquellen bereitstehen.

Zu Beginn der Arbeit wurde eine für diese Experimente geeignete Molekülstrahlapparatur entworfen und aufgebaut. Gleiches gilt für ein Diodenlaserspektrometer, das Strahlung mit der benötigten Frequenzstabilität bereitstellt. Parallel wurde Spektroskopie am K_2 durchgeführt, die der genauen Charakterisierung der Interferometerübergänge diene.

Das Interferometer selbst soll zur Untersuchung von Stößen zwischen Kalium-Atomen und K_2 -Molekülen dienen, wobei diese Stöße zwischen Teilchen im Strahl stattfinden sollen. Diese Situation ist besonders interessant, da sich alle Teilchen im Strahl zwar mit einer hohen mittleren Geschwindigkeit bewegen, die Breite der Verteilung in geeigneten Strahlen aber nur wenig über 10 m/s betragen kann und niederenergetische „kalte“ Stöße beobachtbar werden. Durch die Auswahl des molekularen Übergangs für die Strahlteiler des Interferometers werden die Quantenzahlen des Moleküls festgelegt, was zu einer genaueren Spezifikation der Stoßbedingungen führt, als dies bei Verwendung mechanischer, zustandsunspezifischer Strahlteiler möglich ist [16].

Stöße zwischen Atomen und Molekülen bei Temperaturen des Ensembles von wenigen Kelvin sind mit anderen experimentellen Verfahren nur mit erheblichem Aufwand beobachtbar. Zwar lassen sich viele Atome durch Laserkühlung gut zu Temperaturen im sub- μ K-Bereich abkühlen, Molekülen steht dieser Weg aufgrund ihres komplizierteren Niveauschemas derzeit aber nicht offen. Durch Photoassoziation von Molekülen aus kalten Atomen können bezüglich ihrer Translation kalte Moleküle erzeugt werden [17,18], doch ist die Anzahl der so gewonnenen Moleküle derzeit noch relativ klein, was Experimente im allgemeineren Rahmen erschwert. Andere Ansätze, wie das kryogene Kühlen [19] oder Abbremsen durch zeitlich variierende elektrische Felder [20] von Molekülen, erzeugen zwar auch kalte Ensembles, sind experimentell aber sehr aufwendig.

Dies gilt auch für Experimente mit Atomen im Regime der Quantenentartung, derzeit also vorwiegend in sogenannten Bose-Einstein-Kondensaten. Es sind viele Arbeitsgruppen sowohl

theoretisch als auch experimentell an der Bildung von Molekülen in solchen Kondensaten interessiert.

Auch wenn in unserem Experiment am Strahl nicht zu derart tiefen Temperaturen vorge-
drungen werden kann, sind Untersuchungen der Wechselwirkung von kalten Atomen und
Molekülen gerade in Hinblick auf die Laserkühlung von Bedeutung, wenn die zu erwartenden
Fortschritte in der Erhöhung der Molekülzahl und -dichte gemacht werden, da Verluste durch
kalte Atom-Molekül-Stöße zu erwarten sind.

Aus diesem Grund sollen am Ende dieser Arbeit Experimente vorgestellt werden, die Auf-
schluß über die Beobachtbarkeit von kalten Atom-Molekül-Stößen mit einem molekularen
Materiewelleninterferometer geben sollen.

2 Vorbetrachtungen zur Ramsey-Bordé-Interferometrie

Der Einsatz von Materiewelleninterferometern mit laserinduzierten Strahlteilern ist eine etablierte Methode zur Spektroskopie mit höchster Präzision. Sie basieren auf der von N. Ramsey für Mikrowellen realisierten Technik der Spektroskopie mit zwei räumlich getrennten Wechselwirkungszone zwischen Licht und Materie [21]. Die gewählte Geometrie erzeugt eine in Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz oszillierende Anregungswahrscheinlichkeit, deren Periodizität in der Frequenzdomäne durch die Flugzeit zwischen den Wechselwirkungszone gegeben ist.

Die hier beschriebene Konfiguration ist eine Modifikation für Anregungen im optischen Spektralbereich [8,9,10,11], die auf der Wechselwirkung eines Teilchenstrahls mit vier laufenden Lichtfeldern beruht. Es wird nur diese Konfiguration diskutiert, auch wenn Aufbauten mit mehr oder weniger Wechselwirkungszone realisiert werden können [22,23,24].

Im ersten Teil dieses Kapitels werden der prinzipielle Aufbau und die Funktionsweise eines Ramsey-Bordé-Materiewelleninterferometers erläutert. In Kapitel 2.2 folgt eine genauere theoretische Beschreibung, welche die Grundlage für die in den Abschnitten 2.3 und 6.3 vorgestellten Simulationen darstellt. Im Unterkapitel 2.3 soll speziell der Einfluß verschiedener experimenteller Parameter verdeutlicht werden, um ein besseres Verständnis eines solchen Experiments zu ermöglichen.

2.1 Prinzip eines Ramsey-Bordé-Interferometers

Die Funktionsweise von Materiewelleninterferometern mit lichtinduzierten Strahlteilern beruht auf der quantisierten Absorption und Emission eines Photons aus einem Laserfeld. Hierbei wird eine atomare oder molekulare Materiewelle durch die Aufnahme oder Abgabe von Energie und Impuls aus dem Lichtfeld aufgespalten oder abgelenkt. Zum leichteren Verständnis soll hier zunächst ein klassisches Bild eines Strahlteilers vorgestellt werden [11].

Idealisiert wird die Wechselwirkung eines nahresonanten Laserfelds der Frequenz $\nu_L = \omega_L/2\pi$ mit einem Zwei-Niveau-System mit der Übergangsfrequenz $\nu_0 = \omega_0/2\pi$ zwischen Grundzustand $|g\rangle$ und elektronisch angeregtem Zustand $|a\rangle$ angenommen. Die Situation ist in Abbildung 2.1 illustriert.

Des weiteren wird angenommen, die Lebensdauer τ des angeregten Niveaus sei lang gegen die Wechselwirkungszeit mit dem Laserfeld, sodaß spontane Emission zunächst keine Rolle

spielt. Außerdem sei die Laserintensität so niedrig, daß maximal ein Photon mit dem Laserfeld ausgetauscht werden kann.

Aufgrund von Energie- und Impulserhaltung vor und nach der Absorption eines Photons gilt dann für die beschriebene Situation:

$$\frac{\vec{p}_0^2}{2M} + \hbar\omega_L = \frac{(\vec{p}_0 + \hbar\vec{k})^2}{2M} + \hbar\omega_0 \quad \text{mit} \quad |\vec{k}| = \frac{\omega_L}{c} \quad (2.1)$$

M bezeichnet die Masse des Moleküls, c die Lichtgeschwindigkeit und $\hbar = h/2\pi$ das Plancksche Wirkungsquant. Der Anfangsimpuls des Moleküls ist gegeben durch \vec{p}_0 , \vec{k} bezeichnet den Wellenvektor des Laserfelds. Auf der linken Seite der Gleichung steht die kinetische Energie des einlaufenden Teilchens in $|g\rangle$, sowie die Energie eines Photons, rechts die kinetische Energie des Moleküls in $|a\rangle$ nach der Absorption eines Photons und die Anregungsenergie des Moleküls. Man erkennt an Gleichung (2.1), daß durch die Absorption des Photons dessen Impuls auf das Molekül übertragen wird. Bei einer Geometrie, wie in Abbildung 2.1 gezeigt, führt dies zu einer Ablenkung des Moleküls in Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls. Durch Umformen von (2.1) erhält man

$$\vec{k} \cdot \vec{p}_0 = \Delta - \delta \quad \text{mit} \quad \delta = \frac{\hbar k^2}{2M} \quad \text{und} \quad \Delta = \omega_L - \omega_0. \quad (2.2)$$

Es wurde die Verstimmung der Laserfrequenz $\Delta/2\pi$ und der Photonenrückstoß δ eingeführt.

Aus Gleichung (2.2) geht hervor, daß für gegebenes $\Delta \neq \delta$ eine Projektion des k -Vektors auf den Anfangsimpuls des Moleküls vorhanden sein muß, um Energie- und Impulsbilanz zu erfüllen, andernfalls kann es nicht zur Absorption kommen. Selbst bei der in Abbildung 2.1

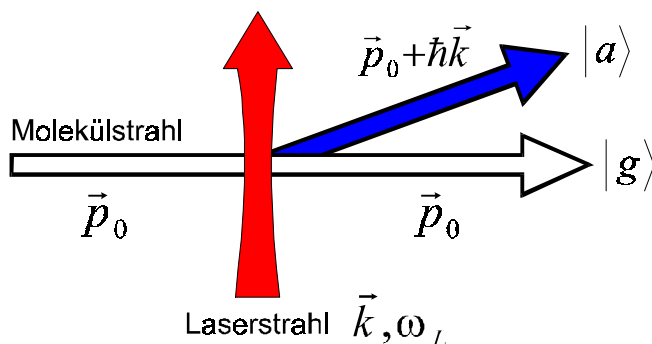


Abbildung 2.1: Absorption eines Photons aus einem Laserstrahl zur Aufspaltung einer Materiewelle

skizzierten „Senkrecht-Geometrie“ steht aufgrund der Unschärferelation grundsätzlich ein Spektrum von Wellenvektoren zur Verfügung, da mit einem räumlich begrenzten Laserstrahl gearbeitet wird. Somit treten auch bei streng monochromatischen Laserfeldern für $\Delta \neq \delta$ Wellenvektoren auf, die Gleichung (2.2) erfüllen, sodaß Photonen absorbiert werden können.

Dies hat zur Folge, daß die Mate-

riewelle im angeregten Zustand für Verstimmungen $\Delta/2\pi$ ungleich $\delta/2\pi$ nicht nur in Richtung des Laserstrahls abgelenkt wird, sondern auch gegenüber dem Teil der Welle im Grundzustand in Richtung des ursprünglichen Impulses \vec{p}_0 beschleunigt wird.

In der Ramsey-Bordé-Geometrie wechselwirken die Teilchen mit vier laufenden Laserwellen. Die Anordnung ist in Abbildung 2.2 dargestellt, sowie alle möglichen klassischen Trajektorien bei Austausch von maximal einem Photon zwischen Molekül und Lasermode pro Laserstrahl. Es entsteht eine Abfolge von vier der eben beschriebenen Strahlteilern, die zu einer Reihe von Trajektorien oder Ausgängen nach dem vierten Strahlteiler führen, in denen sich das Teilchen in dem einen oder anderen inneren Zustand befinden kann.

In Abbildung 2.2 sind in der Wechselwirkungszone mit dem letzten Laserstrahl je zwei Ausgänge im Grund- und angeregten Zustand und die zugehörigen Trajektorien mit Kreisen gekennzeichnet. Zu jedem dieser Ausgänge kann das Molekül auf zwei unterschiedlichen, quantenmechanisch ununterscheidbaren Trajektorien gelangen. Zwischen den Materiewellen aus diesen beiden Pfaden kann es demnach grundsätzlich zur Interferenz kommen. Man bezeichnet solche Trajektorien als geschlossene Pfade im Interferometer.

Anschaulich ist klar, daß es zu einer Interferenz mit optimalem Kontrast kommt, wenn Wellenzüge gleicher Amplitude überlagert werden. Diese Situation ist gegeben, falls in jeder Wechselwirkungszone ein 50% Strahlteiler für jeden Pfad realisiert wird. Der Einfluß der Anregungswahrscheinlichkeit auf das Interferenzsignal wird explizit aber erst im nächsten Kapitel in die Berechnung aufgenommen.

Als Flugrichtung des Molekülstrahls sei eine mittlere Ausbreitungsrichtung angenommen, sodaß Trajektorien einzelner Moleküle z.B. aufgrund der Divergenz des Molekülstrahls eine Impulskomponente senkrecht zu dieser besitzen können. Dies führt zu einer zusätzlichen Verstimmung des Laserfelds von $-k_{\perp}v_{\perp}$ durch den Doppler-Effekt.

In der ersten Dunkelzone des Interferometers mit der Länge D baut sich aufgrund der durch Gleichung (2.2) beschriebenen Beschleunigung der Teilwelle im elektronisch angeregten Zustand unter Berücksichtigung des Doppler-Effekts ein Gangunterschied d_{\parallel}

$$d_{\parallel} = T \frac{\hbar(\Delta - \delta - v_{\perp}k_{\perp})}{p_{\parallel}} \quad (2.3)$$

zwischen den Materiewellen in beiden Zuständen parallel zur Ausbreitungsrichtung auf. $T = D/v_{\parallel}$ gibt die Durchflugszeit durch die Dunkelzone D an.

Anhand von Abbildung 2.2 erkennt man, daß sich in der mittleren Dunkelzone D' geschlossene und damit interferenzfähige Pfade des Interferometers im selben molekularen Zu-

Für die Wahrscheinlichkeit P_b , ein Teilchen im angeregten Zustand zu beobachten, folgt dann:

$$P_b \propto \cos(\phi) = \cos((\Delta - \delta) \cdot 2T) \quad (2.6)$$

Für den zweiten geschlossenen Pfad in Abbildung 2.2 kann man zeigen, daß die Anregungswahrscheinlichkeit P_r dort durch

$$P_r \propto \cos(\phi') = \cos((\Delta + \delta) \cdot 2T) \quad (2.7)$$

gegeben ist. Es sind also zwei Interferenzstrukturen zu erwarten, die im Frequenzraum um $2\delta/2\pi$ versetzt sind. Sie werden wegen ihrer Lage im Vergleich zur Resonanzfrequenz auch als blaue ((2.6), höherfrequente) bzw. rote ((2.7), niederfrequente) Rückstoßkomponenten des Interferometers bezeichnet.

Da die Experimente an einem Molekülstrahl mit einer Verteilung der Anfangsimpulse \vec{p}_0 durchgeführt werden, treten verschiedene Phasenverschiebungen δ durch unterschiedliche Flugzeiten T auf. Anders ausgedrückt bedeutet dies, daß die Moleküle nicht durch monochromatische Wellen mit dem Wellenvektor k beschrieben werden, sondern man von Wellenpaketen spricht, die nur eine endliche Kohärenzlänge besitzen, die durch die Impulsbreite der Geschwindigkeitsverteilung gegeben ist.

Die Folge der Geschwindigkeitsverteilung ist, daß Moleküle der verschiedenen Geschwindigkeitsklassen nur für Verstimmungen $\Delta = \pm\delta$ im blauen bzw. roten Interferometer die gleiche Phasenverschiebung ϕ am Ausgang aufweisen, da nur unter dieser Bedingung keine Beschleunigung des Moleküls in Flugrichtung auftritt. Mit wachsender Verstimmung wächst die Differenz der Phasenverschiebung der Geschwindigkeitsklassen aufgrund der unterschiedlichen Dunkelzeiten T , was zu einem Auswaschen des Interferenzsignals führt. Zur Berechnung eines tatsächlichen Signals muß also über alle Geschwindigkeitsklassen summiert werden.

2.2 Theoretische Beschreibung eines Ramsey-Bordé-Interferometers

In diesem Kapitel wird das Interferenzsignal detaillierter berechnet, um den Einfluß unterschiedlicher Amplituden der Wellenpakete im Grund- und angeregten Zustand auf das Interferenzsignal und den inkohärenten Untergrund zu beschreiben. Die spontane Emission wird später in Form einer effektiven Dämpfung berücksichtigt, die Verteilung der Geschwindigkeiten im Molekülstrahl durch Integration über diese in einem zweiten Schritt.

Für Molekül und Lichtfeld werden die gleichen Bezeichnungen wie im vorherigen Unterkapitel verwendet. Dort gemachte Einschränkungen sollen ebenfalls weiterhin gelten, soweit nichts anderes angemerkt ist. Das elektrische Feld des Laserstrahls sei durch

$$\begin{aligned}\vec{E}^\mp(\vec{r}, t) &= \frac{1}{2} \vec{E}_0(\vec{r}, t) (\exp[i((\omega_L \mp k_\perp v_\perp)t \mp \vec{k}\vec{r} + \phi)] + c.c.) \\ &=: \frac{1}{2} \vec{E}_0(\vec{r}, t) \cdot EXP^\mp\end{aligned}\quad (2.8)$$

gegeben. $\vec{E}_0(\vec{r}, t)$ ist die zeitlich und räumlich langsam variierende Einhüllende des elektrischen Felds. Der Einfluß der Doppler-Verschiebung der Laserfrequenz im Ruhesystem des Moleküls ist durch den Ausdruck $k_\perp v_\perp$ wiedergegeben. v_\perp bezeichnet die Geschwindigkeitskomponente des Moleküls senkrecht zum Molekülstrahl, also in Richtung der Laserstrahlen. Die Vorzeichen berücksichtigen die unterschiedlichen Ausbreitungsrichtungen der Laserstrahlen im Interferometeraufbau. ϕ ist eine globale Phase des Laserfelds. Zur übersichtlicheren Schreibweise der folgenden Formeln wurde für die Summe der Exponentialfunktionen die Abkürzung EXP eingeführt. Es sei auch explizit darauf hingewiesen, daß EXP reell ist und demzufolge $EXP = EXP^*$ gilt.

Die Entwicklung des Systems wird durch die Schrödingergleichung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi\rangle = (\mathbf{H}_{Mol} + \mathbf{H}_w) |\psi\rangle \quad (2.9)$$

beschrieben, in der \mathbf{H}_{Mol} die molekulare Gesamtenergie inklusive der kinetischen Energie der Schwerpunktbewegung und \mathbf{H}_w die Wechselwirkungsenergie von Molekül und Lichtfeld angibt:

$$\mathbf{H}_{Mol} = \begin{pmatrix} p^2/2M + \frac{1}{2}\hbar\omega_0 & 0 \\ 0 & p^2/2M - \frac{1}{2}\hbar\omega_0 \end{pmatrix} \quad (2.10)$$

$$\mathbf{H}_w = \begin{pmatrix} 0 & \hbar/2 \cdot \Omega(\vec{r}, t) \cdot EXP^\mp \\ \hbar/2 \cdot \Omega(\vec{r}, t) \cdot EXP^\mp & 0 \end{pmatrix} \quad (2.11)$$

Die Kopplungsstärke zwischen Feld und Molekül ist in Form der Rabifrequenz Ω eingeführt worden, die das Übergangsmatrixelement des Dipoloperators $\vec{\mathbf{d}}$ zwischen Grundzustand g und angeregtem Zustand a enthält:

$$\hbar\Omega(\vec{r}, t) = \langle a | \vec{E}_0(\vec{r}, t) \vec{\mathbf{d}} | g \rangle, \quad (2.12)$$

Wie schon in Kapitel 2.1 diskutiert wurde, ändert sich der Impuls des Moleküls bei Absorption und Emission nur um den Photonenimpuls $\hbar\vec{k}$.

Betrachtet man die Situation im Bezugssystem des einlaufenden Moleküls, können für den molekularen Impuls p durch Absorption und Emission nur Impulszustände im Abstand von $\hbar k$ erreicht werden, die wiederum mit dem inneren Zustand des Moleküls verknüpft sind. Es erscheint daher sinnvoll, die Anzahl m der aufgenommenen Photonenimpulse neben dem elektronischen Zustand als Basis für $\mathbf{H}_W + \mathbf{H}_{Mol}$ in der folgenden Berechnung zu wählen [8]. Die Zahl m wird als Index an die Bezeichnung des elektronischen Zustands geschrieben.

Ist das Molekül vor der ersten Wechselwirkungszone mit einem Laserstrahl im Grundzustand g_0 , kann durch Wechselwirkung mit dem Laserfeld und Aufnahme eines Photonenimpulses der angeregte Zustand a in zwei Impulszuständen $m = \pm 1$ erreicht werden. Welcher der Zustände a_{+1} oder a_{-1} erreicht wird, hängt von der Ausbreitungsrichtung des Laserfelds ab. Durch Wechselwirkung mit einem weiteren Feld entgegengesetzter Ausbreitungsrichtung können dann auch die Zustände g_{+2} oder g_{-2} erreicht werden. Man kann die Information über die besetzten Zustände in Anlehnung an die Matrixschreibweise in (2.11) in einem Zustandsvektor

$$|\psi\rangle = (\dots g_{m+2}, a_{m+1}, g_m, a_{m-1}, g_{m-2} \dots)^T \quad (2.13)$$

zusammenfassen. m ist hierbei eine gerade, ganze Zahl. Ob sich bei der Absorption oder Emission eines Photons m erhöht oder erniedrigt, hängt von der Ausbreitungsrichtung des jeweiligen Laserstrahles ab. Das abwechselnde Auftreten von a und g geht auf die Struktur der Matrix in (2.11) zurück.

Die Schrödinger Gleichungen (2.9) für Paare von gekoppelten Impulszuständen modifizieren sich dann zu

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} a_{m\pm 1} \\ g_m \end{pmatrix} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} \omega_0 + 2(m\pm 1)^2 \delta & \Omega(\vec{r}, t) \cdot EXP^{\mp} \\ \Omega(\vec{r}, t) \cdot EXP^{\mp} & -\omega_0 + 2m^2 \delta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{m\pm 1} \\ g_m \end{pmatrix}. \quad (2.14)$$

Als kinetische Energie treten im Bezugssystem des einlaufenden Moleküls jetzt die aufgenommenen Photonenimpulse auf.

Durch eine unitäre Transformation durch die Matrix U in ein rotierendes Koordinatensystem und durch Vernachlässigung von Termen, die mit dem Zweifachen der optischen Frequenz oszillieren (rotating wave approximation, [25]), läßt sich Gleichung (2.14) erheblich vereinfachen. Die unitäre Transformation führt zunächst zu

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\tilde{\psi}\rangle = \left(U \mathbf{H} U^\dagger - i\hbar U \frac{\partial}{\partial t} U^\dagger \right) |\tilde{\psi}\rangle, \quad (2.15)$$

wobei U gegeben ist durch:

$$U = \begin{pmatrix} \exp(\frac{i}{2}([\omega_L - 2(m \pm 1)k_{\perp v_{\perp}}]t \mp \vec{k}\vec{r})) & 0 \\ 0 & \exp(-\frac{i}{2}([\omega_L + 2mk_{\perp v_{\perp}}]t \mp \vec{k}\vec{r})) \end{pmatrix} \quad (2.16)$$

Gleichung (2.14) nimmt die Gestalt an:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \tilde{a}_{m\pm 1} \\ \tilde{g}_m \end{pmatrix} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} -\Delta + 2(m \pm 1)^2 \delta + 2(m \pm 1)k_{\perp v_{\perp}} & \Omega(t)e^{i\phi} \\ \Omega(t)e^{-i\phi} & \Delta + 2m^2 \delta + 2mk_{\perp v_{\perp}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{a}_{m\pm 1} \\ \tilde{g}_m \end{pmatrix} \quad (2.17)$$

Der Zustand $|\tilde{\psi}(t)\rangle$ entwickelt sich gemäß

$$|\tilde{\psi}(t)\rangle = e^{-\frac{i}{\hbar} \int_0^t \mathbf{H} dt} |\tilde{\psi}(t=0)\rangle = U_{ww}(t) |\tilde{\psi}(t=0)\rangle \quad (2.18)$$

für beliebige Zeiten $t > 0$. Die Matrix U_{ww} läßt sich für beliebige zeitliche Variationen von $\Omega(t)$ nicht analytisch berechnen. Unter der Annahme einer konstanten Feldstärke existiert allerdings die Lösung [8,26]

$$U_{ww}(t) = \begin{pmatrix} A & Be^{i\phi} \\ Ce^{-i\phi} & D \end{pmatrix}, \quad (2.19)$$

wobei die Matrixelemente durch

$$\begin{aligned} A &= D^* = \cos(\Omega' t/2) + i \Delta'/\Omega \cdot \sin(\Omega' t/2) \\ B &= C = i \Omega/\Omega' \cdot \sin(\Omega' t/2) \end{aligned} \quad (2.20)$$

gegeben sind. Es wurden die effektive Rabi-Frequenz $\Omega' = \sqrt{\Omega^2 + \Delta^2}$ und die effektive Verstimmung $\Delta' = \Delta \mp k_{\perp v_{\perp}} - [(m \pm 1)^2 - m^2] \delta$ neu eingeführt.

Die hier als konstant angenommene Feldverteilung in der Wechselwirkungszone ist speziell für die Beschreibung von Interferometern im Ortsraum wenig realistisch. Typisch sind Laserstrahlen mit einem Gauß-förmigen Intensitätsprofil, das sich für ein kreuzendes Molekül in eine ebenfalls Gauß-artig mit der Zeit variierende Intensität übersetzt. Rechteck- und Gaußprofile haben aber abweichende Fourier-Spektren und erzeugen spektral unterschiedliche Anregungswahrscheinlichkeiten [27], nämlich eine sinc- bzw. Gauß-Funktion. In experimentellen Aufbauten, in denen die Flugzeitverbreiterung einen signifikanten Beitrag zur gesamten beobachteten Linienbreite liefert, kann es so bei der Simulation mit der beschriebenen analytischen Lösung mit Rechteckprofilen für die Intensitätsverteilung der Laserstrahlen zu Abweichungen von den beobachteten Linienformprofilen der Spektren kommen. Auf die entstehenden Probleme wird am Ende dieses Unterkapitels noch genauer eingegangen werden.

Für die Beschreibung eines kompletten Ramsey-Bordé-Interferometers muß die Entwicklung der Zustände in den Dunkelzonen einbezogen werden, da sich gerade in diesen die Phasendifferenz zwischen den Wellenpaketen bildet, die zum Interferenzsignal führt.

Entsprechend zur Matrix (2.19) läßt sich ein Operator U_D für die Entwicklung der Wellenfunktion in einer Dunkelzone der Länge T des Interferometers als

$$U_D(T) = \begin{pmatrix} e^{-\Gamma T} e^{\frac{i}{2}[-\Delta+2(m\pm 1)^2\delta+2(m\pm 1)k_{\perp}v_{\perp}]T} & 0 \\ 0 & e^{-\frac{i}{2}[\Delta+2m^2\delta+2mk_{\perp}v_{\perp}]T} \end{pmatrix} \quad (2.21)$$

angeben. Es wurde an dieser Stelle eine effektive Dämpfung für den Anteil der Wellenfunktion im angeregten Zustand eingeführt, die von der Zerfallsrate des angeregten Zustands $\Gamma = \tau^{-1}$ abhängig ist. Ist die Dauer t der Wechselwirkung mit dem Laserfeld nicht kurz gegen die Lebensdauer des angeregten Zustands, kann dies an dieser Stelle ebenfalls durch die Substitution $\Gamma T \rightarrow \Gamma(T + t)$ berücksichtigt werden. Der Ansatz einer effektiven Dämpfung der Amplitude der Wellenfunktion im angeregten Zustand durch spontane Emission ist gerade bei Molekülen gut gerechtfertigt, da aufgrund des Franck-Condon-Prinzips die Fluoreszenz mit hoher Wahrscheinlichkeit zu Besetzung anderer Niveaus als dem hier betrachteten Grundzustand führt und die Besetzung auch für folgende Wechselwirkungsprozesse tatsächlich verloren ist.

Es besteht jetzt die Möglichkeit, aus den Operatoren U_{ww} und U_D eine Sequenz von Laserstrahlen (bzw. Pulsen aus Sicht des Moleküls) und Dunkelzonen aufzubauen, wie sie in Abbildung 2.2 dargestellt ist. Startet man mit dem Zustand $|\psi\rangle = |g, p\rangle$, können auf den verschiedenen Wegen durch das Interferometer die Zustände $|a, p - \hbar k\rangle$, $|g, p\rangle$, $|a, p + \hbar k\rangle$ und $|g, p + 2\hbar k\rangle$ erreicht werden. Jeder der sechzehn Pfade wird durch eine Multiplikation

$$|\psi_{Ende}\rangle = U_{ww}(t)U_D(T)U_{ww}(t)U_D(T')U_{ww}(t)U_D(T)U_{ww}(t)|g, p\rangle \quad (2.22)$$

mit Matrizen entsprechend der beteiligten Photonenimpulse m beschrieben, in denen $T = D/v_{||}$ und $T' = D'/v_{||}$ die Dunkelzeit in der ersten und letzten, bzw. der mittleren Dunkelzone ist.

Die Wahrscheinlichkeit $w_a(\Delta)$, nach der letzten Wechselwirkungszone ein Molekül im elektronisch angeregten Zustand vorzufinden, ist durch das Betragsquadrat der Projektion von ψ_{Ende} auf a gegeben:

$$w_a(\Delta) = \left| \langle a | \Psi_{\text{Ende}} \rangle \right|^2 \quad (2.23)$$

Es ist zu beachten, daß die Wahrscheinlichkeiten aller Ausgänge für das Gesamtsignal zu summieren sind und daß es vier Ausgänge gibt, in die jeweils zwei Pfade münden. Da die Pfade zu diesen ununterscheidbar sind, muß zur Berechnung der Anregungswahrscheinlichkeiten die Projektion der kohärenten Summe der Wellenfunktionen auf a verwendet werden und nicht die Summe der Einzelwahrscheinlichkeiten. Physikalisch bedeutet dies, daß die Wellenpakete in diesen Ausgängen zur Interferenz kommen.

Bei der Berechnung treten in den meisten Interferenztermen mit $e^{ik_{\perp} v_{\perp} T}$ oszillierende Glieder auf. Diese mitteln sich bei den hier betrachteten Experimenten aufgrund der Verteilung der Geschwindigkeiten v_{\perp} zu Null und sollen deshalb bereits hier vernachlässigt werden. Für die übrigen Glieder findet man [8]:

$$w_a(\Delta) = \left| B_4 C_3 A_2 B_1 \right|^2 + \left| A_4 A_3 B_2 D_1 \right|^2 + \left| A_4 A_3 A_2 B_1 + e^{i(2T(\Delta+\delta)+\phi_1-\phi_2+\phi_3-\phi_4)} B_4 C_3 B_2 D_1 \right|^2 + \left| B_4 D_3 C_2 B_1 \right|^2 + \left| A_4 B_3 B_2 D_1 \right|^2 + \left| A_4 B_3 C_2 B_1 + e^{i(2T(\Delta-\delta)+\phi_1-\phi_2+\phi_3-\phi_4)} B_4 D_3 D_2 D_1 \right|^2 \quad (2.24)$$

Die Mischterme in (2.24) führen zu den zu den Gleichungen (2.6) und (2.7) analogen Ausdrücken für die blaue

$$p_b \propto \cos(2T(\Delta - \delta) + \phi_1 - \phi_2 + \phi_3 - \phi_4) \quad (2.25)$$

und rote Rückstoßkomponente des Interferometers

$$p_r \propto \cos(2T(\Delta + \delta) + \phi_1 - \phi_2 + \phi_3 - \phi_4). \quad (2.26)$$

Zusätzlich sind hier die von dem Laserfeld auf das Molekül übertragenen Phasen ϕ_i enthalten.

Um das vollständige Interferenzsignal zu berechnen, muß abschließend noch über die im Ensemble auftretende Geschwindigkeitsverteilung integriert werden:

$$W_A(\Delta) = \int_0^{\infty} d v_{\parallel} \int_{-v_{\perp \max}}^{v_{\perp \max}} d v_{\perp} w_a(\Delta) \quad (2.27)$$

Wird über eine longitudinale Geschwindigkeitsverteilung gemittelt, führt dies zu unterschiedlichen Flugzeitlinienbreiten der Geschwindigkeitsklassen und damit gegeneinander verschobenen Minima der sinc-Funktion. Die Anregungswahrscheinlichkeit ist dann anders als bei einer reinen sinc-Funktion im Minimum größer Null. Es ist zur Angleichung der Linienformprofile von sinc und Gauß sinnvoll, die Berechnung der Anregungswahrscheinlichkeit

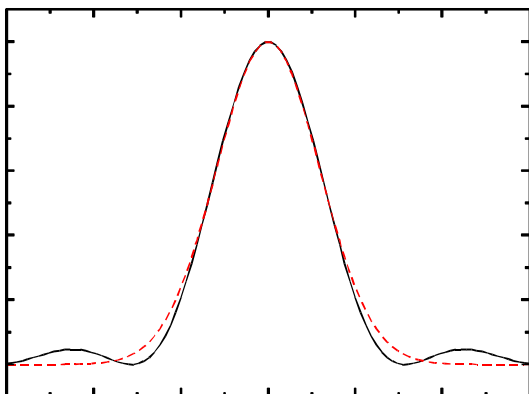


Abbildung 2.3: Beispiele einer sinc- (durchgezogene Kurve) und einer Gauß-Funktion (unterbrochene Kurve)

nur bis zu Verstimmungen der Laserfrequenz bis zum ersten Minimum der sinc-Funktion durchzuführen und von dort auf Null zu extrapolieren, um die zusätzlichen Nebenmaxima zu vermeiden.

Außerdem sollte die Länge eines Rechteckpulses t_R in der Simulation so gewählt werden, daß Linienprofile mit gleicher Flugzeitbreite wie die der experimentellen Gaußpulse entstehen. Dies wird bei einem Laserstrahl mit einem Radius w_0 ($1/e^2$ der Intensität) und einer Molekülgeschwindigkeit von v

für $t_R \approx 1,19 \cdot 2 w_0 / v_{\parallel}$ erreicht [27,28]. Eine Gauß- und eine sinc-Funktion gleicher Halbwertsbreite sind in Abbildung 2.3 zu sehen.

Die hier vorgestellte theoretische Beschreibung ermöglicht es, in relativ übersichtlicher Weise numerische Untersuchungen des Interferometers durchzuführen und quantitative Aussagen über Form oder Kontrast der Interferometersignale unter verschiedenen experimentellen Bedingungen zu gewinnen.

2.3 Simulationen von Interferenzsignalen

Mit dem im vorherigen Kapitel beschriebenen Formalismus eröffnet sich die Möglichkeit, numerische Berechnungen von Interferenzsignalen durchzuführen. Ein Programm für derartige Berechnungen wurde in unserer Arbeitsgruppe entwickelt [29] und auf die spezielle experimentelle Situation angepaßt. Es sollen hier einige Simulationen vorgestellt werden, die verschiedenen experimentellen Bedingungen entsprechen, um eine leichtere Einordnung der Ergebnisse in Kapitel 6 zu ermöglichen. Teilweise wird damit apparativen und experimentellen Details vorgegriffen, um hier ein geschlossenes Bild der Berechnungen aufbauen zu können.

Das Programm berechnet zunächst die Besetzungswahrscheinlichkeit jedes Ausgangs des Interferometers mittels der Formel (2.22) für eine gegebene Laserfrequenz und Molekülgeschwindigkeit. Für die Länge der Dunkelzeiten in Hinblick auf die Verluste durch spontane Emission wird, wie bereits in Zusammenhang mit Formel (2.21) angedeutet, die Summe $T + t$ aus der Flugzeit T durch die Dunkelzonen und der Wechselwirkungszeit mit dem Laserfeld t verwendet.

Da die Detektion des Interferenzsignals in den später vorgestellten Experimenten durch Beobachtung von Fluoreszenz aus dem angeregten Niveau durchgeführt wird, wird die

Summe der Besetzungswahrscheinlichkeiten der Ausgänge im angeregtem Zustand berechnet, die ein Maß für die Intensität des beobachteten Fluoreszenzsignals darstellt. Dabei wird davon ausgegangen, daß die Lebensdauer τ des angeregten Zustands so klein ist, daß der Zerfall noch innerhalb des Beobachtungsvolumens stattfindet. Tatsächlich wird sich diese Annahme bei den verwendeten Niveaus mit einer Lebensdauer um $1 \mu\text{s}$ und Teilchengeschwindigkeiten um 1000 m/s als gerechtfertigt erweisen. Als Konsequenz muß demzufolge das Beobachtungsvolumen an der letzten Wechselwirkungszone ausgerichtet sein, was aber in diesem Experiment zur Folge hat, daß auch Fluoreszenz aus der Dunkelzone zwischen vorletzter und letzter Wechselwirkungszone detektiert werden wird. Das Simulationsprogramm berechnet auch diese Verluste und addiert sie zum schon beschriebenen Signal.

Für eine vorgegebene Geschwindigkeitsverteilung in longitudinaler und transversaler Richtung wird so das Fluoreszenzsignal für festgehaltene Laserfrequenz integriert. Zur Berechnung eines Spektrums wird diese Integration dann für verschiedene Verstimmungen der Frequenz gegen die molekulare Resonanz wiederholt.

Die Größe der Rabi-Frequenz Ω wird vom Programm so gewählt, daß für die wahrscheinlichste Geschwindigkeit bei Verstimmung $\Delta = 0$ unter Berücksichtigung der experimentellen Laserstrahldurchmesser ein sogenannter $\pi/2$ -Puls entsteht, der in jeder Wechselwirkungszone den inneren Zustand des Moleküls mit 50%iger Wahrscheinlichkeit ändert. Dies führt bei nicht zu großen Verlusten durch spontane Emission in den Dunkelzonen D zu einem optimalen Kontrast des Interferenzsignals.

Wie in den Kapiteln 2.1 und 2.2 schon diskutiert wurde, hängt die Anzahl der beobachteten Interferenzordnungen von der Breite der longitudinalen Geschwindigkeitsverteilung der Moleküle ab, da für große Verstimmung unterschiedliche Phasen auf dem Weg durch das Interferometer aufgenommen werden. Diese Betrachtung ist aber nur so lange richtig, wie alle vier Laserstrahlen bei diesen großen Verstimmungen noch mit dem Molekül wechselwirken können. Geraten die Laserfrequenzen bei zu großen Verstimmungen aus der Resonanz, können aufgrund der fehlenden Wechselwirkung keine Photonenimpulse mehr ausgetauscht werden.

Die Frequenzverstimmung, bis zu der die Absorption und stimulierte Emission in allen vier Wechselwirkungsstellen möglich ist, wird durch die homogene Linienbreite gegeben. Diese wird bei Experimenten am Strahl durch die natürliche Linienbreite und die Flugzeitverbreiterung [27] dominiert. Meistens ist die natürliche Linienbreite bei zur Interferometrie geeigneten Übergängen aufgrund der langen Lebensdauer des oberen Niveaus sehr klein, weswegen die homogene Linienbreite wegen der hohen Teilchengeschwindigkeiten im Strahl hier durch die Flugzeitverbreiterung gegeben wird.

Zusammengefaßt wird also die Anzahl der Interferenzordnungen durch die longitudinale Geschwindigkeitsbreite Δv_{\parallel} bestimmt, die maximale Verstimmung, bis zu der Interferenzen beobachtet werden können, dagegen durch die homogene Linienbreite. Welche der beiden Bedingungen zuerst eintritt, ist von der Länge der Dunkelzone D abhängig, da diese die Oszillationsperiode der Interferenz bestimmt.

Zur Veranschaulichung der geschilderten Zusammenhänge sind in Abbildung 2.4 Simulationsergebnisse für verschiedene experimentelle Parameter gezeigt. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurde auf den inkohärenten Untergrund verzichtet und nur der Interferenzterm einer Rückstoßkomponente dargestellt.

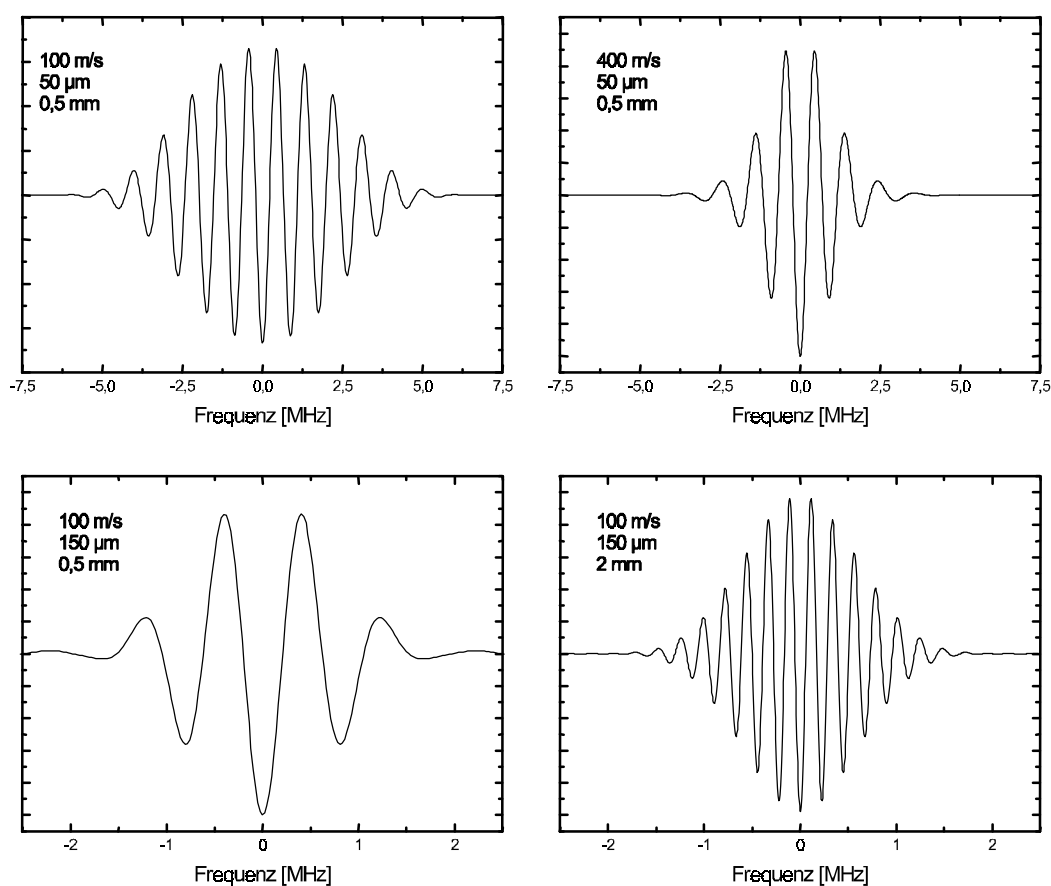


Abbildung 2.4: Simulierte Interferenzen für verschiedene experimentelle Situationen von Geschwindigkeitsbreite Δv_{\parallel} (halbe Breite bei $1/e$ einer Verteilung wie (4.2)), Radius bei $1/e$ der Laserstrahlen (Waist) und Zonenabständen D (jeweils in der Grafik in dieser Reihenfolge angegeben). Auf die Darstellung des inkohärenten Untergrunds wurde verzichtet. Zu beachten ist die unterschiedliche Skalierung der Frequenzachsen. Die zur Simulation verwendete Lebensdauer betrug 1 ms, die mittlere Geschwindigkeit 920 m/s. Die Lebensdauer wurde so lang gewählt, um Beeinflussung der Ergebnisse durch die natürliche Linienbreite oder spontane Prozesse zu vermeiden.

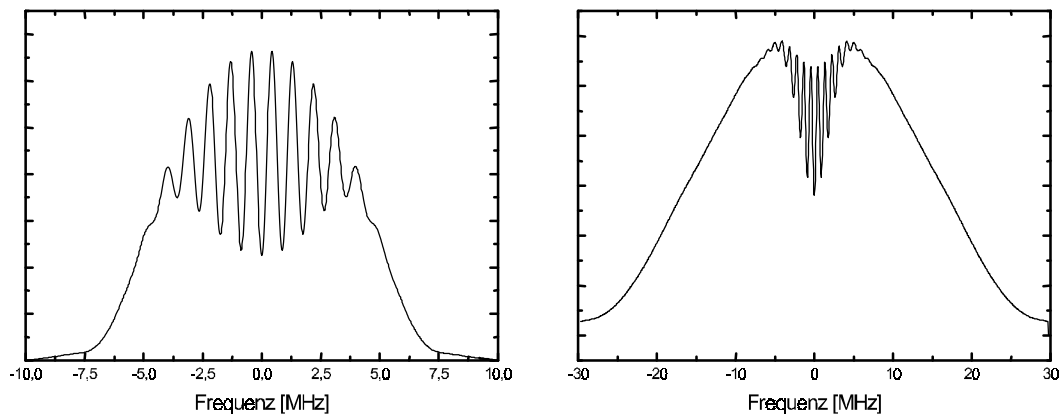


Abbildung 2.5: Simulationsergebnisse eines vollständigen Interferometersignals. Für beide Rechnungen wurden die Parameter für Geschwindigkeitsverteilung, Zonenabstände und Laserstrahldurchmesser festgehalten (wie Abbildung 2.4 oben links). In der links dargestellten Rechnung wurde von einer Kollimation von $1/1000$ ausgegangen, wogegen rechts mit $1/50$ gerechnet wurde.

Gut zu erkennen ist, wie sich durch Vergrößern der Geschwindigkeitsbreite bei fester Dunkelzonenlänge D die Anzahl der beobachteten Oszillationen verringert (obere Reihe). Gleiches geschieht bei Verringerung der Flugzeitbreite (linke Spalte). Die Anzahl der Oszillationen läßt sich allerdings hier wieder durch Vergrößern der Dunkelzonenlänge D erhöhen (untere Reihe), was im oben dargestellten Fall nicht möglich wäre. Man erkennt auch, daß die Formen der Einhüllenden der Oszillationen unterschiedlich sind, die durch Flugzeitverbreiterung oder die Geschwindigkeitsverteilung dominiert werden (links oben, rechts unten).

Neben der eben diskutierten homogenen Verbreiterung ist für das beobachtete Spektrum die inhomogene Verbreiterung durch den Doppler-Effekt von großer Bedeutung. Man kann die zwei Fälle unterscheiden, in denen die homogene Linienbreite kleiner als die Doppler-Verbreiterung ist, bzw. wenn beide vergleichbare Größen haben. Simulationen zu beiden Situationen sind in Abbildung 2.5 zu sehen. Gut zu erkennen ist auf der rechten Seite von Abbildung 2.5, wie sich im Doppler-Profil ein Sättigungsdip ausbildet, der durch die paarweise gegenläufigen Laserstrahlen der Ramsey-Bordé-Anordnung bedingt wird. Die Breite dieses Sättigungsdips entspricht der homogenen Linienbreite, innerhalb derer sich das Interferenzsignal ausbilden kann. Der breite Doppler-Untergrund führt zu einem erheblichen zusätzlichen Signal, an dem häufig kein Interesse besteht.

Um Interferenzen auf möglichst kleinem Untergrund zu beobachten, ist es daher sinnvoll, die Doppler-Breite der homogenen Linienbreite anzupassen. Letztere wird häufig durch andere Randbedingungen vorgegeben, wie z.B. durch fokussierte Laserstrahlen, um hinreichend hohe Intensitäten oder kleine Zonenabstände zu erreichen.

Die Doppler-Breite läßt sich in Molekülstrahlexperimenten vergleichsweise einfach durch die Kollimation des Strahls beeinflussen, indem man durch sie die maximal auftretende Projektion der Teilchengeschwindigkeiten auf die senkrecht kreuzenden Laserstrahlen einstellt.

Der Fall kleiner Doppler-Breiten verglichen mit der homogenen Linienbreite ist von nicht so großem Interesse, da hier zwar alle Teilchen im Strahl zum Interferenzsignal beitragen können, sich deren Anzahl allerdings mit wachsender Kollimation verringert, was zu kleineren Signalen und im allgemeinen schlechterem Signal-zu-Rausch-Verhältnis führt.

Die bisherigen Berechnungen gingen immer von einem Zwei-Niveau-System aus, das aus einem stabilen Grundzustand und einem angeregten Niveau mit langer Lebensdauer besteht. Bei dem Einsatz von Molekülen in der Interferometrie sieht man sich allerdings in den meisten Fällen mit einer weniger idealen Situation konfrontiert, da zumindest durch die Rotation des Moleküls Niveaus mit größeren Drehimpulsen J auftreten. Ein Niveau mit Drehimpuls J zeigt eine $(2J + 1)$ fache Entartung von Zeeman-Niveaus $-m_J \dots +m_J$. Durch optische Übergänge werden ganz allgemein Niveaus mit sich um ± 1 oder 0 unterscheidenden Drehimpulsen gekoppelt. Die magnetische Quantenzahl m ändert sich bei einem Übergang von $J \rightarrow J'$ in Abhängigkeit von der Polarisierung des Lichts ebenfalls um $m_J \rightarrow m_{J'} = m_J, m_J \pm 1$. Keine Änderung tritt für lineare Polarisierung, die Änderung um ± 1 für rechts- bzw. linkszirkular polarisiertes Licht auf.

Man stellt also zunächst fest, daß durch die Anwesenheit von Drehimpulsen $2J + 1$ ungekoppelte Interferometerübergänge entstehen, da wegen der Auswahlregeln für die Polarisierung immer nur ein Zeeman-Niveau im Grund- und ein angeregter Zustand gekoppelt werden können. Allerdings sind die Übergangswahrscheinlichkeiten für Übergänge zu unterschiedlichem m_J verschieden, was zur Folge hat, daß die $\pi/2$ Bedingung für einen 50% Strahlteiler nicht für alle Zeeman-Komponenten simultan eingehalten werden kann. Ein von 50% abweichendes Teilungsverhältnis führt aber zu einem Verlust an Kontrast der beobachteten Interferenzen und sollte somit auch in den Simulationen berücksichtigt werden.

Wie aus tensoralgebraischen Berechnungen unter Verwendung des Wigner-Eckert-Theorems folgt [30], sind die relativen Übergangswahrscheinlichkeiten $p(m_J)$ für einen Übergang $J \rightarrow J'$ durch ein $3j$ -Symbol gegeben

$$p(m_J) \propto \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ -m_{J'} & q & m_J \end{pmatrix}^2, \quad (2.28)$$

in dem q durch entsprechende Auswahlregeln für die Übergänge zwischen Zeeman-Niveaus je nach Polarisierung des Laserlichts 0 oder ± 1 ist. Für den Fall eines Übergangs

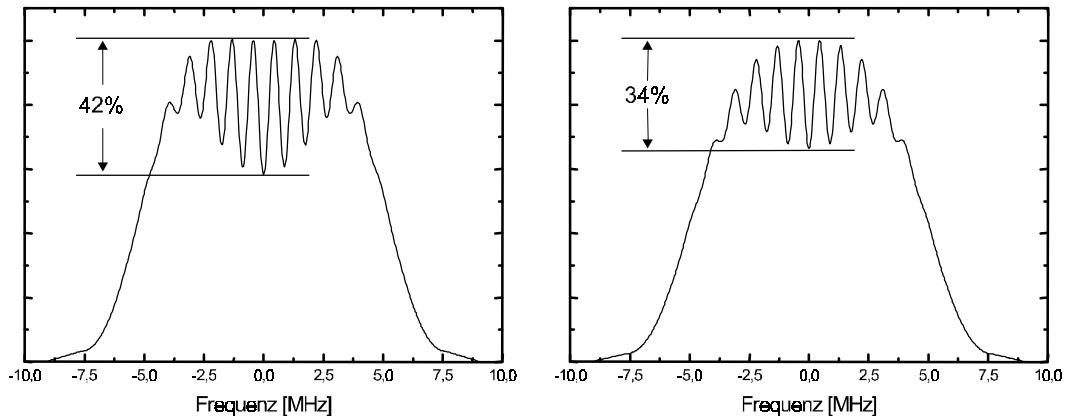


Abbildung 2.6: Vergleich zweier simulierter Spektren für unterschiedliche Drehimpulse. Links Zwei-Niveau-System (R(0), P(1)), rechts R(25). Es wurde linear polarisiertes Licht angenommen. Es ist jeweils die relative Amplitude der Oszillationen am Gesamtsignal angegeben.

$J \rightarrow J + 1$ und linear polarisierte Laserstrahlung ergibt sich beispielsweise nach Auswertung des $3j$ -Symbols

$$p(m_j) \propto (J + 1)^2 - m_j^2. \quad (2.29)$$

In der Simulation können die variierenden Übergangswahrscheinlichkeiten und damit Rabifrequenzen durch Mittelung des Gesamtsignals aus $2J + 1$ einzelnen Simulationen berücksichtigt werden, wobei z.B. für lineare Polarisation die Rabifrequenz für $m_j = 0$ so eingestellt wird, daß ein $\pi/2$ -Puls erzeugt wird. Für die übrigen Zeeman-Übergänge wird die Rabifrequenz entsprechend Gleichung (2.29) skaliert. Um den kontrastmindernden Einfluß der Mittelung über verschiedene Zeeman-Niveaus zu verdeutlichen, sind in Abbildung 2.6 Simulationen für ein reines Zwei-Niveau-System und eine R(25)-Linie bei linear polarisiertem Licht gegenübergestellt.

3 Auswirkung von Stößen auf das Interferenzsignal

Nachdem im vorherigen Kapitel die physikalischen Grundlagen eines Materiewelleninterferometers mit lichtinduzierten Strahlteilern vorgestellt wurden, wird in diesem Abschnitt die Messung von Einflüssen von Stößen der interferierenden Wellenpakete mit anderen Teilchen theoretisch vorbereitet.

Dazu wird im Unterkapitel 3.1 zunächst allgemein ein Modell zur Wirkung von Stößen auf eine Materiewelle vorgestellt. Im folgenden Abschnitt wird dann die Verbindung zwischen diesem Modell und den Wechselwirkungspotentialen der Stoßpartner eingeführt. Im letzten Kapitel werden die vorgestellten Sachverhalte auf die Anwendung in einem Ramsey-Bordé-Interferometer spezialisiert.

3.1 Einfluß von Stößen auf eine Materiewelle

Außer durch die im vorangehenden Kapitel diskutierten Abhängigkeiten des Interferenzsignals von der Dunkelzonenlänge D oder der Frequenz und Phase des verwendeten Laserlichts läßt sich das beobachtete Interferenzsignal auch durch externe Einflüsse wie z.B. äußere Felder variieren. Es liegen in der Literatur auf diesem Gebiet eine große Zahl sowohl experimenteller als auch theoretischer Untersuchungen vor. Als Beispiel sei hier eine Reihe von Arbeiten zum Einfluß von elektrischen Feldern [11,14,31,32] oder Rotationen des experimentellen Aufbaus [2,33] auf das Interferenzsignal genannt.

Eine gut zu analysierende Größe in Experimenten dieser Art ist die Phase ϕ des Interferenzsignals (vgl. (2.26)). Der Einfluß eines zusätzlichen zeitlich konstanten aber räumlich variierenden externen Potentials $V(x)$ auf die Phase des Interferogramms läßt sich aus der Wirkung

$$S \equiv \int_{\Gamma} \frac{1}{2} M v(t)^2 - V(x(t)) dt \quad (3.1)$$

entlang der klassischen Pfade Γ des Interferometers berechnen [34,35]. Mit M sei die Masse des Teilchens bezeichnet, mit v seine Geschwindigkeit. Durch die Angabe des Potentials als Funktion des Ortes soll noch einmal darauf hingewiesen werden, daß V im Laborsystem nur mit dem Ort, nicht aber mit der Zeit veränderlich ist. Für ein bewegtes Teilchen übersetzt sich dies natürlich in eine zeitliche Veränderung von V . Die Phasendifferenz $\Delta\phi$

zweier rekombinierter Wellenpakete ergibt sich aus der Differenz der Wirkungen S_1 und S_2 entlang zweier interferierender Pfade (vgl. zum Beispiel Abbildung 2.2):

$$\Delta\phi = S_1 - S_2 \quad (3.2)$$

Im Falle eines Ramsey-Bordé-Interferometers hängt die Geschwindigkeit des Teilchens in den unterschiedlichen Armen von der Verstimmung des Laserfelds gegenüber der Resonanzfrequenz des Strahlteilerübergangs ab, wie in den Kapiteln 2.1 und 2.2 bereits ausführlich diskutiert wurde. Die Phasendifferenz $\Delta\phi$ in Gleichung (3.2) wird demzufolge abhängig von der Laserfrequenz und ermöglicht die Berechnung von Interferenzsignalen mit gleichen Ergebnissen wie in Kapitel 2.1.

Der angerissene Formalismus eignet sich besonders für die Beschreibung der Wechselwirkung des molekularen oder atomaren Wellenpakets mit einfachen räumlichen Feldverteilungen, für die die Integrale in (3.1) und (3.2) analytisch oder mit vertretbarem Aufwand numerisch lösbar sind.

Für die Beschreibung von Stößen der interferierenden Wellenpakete mit anderen Teilchen ist dieser Ansatz nicht günstig. Ein Wellenpaket auf seinem Weg durch das Interferometer wird mehrere Streuungen erfahren, die jeweils durch das Wechselwirkungspotential und den Stoßparameter beschrieben werden können. Unterschiedliche Wellenpakete werden zudem auf dem Weg durch das Interferometer verschiedene Streuprozesse erfahren, sodaß nicht zu erwarten ist, daß eine geschlossene Darstellung für das Potential $V(x)$ gefunden werden kann.

Eine der Situation besser angepaßte Beschreibung folgt einem statistischen Ansatz und geht von einem mittleren Streueinfluß aus. Es wird hierbei in Analogie zur Ausbreitung von elektromagnetischer Strahlung in einem Medium ein Brechungsindex für die sich ausbreitende Materiewelle definiert [1,16,34,36,37,38]. Der Brechungsindex wird, wie im folgenden gezeigt werden soll, durch die Streuung des Wellenpakets an den Stoßpartnern bestimmt.

Die Beschreibung von Mehrfachstreuung durch einen Brechungsindex ist nach [38,39] nur gerechtfertigt, falls folgende zwei Bedingungen eingehalten werden:

1. Die de-Broglie-Wellenlänge λ_{DB} der Materiewelle im Schwerpunktsystem des Stoßes muß klein gegen den mittleren Abstand zweier Streuzentren sein. Bei einer Dichte N der Streuzentren ergibt sich folglich

$$\lambda_{DB} \equiv \frac{2\pi}{k_{cm}} = \frac{\hbar}{\mu v_{rel}} \ll N^{-1/3}. \quad (3.3)$$

Es wurden die reduzierte Masse μ der Stoßpartner A und B

$$\mu = \frac{M_A M_B}{M_A + M_B} \quad (3.4)$$

mit deren Massen M_A und M_B , die Relativgeschwindigkeit der Stoßpartner v_{rel} und der Wellenvektor k_{cm} im Schwerpunktsystem eingeführt.

Diese Bedingung ist in typischen Molekülstrahlen mit Dichten kleiner als 10^{13} cm^{-3} und Relativgeschwindigkeiten von einigen ms^{-1} leicht zu erfüllen. Selbst in Atomfallen mit um ca. zwei Größenordnungen kleineren Relativgeschwindigkeiten ist das Kriterium bei den häufig geringeren Dichten noch erfüllbar.

2. Die einzelnen Stöße müssen als unabhängig voneinander betrachtet werden können, um den Einfluß von Drei-Körper-Wechselwirkungen vernachlässigen zu dürfen. Dies bedeutet, daß der mittlere Abstand der Streuzentren $N^{-1/3}$ kleiner als die Reichweite des Wechselwirkungspotentials sein muß. Für van-der-Waals-Potentiale liegt der Abstand, bei dem die potentielle Energie auf wenige MHz abgenommen hat, in der Größenordnung weniger 10^{-9} m . Auch dieses Kriterium ist unter den oben genannten Bedingungen für die Dichte N gut erfüllt. Bei Streuung an Gasproben in zellartigen Wechselwirkungszonen, wie dies z.B. in [36] der Fall war, kann das Kriterium zu einer Beschränkung werden.

Beschreibt man die Ausbreitung einer Materiewelle in x -Richtung mit dem Wellenvektor im Laborsystem k_0 analog zur Optik in sehr einfacher Weise durch eine ebene Welle

$$\Psi(x) = e^{ik_0 x}, \quad (3.5)$$

und tritt diese Welle bei $x = 0$ in ein Medium der Länge L ein, so kann die Welle bei L sowohl eine Dämpfung als auch eine Phasenverschiebung erfahren haben. Die Welle stellt sich dann als

$$\Psi(L) = e^{ik_0 L} e^{i\phi NL} e^{-\sigma NL} \quad (3.6)$$

dar. ϕ und σ geben dabei die Querschnitte für phasenändernde Stöße und Streuung aus der Vorwärtsrichtung an.

Eine Beschränkung der Betrachtung auf die Modifikation der Welle in Vorwärtsrichtung ist sinnvoll, da nur diese Teile der Wellenfunktion im Interferometer zum kohärenten Signal beitragen.

Definiert man einen Brechungsindex n , sodaß sich die Welle im Medium in gewohnter Form

$$\Psi(x) = e^{ink_0x} \quad (3.7)$$

schreiben läßt, erhält man folgenden Ausdruck für n :

$$n = 1 + \frac{N}{k_0}(\phi + i\sigma) \quad (3.8)$$

Der Imaginärteil des Brechungsindex läßt sich mit dem totalen Streuquerschnitt σ_{tot} über die Relation

$$\text{Im}(n) = \frac{N}{2k} \sigma_{tot} \quad (3.9)$$

verknüpfen [39]. Das optische Theorem (z.B. [40])

$$\sigma_{tot} = \frac{4\pi}{k_{cm}} \text{Im}(f(k_{cm}, 0)) \quad (3.10)$$

verbindet wiederum σ_{tot} mit der Vorwärtsstreuamplitude $f(k_{cm}, \theta = 0)$. θ gibt den Winkel zwischen ein- und auslaufender Streuwelle an.

Zu beachten ist, daß die Beschreibung der Materiewelle im Laborsystem erfolgt, um direkt die Bedeutung von Phasenverschiebung und Dämpfung für das Interferometer erkennen zu können. Es tritt deswegen der Wellenvektor k_0 in (3.7) auf. Die die Ausbreitung beeinflussende Streuung wird aber besser im Schwerpunktsystem des Stoßes beschrieben, was das Auftreten des Wellenvektors k_{cm} im Schwerpunktsystem in (3.10) begründet.

Setzt man die Gleichungen (3.8) bis (3.10) ineinander ein, erhält man einen Ausdruck für den Brechungsindex, der durch die Streuung an monoenergetischen Teilchen bewirkt wird. Liegt ein Geschwindigkeitsensemble von Streupartnern vor, muß eine Mittelung über diese Verteilung gemäß der jeweiligen Situation erfolgen. Für eine gegebene Geschwindigkeit des Moleküls im Interferometer ergibt sich der folgende Ausdruck für den Brechungsindex n :

$$n(k_0) = 1 + \frac{2\pi N}{k_0} \left\langle \frac{f(k_{cm}, 0)}{k_{cm}} \right\rangle_{v_{rel}} \quad (3.11)$$

Aus Gründen der Übersichtlichkeit wird auf die Klammern zur Andeutung der Geschwindigkeitsmittelung im folgenden verzichtet.

Real- und Imaginärteil der Vorwärtsstreuamplitude führen somit in Analogie zum Brechungsindex in der Optik zu einer zusätzlichen Phase bzw. Dämpfung der Materiewelle. Beide Effekte wurden auch bereits in einem Experiment mit einem Materiewelleninterferometer mit drei Strahlteilern, bestehend aus mechanischen Gittern, beobachtet (z.B. [34]), welches in

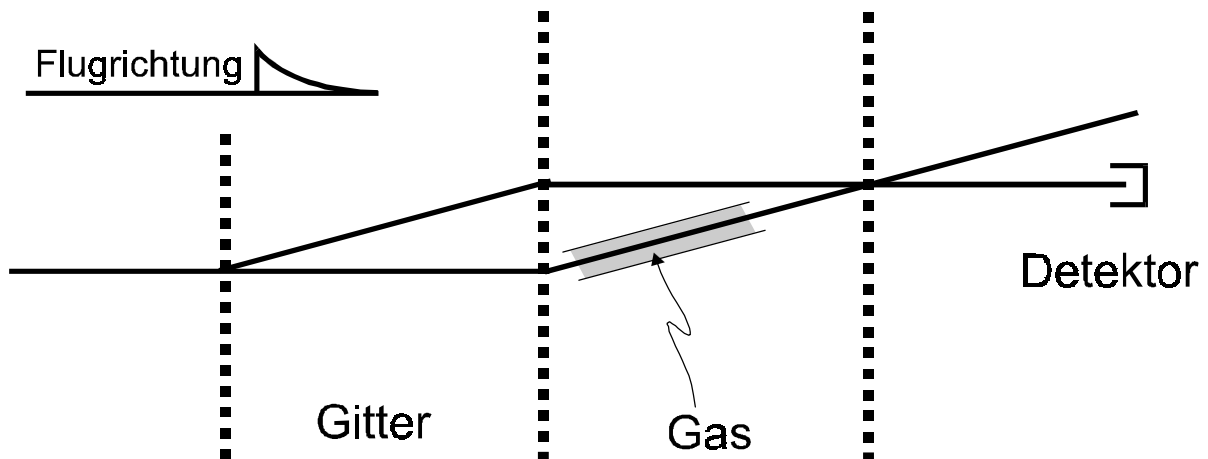


Abbildung 3.1: Schematischer Interferometeraufbau nach [34] mit Gaszelle zur Untersuchung von Stößen auf das Interferenzsignal in einem Interferometerarm.

Abbildung 3.1 skizziert ist. In einem Arm des Interferometers befindet sich eine Gaszelle mit dem Probematerial, dessen Streueinfluß auf die Materiewelle im Interferometer untersucht werden soll. Durch die Wechselwirkung von Materiewelle und Stoßpartnern baut das Wellenpaket in diesem Arm eine zusätzliche, konstante Phase auf und wird in seiner Amplitude abgeschwächt.

Nach den Überlegungen in Kapitel 2 führt die Aufnahme einer konstanten Phase in einem der Interferometerarme zu einer Phasenverschiebung $\Delta\varphi$ des Interferenzsignals, die Dämpfung eines der Wellenpakete zur Dämpfung der Amplitude des kohärenten Anteils des beobachteten Interferenzsignals (vergleiche Formel (2.24)).

Der Zusammenhang zwischen den experimentell zugänglichen Größen Phasenverschiebung und Dämpfung des Interferometersignals und dem Brechungsindex ist durch

$$\begin{aligned}\Delta\varphi &= k_0 L \cdot \operatorname{Re}(n - 1) = \frac{2\pi}{k_{cm}} NL \operatorname{Re}(f(k_{cm}, 0)) \\ \ln(A/A_0) &= k_0 L \cdot \operatorname{Im}(n - 1) = \frac{2\pi}{k_{cm}} NL \operatorname{Im}(f(k_{cm}, 0))\end{aligned}\quad (3.12)$$

gegeben. L gibt dabei wiederum die Länge der Wechselwirkungsstrecke mit dem Medium an, A ist die Amplitude der Oszillationen der Interferenz nach Ausbreitung durch das Medium, A_0 die entsprechende ohne das Streumedium.

3.2 Berechnung der Streuamplitude

Hat man experimentell die Möglichkeit, sowohl Real- als auch Imaginärteil des durch Stoßpartner eingeführten Brechungsindex aus einer Phasenverschiebung und Dämpfung des

Interferenzsignals zu bestimmen, besteht die Möglichkeit, Informationen über die den Stoß bestimmenden Wechselwirkungspotentiale zu gewinnen.

Wie Gleichung (3.11) für den Brechungsindex zu entnehmen ist, erhält man aus der Größe von n , bei Kenntnis der experimentellen Parameter wie Geschwindigkeitsverteilung und Teilchendichten, die Vorwärtsstreuamplitude $f(k_{cm}, 0)$.

Die Streuamplitude selber kann mit Hilfe der Methode der Partialwellenentwicklung [39,40] für Stoßpotentiale $V(r)$ mit sphärischer Symmetrie berechnet werden (r bezeichnet den Abstand der Stoßpartner). Das Potential muß für $r \rightarrow \infty$ schneller als r^{-2} abklingen, um diese Berechnung zu ermöglichen. Das Wechselwirkungspotential des Moleküls im Interferometer mit den Stoßpartnern soll als solches angenommen werden. Der Einfluß der inneren Freiheitsgrade des Moleküls, sowie etwaige Orientierungen der Stoßpartner zueinander können zwar zu davon abweichenden Potentialen führen, dies soll aber separat betrachtet werden und kann durch unterschiedliche Potentiale Berücksichtigung finden.

Man betrachtet zur Berechnung der Streuamplitude aus den Wechselwirkungspotentialen die asymptotische Form der Streuwellenfunktion im Schwerpunktsystem

$$\Psi \xrightarrow{r \rightarrow \infty} e^{i\vec{k}\vec{r}} + f(\vec{k}, \theta) \frac{e^{ikr}}{r} \quad \theta = \angle(\vec{k}, \vec{k}'), \quad (3.13)$$

die aus einer einlaufenden ebenen und einer auslaufenden Kugelwelle besteht. Amplitude und Winkelverteilung der Kugelwelle werden durch die Streuamplitude bestimmt. Entwickelt man Ψ nach Drehimpulseigenfunktionen und vergleicht die asymptotische Form der auslaufenden Wellenfunktion zu gegebenem Drehimpuls l mit und ohne Wechselwirkungspotential V , so findet man, daß der Einfluß elastischer Streuung in einer Phasenverschiebung δ_l der l -ten Partialwelle besteht. Diese Phasenverschiebung läßt sich durch Integration der radialen Schrödingergleichung

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{1}{r} \frac{d^2}{dr^2} r + \frac{\hbar^2 l(l+1)}{2\mu r^2} + V(r) - E \right] \psi_l(r) = 0 \quad (3.14)$$

und Vergleich der Wellenfunktion mit der Streuwelle ohne Potential V bestimmen. Letztere ist asymptotisch durch eine sphärische Besselfunktion j_l gegeben, da diese asymptotische Lösungen der radialen Schrödingergleichung sind:

$$\psi|_{V=0}(r \rightarrow \infty) \propto \sqrt{\frac{2k^2}{\pi}} j_l(kr) \quad (3.15)$$

Die Streuamplitude f für $\theta = 0$ läßt sich dann aus einer Summation über die Partialwellen l berechnen:

$$\begin{aligned} \text{Im}(f(k,0)) &= \frac{1}{2k} \sum_l (2l+1)(1 - \cos 2\delta_l) \\ \text{Re}(f(k,0)) &= \frac{1}{2k} \sum_l (2l+1) \sin 2\delta_l \end{aligned} \quad (3.16)$$

Die grundsätzlich bis zu $l \rightarrow \infty$ durchzuführende Summation muß bei numerischen Berechnungen bei endlichen l abgebrochen werden. Die maximale noch zur Streuamplitude beitragende Partialwelle hängt dabei von der Stoßenergie und der Reichweite und Stärke des Wechselwirkungspotentials ab. Dies wird anschaulich dadurch verständlich, daß das mit wachsendem l ansteigende Zentrifugalpotential eine Rotationsbarriere aufbaut, die bei zu kleinen Stoßenergien die Annäherung der Stoßpartner auf Abstände kleiner als die Reichweite des Wechselwirkungspotentials verhindern kann. Außerdem wird durch den Drehimpuls l der Partialwelle der Stoßparameter und damit klassisch eine minimale Annäherungslänge festgelegt, die ebenfalls Einfluß der Wechselwirkung bei kleineren Abständen behindert.

Zur Veranschaulichung der Beiträge zur Streuamplitude durch verschiedene Partialwellen bei unterschiedlichen Stoßenergien sind in Abbildung 3.2 die Summanden $\sin 2\delta_l$ für den Realteil von f in Gleichung (3.16) aufgetragen. Zur Berechnung der Phasenverschiebungen δ_l wurde ein Programm zur Berechnung der Streuwellenfunktion durch numerische Integration von (3.14) mit dem Numerov-Verfahren [41] geschrieben. Die Phasenverschiebung selbst wurde aus Anpassung einer Besselfunktion der Art (3.15) gewonnen.

Für die Rechnungen wurden als Stoßpartner Kalium-Atome und K_2 -Moleküle angenommen. Da die Wechselwirkungspotentiale zwischen beiden nicht bekannt sind, wurde exemplarisch ein Lennard-Jones-Potential benutzt

$$V(r) = 4D_e \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right] \quad D_e = 4 \cdot 10^{-5} \text{ a.u.} \quad \sigma = 9 \text{ a.u.}, \quad (3.17)$$

wie es in [38] für Na-Ne gegeben ist. Die langreichweitige Wechselwirkung zwischen den Stoßpartnern wird bei diesem Potentialansatz folglich durch ein van-der-Waals-Potential gegeben, was für erste Abschätzungen ein naheliegender Ansatz ist.

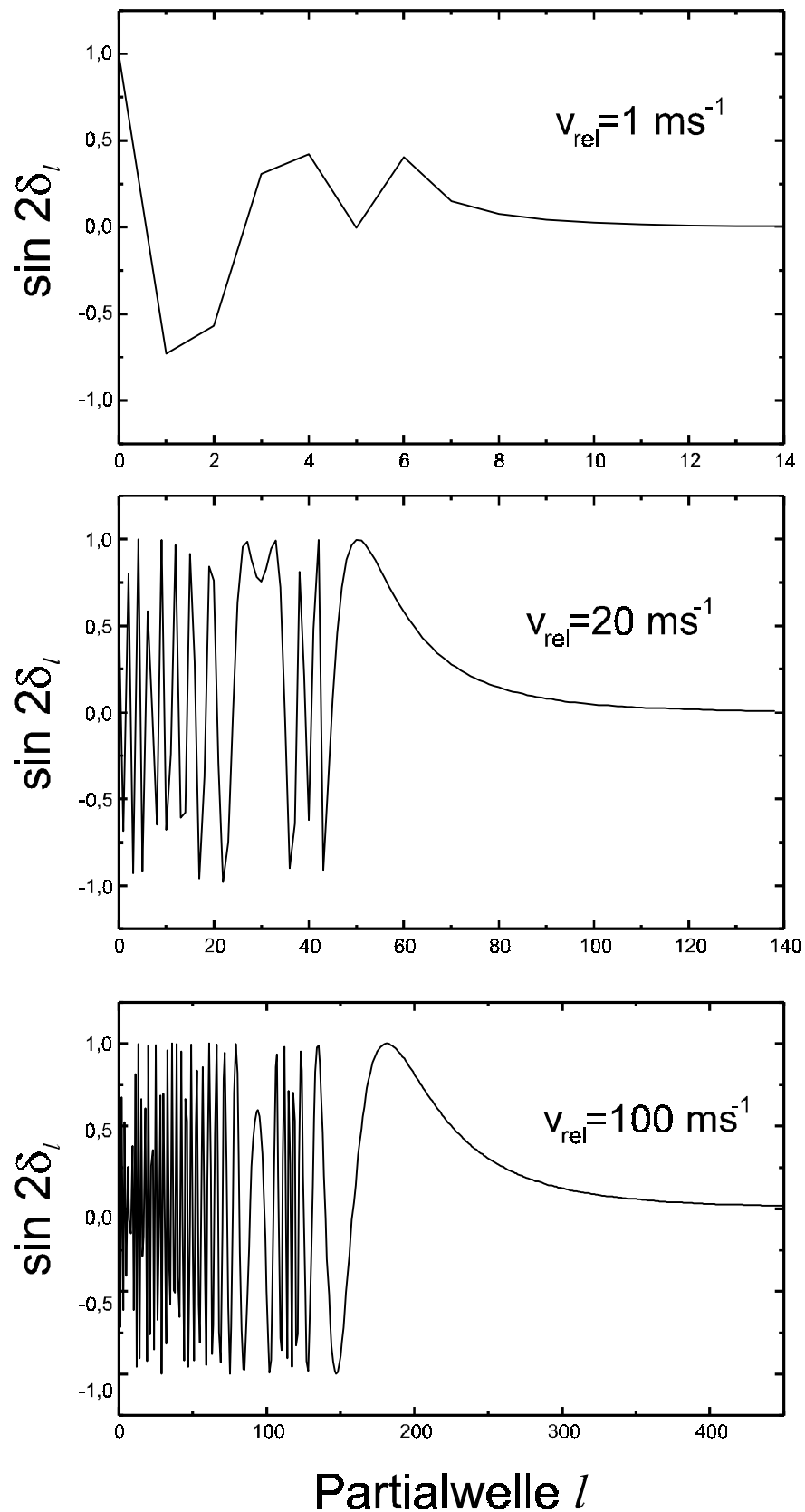


Abbildung 3.2: Berechnung des Beitrags einzelner Streuwellen l für verschiedene Relativgeschwindigkeiten der Stoßpartner zum Realteil der Streuamplitude f in Gleichung (3.16). Aus Gründen der Übersichtlichkeit sind die diskreten Punkte durch Linien verbunden.

Gut zu erkennen ist in Abbildung 3.2 das Ansteigen der Zahl beitragender Partialwellen mit wachsender Relativgeschwindigkeit der Stoßpartner. Des weiteren ist auffällig, daß für niedrigere l die Summanden schnell oszillieren, sofern man von einigen Bereichen – zum Beispiel um $l = 90$ im Falle von $v_{rel} = 100 \text{ ms}^{-1}$ – absieht.

Die schnellen Oszillationen führen bei der Summation in (3.16) zum Ausmitteln der Beiträge durch niedrige Drehimpulse. Umgekehrt bedeutet dies, daß zumindest der Realteil der Streuamplitude stark durch den langreichweitigen Teil des Streupotentials bestimmt wird, da die höheren Partialwellen nur diesen Teil des Potentials erfassen können.

Der asymptotische Potentialverlauf ist physikalisch von besonderem Interesse, da er über den Wechselwirkungsmechanismus zwischen den Stoßpartnern bei großen Abständen Informationen liefert. Die Potenz n der langreichweitigen Beiträge $C_n r^{-n}$ der Kernabstandsabhängigkeit für $r \rightarrow \infty$ läßt eine Zuordnung verschiedener Mechanismen zu.

Aus den in Abbildung 3.2 dargestellten Phasenverschiebungen δ_l für verschiedene Partialwellen l zu gegebener Relativgeschwindigkeit v_{rel} läßt sich mit den Beziehungen (3.16) die Vorwärtsstreuamplitude $f(k, \theta = 0)$ berechnen. Von experimentell größerem Interesse ist allerdings die Größe $f(k, \theta = 0) / k$, da sie den funktionalen Zusammenhang zwischen der Stoßenergie und den beobachtbaren Größen Phasenverschiebung und Dämpfung des Interferenzsignals gibt (Gleichung (3.12)). $\text{Re}(f(k, \theta = 0)) / k$ ist für das oben genannte Beispielpotential für verschiedene Relativgeschwindigkeiten der Stoßpartner in Abbildung 3.3 dargestellt. Berücksichtigt man, daß zur Berechnung der beobachteten Phasenverschiebung noch über die Geschwindigkeitsverteilung gemittelt werden muß, ist bei Breiten der Geschwindigkeitsverteilung um 100 m/s kein signifikanter Einfluß der Oszillationen bei niedrigen Relativgeschwindigkeiten zu erwarten. Gleiches gilt für die dort schwach zu erkennenden, scharfen Resonanzen.

Erst bei niedrigen Relativgeschwindigkeiten und schmalen Geschwindigkeitsverteilungen um wenige 10 m/s kann eine Beobachtung der Abhängigkeit der Streuamplitude von der Stoßgeschwindigkeit erwartet werden. Solche Geschwindigkeitsverteilungen sind in Überschalldüsenstrahlen unter Verwendung von Puffergasen realisierbar.

Ist man bei der Auswertung vorwiegend an der Form des langreichweitigen Potentials interessiert und nicht an den tatsächlichen Kopplungskoeffizienten oder Streuamplituden, bietet sich unter gewissen Einschränkungen die Möglichkeit einer vereinfachten Analyse. Speziell erfordert diese nicht die Kenntnis der Teilchendichten der Stoßpartner und deren Geschwindigkeitsverteilungen, welche häufig experimentell nicht leicht zugängliche Größen sind. Es werden hier nur die Ergebnisse angegeben und deren Herleitung angedeutet. Für genauere Erläuterungen sei auf [1,35,36] verwiesen.

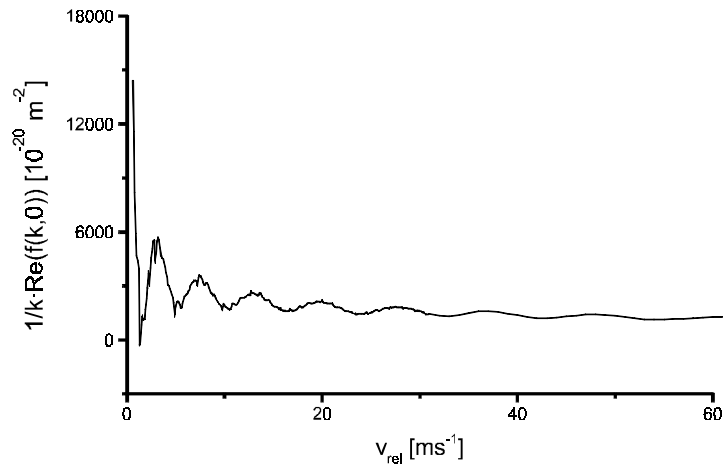


Abbildung 3.3: Produkt $1/k \cdot \text{Re} f(k,0)$ über der Relativgeschwindigkeit v_{rel} der Stoßpartner für das Beispielpotential (3.17).

Man betrachtet für diese Auswertung das Verhältnis von Real- und Imaginärteil der Vorwärtsstreuamplitude, das ohne Kenntnis der Teilchendichten aus den experimentell beobachtbaren Größen Phasenverschiebung und Dämpfung des Interferenzsignals durch z.B. ein Experiment, wie in Abbildung 3.1 dargestellt, bestimmbar ist (3.12). Um auf die asymptotische Form des Streupotentials zu schließen, wird in semiklassischer Näherung die Summe über die Partialwellen in (3.16) durch eine Integration ersetzt. Außerdem wird das Streupotential allein durch die asymptotische Form $C_n r^{-n}$ gegeben, und die „Eikonale Näherung“ (z.B. [39]) für die Integration der Schrödingergleichung (3.14) verwendet.

Für das Verhältnis von Real- und Imaginärteil der Streuamplitude findet man den Ausdruck [35]

$$\frac{\text{Re}(f(k_{cm},0))}{\text{Im}(f(k_{cm},0))} = \frac{-\Delta\varphi}{\ln(A/A_0)} = \mp(n-1) \frac{\Gamma\left(\frac{1}{2} - \frac{1}{n-1}\right) \Gamma\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{n-1}\right)}{\Gamma\left(-\frac{1}{n-1}\right) \Gamma\left(\frac{1}{n-1}\right)} = \pm \tan \frac{\pi}{n-1}, \quad (3.18)$$

in dem sich das obere Vorzeichen auf attraktive Potentiale bezieht. Γ bezeichnet die Gamma-Funktion.

Können also im Experiment sowohl der Realteil als auch der Imaginärteil des Brechungsindex beobachtet werden, kann eine Aussage über die Form des langreichweitigen Potentials gemacht werden. Voraussetzung ist allerdings, daß die Stoßenergie im Vergleich zur potentiellen Energie groß genug ist und eine große Zahl an Partialwellen zur Streuung beiträgt, um die verwendeten Näherungen zu rechtfertigen.

3.3 Konsequenzen für ein Ramsey-Bordé-Interferometer

In den bisherigen Ausführungen dieses Kapitels wurde die Möglichkeit der Interpretation von Stoßeinflüssen auf ein Interferenzsignal durch einen Brechungsindex diskutiert, sowie ein Ansatz, diesen mit den Stoßpotentialen in Verbindung zu setzen. Dazu müssen experimentell die Phasen oder Amplituden von Wellenpaketen mit und ohne Stöße verglichen werden.

Für ein interferometrisches Experiment bedeutet dies, daß zwei Schritte durchgeführt werden müssen. Im ersten Schritt wird das Interferometer ohne Streueinflüsse betrieben, um die Referenzsituation für das Interferenzsignal zu erhalten. Im zweiten Schritt kann dann in einem Interferometerarm die Probe des Stoßpartners eingeführt werden, um die Änderung des Interferenzsignals im Vergleich zur vorherigen Situation bestimmen zu können. Dies war in den bereits mehrfach erwähnten Experimenten der Gruppe um Pritchard [16,36] aufgrund des verwendeten Interferometertyps mit mechanischen Gittern als Strahlteiler auch möglich. Die verwendeten Gitter erzeugten so große Ablenkwinkel, daß die Pfade des Interferometers auch makroskopisch getrennt wurden. Der Einbau einer Gaszelle in einen Arm des Interferometers und damit die Realisation der eben beschriebenen Situation (vgl. Abbildung 3.1) wird so ermöglicht.

In einem Interferometer vom Ramsey-Bordé-Typ ist die Situation bezüglich der Separation der Pfade weniger günstig. Mit der Masse eines K_2 -Moleküls, sowie Dunkelzonenlängen D (vgl. Abbildung 2.2) von 1 mm und Übergangsfrequenzen für den verwendeten Molekülübergang um 800 nm, ergeben sich bei Teilchengeschwindigkeiten von 1000 m/s Trennungen beider Pfade von einigen Nanometern. Diese Aufspaltung ist zwar größer als die typische Kohärenzlänge der Moleküle, sodaß die Wege im Interferometer als separiert betrachtet werden können, erlaubt aber keinesfalls eine getrennte Beeinflussung eines der Arme. Man wird experimentell also immer einen Brechungsindex für alle Arme im Interferometer einführen. Diese können allerdings aufgrund der verschiedenen inneren Zustände des Moleküls unterschiedlich sein.

Wenn man das Bild des optischen Brechungsindex zunächst unter Einschränkung auf reelle Werte auf ein Materiewelleninterferometer vom Ramsey-Bordé-Typ überträgt, um die Phasendifferenz $\Delta\phi$ zwischen interferierenden Wellenpaketen z.B. der blauen Rückstoßkomponente zu berechnen, erhält man ausgehend von den Gleichungen (2.4) und (2.5) den Ausdruck

$$\Delta\phi = 2k_0 D \left[(n_1 - n_2) + \frac{1}{k_0 v_{\parallel}} n_2 (\Delta - \delta) \right] \quad (3.19)$$

Die Bezeichnung der Brechungsindizes n_i der einzelnen Abschnitte ist Abbildung 3.4 zu entnehmen, k_0 ist der Betrag des Wellenvektors der Materiewelle. Wie man an Gleichung (3.19) erkennen kann, hat die Länge der mittleren Dunkelzone keinen Einfluß auf die Phasendifferenz, was nach den Betrachtungen im vorherigen Kapitel bereits zu erwarten war.

Der Brechungsindex nimmt in Gleichung (3.19) auf zwei Weisen Einfluß. Zum einen führt die Differenz der Brechungsindizes $\Delta_n = n_2 - n_1$ für die unterschiedlichen molekularen Zustände zu einer konstanten zusätzlichen Phase eines Wellenpakets (erster Term in Gleichung (3.19)). Dies ist völlig analog zum Einfluß von Stößen in einem Interferometer, wie es in Zusammenhang mit Abbildung 3.1 diskutiert wurde, nur daß einer der Brechungsindizes dort eins war.

1. Maximale Amplitude der Interferenz tritt aufgrund der endlichen Kohärenzlänge der Materiewellen bei der Phasenverschiebung Null zwischen den rekombinierten Teilen auf. Diese tritt aber durch den Stoßeinfluß nicht mehr bei der Frequenzverstimmung $\Delta = \pm\delta$ (Gleichungen (2.25) und (2.26)) auf, sondern bei einer Laserfrequenz, die die zusätzliche Phase durch die Beschleunigung eines der Wellepakete in Vorwärtsrichtung kompensiert. Das Interferogramm mit seiner durch die Kohärenzlänge des Wellenpakets gegebenen Einhüllenden wird also im Frequenzraum verschoben [31]. Der Kompensationsprozeß kann solange stattfinden, wie die Laserverstimmung die homogene Linienbreite des Übergangs nicht überschreitet.

Ob eine Verschiebung des kompletten Interferogramms mit seiner Einhüllenden auf dem inkohärenten Untergrund beobachtet wird, hängt entscheidend davon ab, welcher Prozeß die

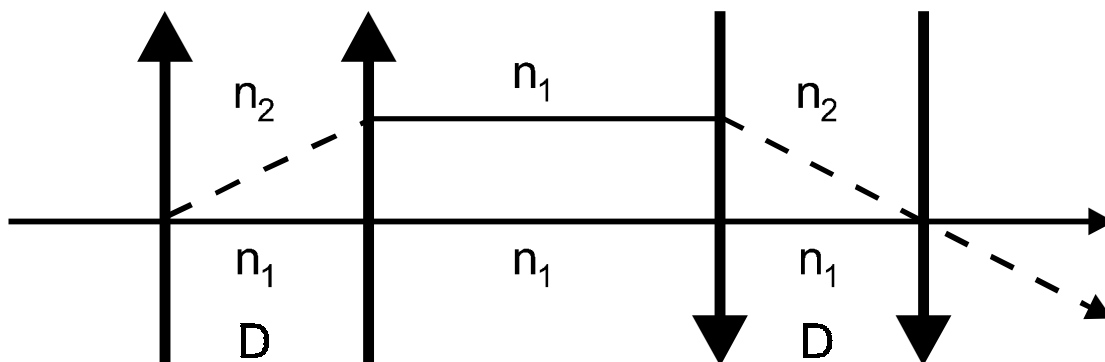


Abbildung 3.4: Schema eines Ramsey-Bordé-Interferometers in Anwesenheit von verschiedenen Brechungsindizes $n_{1,2}$ für unterschiedliche innere Zustände des Moleküls. Die Länge der ersten und letzten Dunkelzone ist mit D bezeichnet.

Frequenzbreite bestimmt, in der das gesamte Interferogramm beobachtet werden kann (vgl. Kapitel 2.3 und Abbildung 2.4). Ist dieses Frequenzintervall bei gegebener Dunkelzonenlänge D durch die homogene Linienbreite gegeben, führt eine Verschiebung des Interferogramms nur zu einer Beobachtung eines anderen Ausschnitts aus dem Bereich, in dem Interferenzen aufgrund der Geschwindigkeitsverteilung der Teilchen möglich sind. Der Einfluß der Stöße wird sich dann in einer effektiven Phasenänderung des Interferogramms äußern, wobei der Bezugspunkt für die Phasenbestimmung die Einhüllende des Interferogramms ist. Erst bei größeren Abständen D , wenn die Anzahl der Oszillationen über die Kohärenzlänge der Materiewelle gegeben ist (Abbildung 2.4), wird die Frequenzverschiebung des Interferogramms auf der Spektrallinie sichtbar.

2. Ein neuer Einfluß tritt durch den zweiten Term mit n_2 in (3.19) auf. Durch den Einfluß von Stößen in beiden Armen des Interferometers kommt es zu einer Änderung der effektiven Länge der Dunkelzonen D , und damit der Periodizität der Oszillationen der Interferenz. Dieser Effekt stellt sich auch bei Betrachtung der in diesem Kapitel eingangs beschriebenen Methode der Berechnung von Wirkungsintegralen ein, da sich durch ein zusätzliches Potential auf beiden Pfaden des Interferometers die aufgenommene Phase auch bei beiden Teilwellenpaketen ändert. Nach Kapitel 2.1 ist diese Phase aber für die Periodizität der Interferenz verantwortlich.

Zur Anschauung kann das Bild dienen, daß sich das interferierende Molekül durch viele Potentiale bewegt, wodurch sich seine mittlere kinetische Energie verändert und damit seine Flugzeit durch die Dunkelzone. Entsprechend ändert sich dadurch die Periode des Interferogramms beim Verstimmen des Lasers (vergleiche z.B. Formel (2.6)).

Ein weiterer prinzipieller Unterschied bei der Untersuchung von Stößen mit einem Ramsey-Bordé-Interferometer zu Experimenten mit Interferometern mit mechanischen Strahlteilern besteht darin, daß der Strahlteilerprozeß selbst durch Stöße beeinflusst wird. Bei der Absorption oder stimulierten Emission eines Photons im Strahlteiler wird die Übergangsfrequenz durch die Druckverschiebung verändert. Ist die Veränderung der Übergangsfrequenzen in allen Wechselwirkungszonen gleich, kommt es nach z.B. Gleichung (2.26) durch die Druckverschiebung zu einer zusätzlichen Phase einer Teilwelle und damit entsprechend der für Δ_n vorgestellten Argumentation zu einer Frequenzverschiebung des gesamten Interferogramms mit der Einhüllenden der Interferenz. Im Gegensatz zum Einfluß des Brechungsindex wird aber auch der inkohärente Untergrund verschoben, sodaß je nach Stoßsituation zwei identische Spektren mit einem Frequenzversatz beobachtet werden.

Sollten allerdings nicht in allen vier Strahlteilerzonen gleiche Stoßbedingungen herrschen, werden aufgrund unterschiedlicher Übergangsfrequenzen Photonenimpulse verschiedener

Richtungen auf das Molekül übertragen, wodurch das Interferometer nicht mehr vollständig geschlossen ist, was zu einem Kontrastverlust führt.

Ein Ramsey-Bordé-Interferometer sollte demnach prinzipiell sowohl auf die Größe des Realteils der Streuamplitude bzw. des Brechungsindex, als auch auf die Differenz der Realteile beider Zustände empfindlich sein, da sich durch den ersten die Periodizität, mit letzterem die Phase oder Zentralfrequenz der Interferenz ändert. Ob beide Effekte wirklich experimentell beobachtbar und separierbar sind, soll im Zusammenhang mit den experimentellen Untersuchungen diskutiert werden.

Der Imaginärteil der Streuamplitude bzw. des Brechungsindex hat die gleichen Auswirkungen, wie sie bereits für Stöße in nur einem Interferometerpfad (Kapitel 3.1) diskutiert wurden. Da sich die Dämpfung im jetzt diskutierten Fall eines Ramsey-Bordé-Typs aber auf beide zur Interferenz gelangenden Wellenpakete auswirkt, muß zur Berechnung der Dämpfung der Amplitude des Interferenzsignals analog zu Gleichung (3.12) die Summe beider imaginären Brechungsindexanteile herangezogen werden.

4 Experimentelle Komponenten

Da im Rahmen dieser Arbeit in unserer Arbeitsgruppe mit Experimenten zur Materiewelleninterferometrie begonnen wurde, mußten zunächst die apparativen Voraussetzungen geschaffen werden. Wesentliche Teile des experimentellen Aufbaus wurde entsprechend den Anforderungen neu entworfen und aufgebaut. Die einzelnen Baugruppen werden in den folgenden Abschnitten diskutiert.

4.1 Der Molekülstrahl

Kernstück des experimentellen Aufbaus ist das Vakuumsystem der Molekularstrahlapparatur. Es muß eine Quelle besitzen, die einen Strahl mit hinreichender Dichte erzeugt, um ausreichende Signale zu gewährleisten. Wie aus den theoretischen Betrachtungen zur Materiewelleninterferometrie hervorgeht, ist auch die Geschwindigkeitsverteilung der Moleküle von großer Bedeutung. Eine schmale Verteilung ist hier von Vorteil, da so eine größere Anzahl von Oszillationen im Interferenzsignal beobachtet werden kann (vgl. Kapitel 2.3).

Wünschenswert ist für die interferometrische Beobachtung von Stößen außerdem eine kleine Geschwindigkeitsdifferenz zwischen den Stoßpartnern, da dies zu größeren Phasenverschiebungen führt (3.12) und die Untersuchung von Stößen niedriger Energie (sogenannte „kalte Stöße“) ermöglicht.

Die geforderten Eigenschaften werden gut von einem Überschallstrahl erfüllt [42]. Er bildet sich aus, wenn die zu beobachtende gasförmige Substanz aus einem Reservoir durch eine Öffnung in ein Vakuumgefäß expandiert, wobei die mittlere freie Weglänge innerhalb des Reservoirs klein sein muß gegen die Größe der Öffnung. Diese führt zu einer Vielzahl an Stößen und einer Umverteilung der inneren Energie des Probenmaterials in kinetische Energie. Der Prozeß kann dabei unter dem eigenen Dampfdruck erfolgen oder durch ein Trägergas höheren Drucks unterstützt werden (seeded beam).

Als Quelle konnte eine vorhandene Vakuumkammer übernommen werden, die einen Ofen zur Verdampfung von elementarem Kalium enthält und die Möglichkeit der Verwendung von Trägergas im Ofen bietet. Die hier beschriebenen Experimente wurden ohne Trägergas durchgeführt. Der Ofen wird im Experiment auf ca. 360 – 400 °C geheizt, der Düsenbereich mit einer Öffnung von 200 µm Durchmesser einige zehn Grad höher, um Verstopfung zu verhindern. Der so erzeugte Strahl von K/K₂ gelangt dann durch einen ebenfalls beheizten Skimmer mit einer Öffnung von 1 mm Durchmesser in eine differentielle Pumpstufe. Die

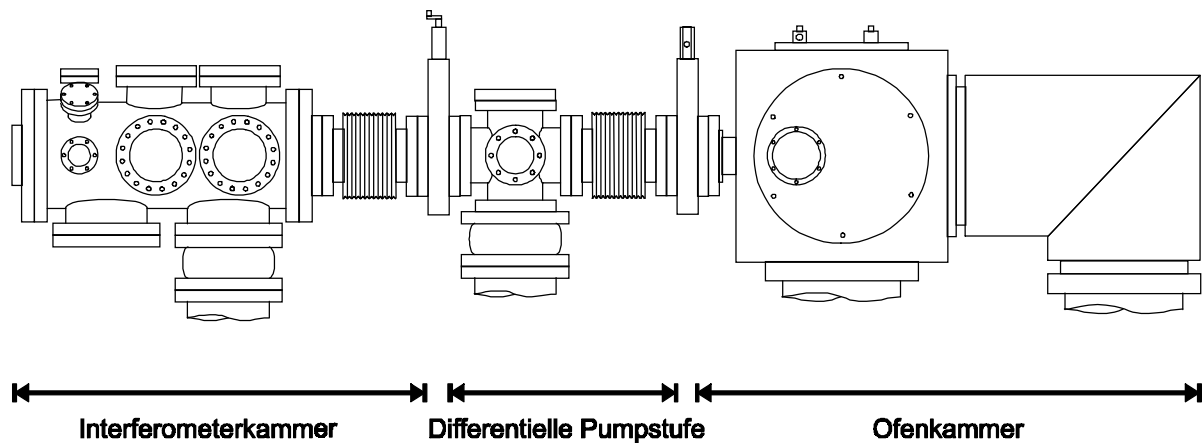


Abbildung 4.1: Schematischer Aufbau der Molekülstrahlapparatur. In der Kammer rechts befindet sich der Ofen, auf der linken Seite wird das Interferometer betrieben, dazwischen befindet sich die differentielle Pumpstufe. Alle drei Bereiche sind mit Wellbälgen verbunden und können durch Schieber voneinander getrennt werden. Pumpen und Photomultiplier sind nicht gezeigt.

Ofenkammer wird von zwei Diffusionspumpen Typ Edwards Diffstak 250/2000 M evakuiert, die jeweils eine Pumpleistung von 2000 l/s haben. Als Vorpumpe dient eine zweistufige Drehschieberpumpe mit 40 m³/h Pumpleistung. Es wird beim Betrieb des Molekülstrahls ohne Trägergas ein Druck von einigen 10⁻⁵ mbar erreicht.

Eine detaillierte Beschreibung des Ofenraumes findet sich in [43], Untersuchungen zur Verwendung von Trägergas für Na₂ in [43], für K₂ in [44].

Im Bereich des Materiewelleninterferometers sollten Stöße mit dem Hintergrundgas weitestgehend vermieden werden, um nicht durch diese zusätzliche Einflüsse bei den späteren Stoßexperimenten zu erhalten. Um in der Interferometerkammer einen deutlich niedrigeren Druck als im Ofenbereich zu gewährleisten, ist zwischen ihnen eine differentielle Pumpstufe installiert. Differentielle Pumpstufe und Interferometerkammer werden mit Turbomolekularpumpen TMU 521 der Firma Pfeiffer (500 l/s) gepumpt, denen jeweils eine Membranvorpumpe (Pfeiffer MD 4T) vorgeschaltet ist. Alle Dichtungen mit Ausnahme der unten beschriebenen Fenster sind als CF-Dichtungen mit Kupferringen ausgeführt. Es wird im Betrieb des Molekülstrahls im Interferometergefäß ein Restgasdruck von 5·10⁻⁹ – 1·10⁻⁸ mbar erreicht, in der differentiellen Pumpstufe von ca. 1·10⁻⁷ mbar. Eine Skizze des Vakuumsystems ist in Abbildung 4.1 zu sehen.

Alle Teile dieser Kammern mit Ausnahme der Dichtringe sind in A4 Edelstahl (Flansche 1.4429, Rohre 1.4404) oder Aluminium ausgeführt, da beide Werkstoffe eine niedrige magnetische Suszeptibilität aufweisen, um den Einfluß externer Magnetfelder nicht zu verstärken.

Differentielle Pumpstufe und Interferometerkammer sind durch eine Blende von 2 mm Durchmesser verbunden. Durch diese ca. 1 m vom Ofen entfernte Blende ergibt sich eine

Kollimation des Molekülstrahls von 1/1000 im letzten Rezipient, was bei hier untersuchten Übergängen im K_2 zu Restdopplerbreiten um 1 MHz führt. Alle Kammern können durch Schieber voneinander getrennt werden. Die Rezipienten sind mit Wellbälgen verbunden, die der Schwingungsisolierung der einzelnen Bereiche voneinander dienen. Diesem Zweck dienen auch Dämpfungskörper zwischen Vakuumgefäß und Turbomolekularpumpe. Die Interferometerkammer ist auf vier Gummipuffern der Firma Elastometall gelagert, um diese vom Unterbau zu entkoppeln. Der Unterbau der Interferometerkammer wie der differentiellen Pumpstufe ist aus Aluminium U-Profilen (60×40×5 mm) gefertigt. Angeschraubte Aluminiumplatten dienen zur Verbindung der Profile miteinander, was sowohl zu einem stabilen Aufbau führt, als auch leicht Änderungen und Erweiterungen zuläßt.

Sowohl in der differentiellen Pumpstufe als auch in der Interferometerkammer ermöglichen Flansche mit Fenstern die Manipulation des Strahls mit Laserlicht. Die Fenster sind aus BK 7 Glas gefertigt und haben nominell eine Oberflächengüte von $\lambda/10$. Sie sind mit einer breitbandigen Antireflexbeschichtung von 500 – 900 nm bedampft, um Verluste durch Reflexionen zu reduzieren. Eine Anordnung der Fenster unter dem Brewsterwinkel hätte zu Beschränkungen in der Wahl der Polarisation des Laserlichts geführt, was nicht sinnvoll erschien. Die Dichtung zwischen dem Substrat und dem Flansch wird nach Vorbild von [45] durch einen gequetschten Indiumdraht geschaffen.

Auf beiden Seiten der Vakuumkammern ist ein sogenanntes „Breadboard“ zur Befestigung von optischen Komponenten angebracht. Beide sind starr miteinander verbunden, um Vibration von optischen Komponenten auf beiden Seiten der Apparatur gegeneinander zu verhindern. Der gesamte optische Aufbau ist gegen die übrige Apparatur mit Gummifüßen der Firma Elastometall schwingungsisoliert und kann in seiner Höhe durch Austausch von Distanzstücken um bis zu 10 cm variiert werden.

Der Pumpstand ist mit einer Steuerung versehen, die bei Stromausfällen oder Defekten an Pumpen Schäden weitestgehend verhindern soll und Fehlbedienungen vorbeugt. Sie basiert im wesentlichen auf der Kontrolle der aktuellen Vakuumdrücke in den verschiedenen Kammern und auf Statusabfragen der Turbomolekularpumpen. Bei Störungen werden die Rezipienten von den Vorvakuum-pumpen durch pneumatisch betriebene Ventile abgeschottet, um unerwünschtes Belüften der Apparatur zu verhindern. Bei einem Anstieg des Vorvakuumdrucks wird außerdem die jeweilige Hochvakuum-pumpe abgeschaltet, bzw. deren Inbetriebnahme bei zu schlechtem Vakuum verhindert. Die Steuerung hat sich inzwischen bei einigen Stromausfällen bewährt.

4.1.1 Geschwindigkeitsmessung

Zur Charakterisierung des Molekülstrahls wurde in der Interferometerkammer eine Messung der Molekülgeschwindigkeit vorgenommen. Das verwendete Meßprinzip ist in [42] beschrieben und beruht auf der Beobachtung der Fluoreszenz, die durch den Molekülstrahl in unterschiedlichen Winkeln kreuzenden Laserstrahlen erzeugt wird.

Ein Laserstrahl kreuzt den Molekülstrahl dabei unter 90° , der zweite unter einem kleineren Winkel. Beide Laserstrahlen haben die gleiche Frequenz und werden der Einfachheit halber durch mehrfache Umlenkung aus einem einzigen erzeugt (siehe Abbildung 4.2 links). Die Anregung durch den Laserstrahl a geschehe bei der Resonanzfrequenz des Moleküls ν_0 . Die Translationsgeschwindigkeit v_{prob} der Moleküle führt aufgrund der Doppler-Verschiebung

$$\nu_D = \frac{v_{prob}}{c} \nu_0 \quad (4.1)$$

bei dem Laserstrahl b zu einer Anregung bei der verschobenen Frequenz $\nu_0 + \nu_D$.

Durch die sehr gute Kollimation des Molekülstrahls ist die Breite der Geschwindigkeitsverteilung der Moleküle senkrecht zum Strahl deutlich geringer als in longitudinaler Richtung. In Propagationsrichtung des Laserstrahls wird also eine breitere Geschwindigkeitsverteilung als bei senkrechtem Einfall wirksam, wodurch die durch Laserstrahl b erzeugte Spektrallinie nicht nur eine Verschiebung in der Frequenz, sondern auch eine Verbreiterung aufweist.

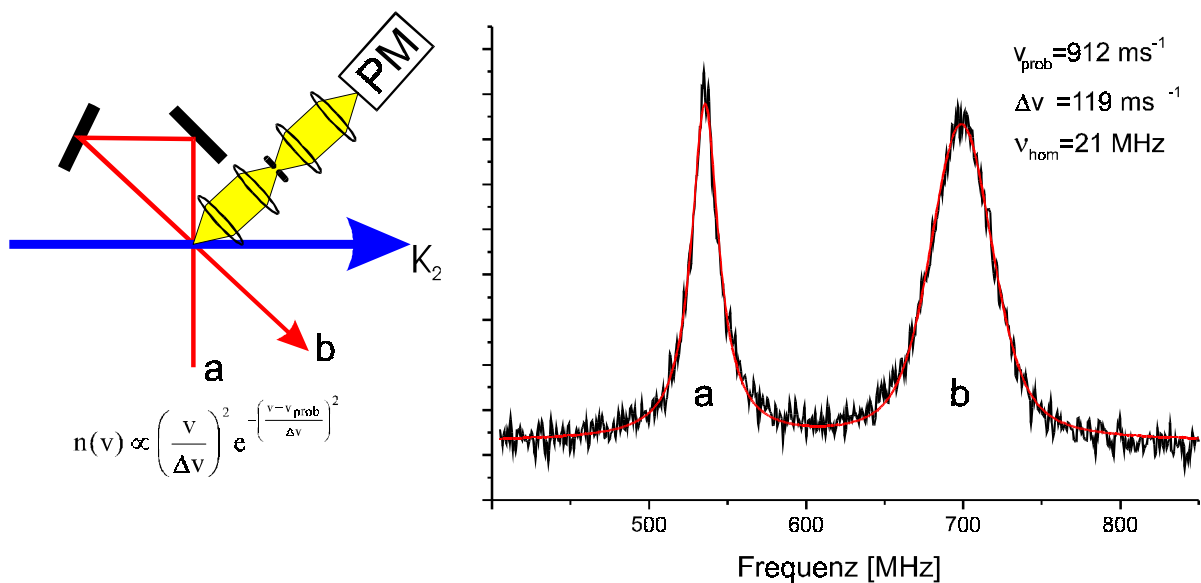


Abbildung 4.2: Doppler-Detektor zur Bestimmung der wahrscheinlichsten Molekülgeschwindigkeit und der Breite der Geschwindigkeitsverteilung. Auf der rechten Seite sind das aufgezeichnete Spektrum und die Fitkurve abgebildet.

Ein beobachtetes Spektrum ist in Abbildung 4.2 rechts dargestellt. Es wurde eine Linie des A-X-Systems gewählt, weil hier die Hyperfeinstruktur klein ist und einfache Linienformprofile beobachtet werden. Das erreichte Signal-zu-Rausch-Verhältnis war begrenzt durch erhebliches Laserstreulicht. Es wurde durch den schräg verlaufenden Laserstrahl b dicht an den Rändern der Fenster der Vakuumapparatur erzeugt und ließ sich für einen Winkel von 8° nicht weiter reduzieren. Kleinere Winkel sind ungünstig, da die Linien a und b in Abbildung 4.2 rechts dann spektral nicht mehr getrennt werden.

Die Auswertung des Signals wurde durch numerische Anpassung eines simulierten Spektrums vorgenommen. Es wurde angenommen, daß die durch Laserstrahl a erzeugte Linie ein Lorentz-förmiges Profil hat. Diese Annahme ist gerechtfertigt, da die Restdopplerbreite von 1 MHz bei der Kollimation des benutzten Molekülstrahls deutlich kleiner als die natürliche Linienbreite eines A-X-Übergangs von ca. 8 MHz ist. Auf diese Weise läßt sich die homogene Linienbreite bestimmen, die für die Bestimmung der wahrscheinlichsten Geschwindigkeit v_{prob} der Moleküle und der Breite der Verteilung Δv benötigt wird. Als verschobene Linie wird eine Faltung aus Lorentz-Profilen der Mittenfrequenz $\nu_0 + \nu_D(v)$ und der Gewichtsfunktion der Teilchendichte

$$n(\nu) \propto \left(\frac{\nu}{\Delta \nu} \right)^2 e^{-\left(\frac{\nu - \nu_{prob}}{\Delta \nu} \right)^2} \quad (4.2)$$

beobachtet. Die aus der Messung gewonnen Werte der Geschwindigkeiten sind in der Legende in Abbildung 4.2 angegeben. Der beobachtete Wert der homogenen Linienbreite liegt deutlich über der natürlichen Linienbreite und ist wahrscheinlich auf Sättigungsverbreiterung zurückzuführen.

4.2 Die Fluoreszenzdetektion

Zur Detektion von Molekülen oder Atomen im Strahl nach Anregung durch einen Laserstrahl sind sowohl in der differentiellen Pumpstufe als auch in der Interferometerkammer Photomultiplier mit Abbildungsoptiken installiert. Ihre Beobachtungsrichtung ist senkrecht zur Ebene Molekülstrahl–Laserstrahlen orientiert.

In der differentiellen Pumpstufe sind zwei Photomultiplier Hamamatsu R928 mit jeweils einer Abbildungsoptik, bestehend aus zwei Sammellinsen der Brennweite 5 cm, installiert. Es können Filter zur Unterdrückung von Laserstreulicht eingesetzt werden. Diese Abbildungsoptiken haben sich als nicht optimal erwiesen, da die Laserstrahlen dicht an den Kanten der Fenster des Vakuumgefäßes geführt werden müssen, um im Beobachtungsvolumen der Photomultiplier den Molekülstrahl zu kreuzen, wobei viel Laserstreulicht erzeugt wird [46]. Die

Umrüstung auf nur eine Beobachtungszone würde die Situation wahrscheinlich verbessern. Nachteilig ist auch die starke Ablagerung von Kalium aufgrund der schlechten Kollimation des Strahls von nur 1:6 in der differentiellen Pumpstufe, die zu einem schwachen Bedampfen der Fenster zu führen scheint. Die Einrichtung einer Kühlfalle, bzw. der Einsatz eines Skimmers mit kleinerem Durchmesser könnte hier helfen.

Die Experimente in dieser Arbeit wurden vornehmlich durch Beobachtung der Fluoreszenz in der Interferometerkammer durchgeführt. Als Detektor dient hier ein gekühlter Photomultiplier Hamamatsu R943-02. Dieser ist bis zu Wellenlängen um 900 nm empfindlich und eignet sich deshalb besonders gut zur Beobachtung der Fluoreszenz aus dem K_2 A-Zustand, die sich bei den hier beschriebenen Experimenten von 820 – 1100 nm erstreckt. Der Photomultiplierstrom wird mit einem Stromverstärker gemessen und dessen Ausgangssignal vom Meßrechner aufgezeichnet.

Um einen möglichst großen Raumwinkelbereich der Fluoreszenz zu beobachten, wurde

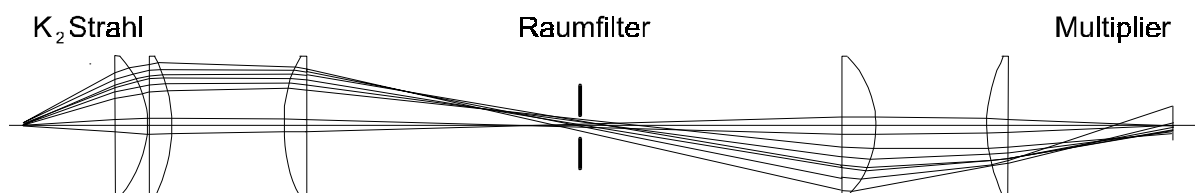


Abbildung 4.3: Abbildungsoptik für Fluoreszenz in der Interferometerzone. Der Hohlspiegel zur Verdopplung des detektierten Raumwinkelbereiches ist nicht gezeigt. Als Fluoreszenzquelle wurde eine Fläche mit 1 mm Durchmesser angenommen.

mit Hilfe des ray-tracing Programmes *Win-Lens* [47] nach einer optimalen Geometrie der abbildenden Linsen gesucht. Ebenfalls wichtig war, die optischen Komponenten nicht zu nah an den Laserstrahlen zu positionieren, um Streulicht zu vermeiden. Es wurde eine Konfiguration gefunden, die aus fünf plan-konvex Linsen mit einem Durchmesser von 63 mm sowie einem Hohlspiegel gleichen Durchmessers besteht und Fluoreszenz aus einem Raumwinkel von 1,4 sr auf den Photomultiplier abbildet. Eine schematische Abbildung des Linsensystems ist in Abbildung 4.3 zu sehen. Alle Linsen sind für den Spektralbereich von 700 – 900 nm antireflexbeschichtet, um Verluste an der großen Zahl der Grenzflächen zu vermeiden. In der Zwischenbildebene ist eine Blende als Raumfilter angebracht. Außerdem können dort verschiedene Filter eingesetzt werden. Falls nicht anders erwähnt, wurden immer ein Farbglasfilter RG 850 (3 mm) der Firma Schott zusammen mit einem Interferenzfilter mit einer Zentralwellenlänge von 878 nm und einer vollen Halbwertsbreite von 51 nm eingesetzt, um das entstehende Laserstreulicht zu unterdrücken.

Während der Planungsphase des Experimentes wurde auch der Einsatz eines Halbleiterdetektors anstelle eines Photomultipliers zur besseren Ausnutzung des infraroten Anteils der Fluoreszenz in Erwägung gezogen. Es standen sowohl eine Avalanche Photodiode, als auch eine sensitivierte CCD-Kamera zur Diskussion.

Als Photodiode waren zu der Zeit nur Geräte mit Detektionsflächen von weniger als 1 mm^2 erhältlich, die den Photomultiplier übertreffende Eigenschaften hatten. Die Verluste bei der Abbildung der Fluoreszenz auf die kleine Detektorfläche hätten allerdings die gewonnenen Vorteile wieder mehr als zunichte gemacht, weshalb deren Verwendung ausgeschlossen wurde.

Eine Kamera hätte durch relativ große spezifizierte Dunkelzählraten ebenfalls kein besseres Signal-zu-Rausch-Verhältnis ermöglicht. Außerdem hätten sich Probleme mit der routinemäßigen Umsetzung der Bilder in einfache Intensitätsinformationen ohne räumliche Auflösung und damit nicht absehbare Probleme in der Meßdatenerfassung ergeben.

4.3 Das Laserspektrometer

Für die Ramsey-Bordé-Interferometrie geeignete Übergänge des K_2 -Moleküls liegen im nahen Infrarot um 820 nm (siehe Kapitel 6.1). Für Spektroskopie in diesem Wellenlängenbereich stehen mit Diodenlasern vergleichsweise preisgünstige und zuverlässige Strahlungsquellen zur Verfügung. In diesem Kapitel wird das Laserspektrometer in dem Zustand beschrieben, wie es nach diversen Entwicklungsschritten und Verbesserungen am Ende dieser Arbeit benutzt wurde. Zu den Lasern, die zur Spektroskopie eingesetzt wurden, wird in den jeweiligen Kapiteln Stellung genommen.

Es wurde ein Laserkopf mit Gitterresonator in Littrow-Konfiguration aufgebaut [48,49]. In dieser Geometrie bilden ein Reflexionsgitter und die hintere Endfläche des Laserchips den Laserresonator. Die Stellung des Gitters wird so gewählt, daß die -1 . Beugungsordnung in den Chip zurückläuft, während die nullte Ordnung als Nutzstrahl ausgekoppelt wird. Durch die Einstellung des Gitters kann so die emittierte Wellenlänge beeinflusst und der Laser abgestimmt werden.

Zur Verbesserung der Kurzzeitstabilität der Laserfrequenz wird der Laser mit Hilfe der Pound-Drever-Hall-Methode [50,51] auf ein konfokales Fabry-Pérot-Interferometer stabilisiert. Es wird so eine Linienbreite des Lasers von 28 kHz auf einer Zeitskala von 2 s erreicht. Zwei solche Pound-Drever-stabilisierte Gitterlaser wurden außerdem in ihrer Differenzfrequenz durch Stabilisierung beider Laser auf unterschiedliche transversale Moden eines Koppelinterferometers FP festgelegt. Als Interferometer FP wurde ein konfokales Fabry-Pérot-

Interferometer mit einem freien Spektralbereich von 150 MHz verwendet. Eine ausführliche Beschreibung des Aufbaus und seiner Eigenschaften findet sich in [52].

Es wurden in allen Laserköpfen des hier beschriebenen Laserspektrometers handelsübliche single-mode Laserdioden eingesetzt. Anfangs wurden auch von der Firma Sacher entspiegelte Laserdioden verwendet, bei denen die Austrittsfacette des Laserchips mit einer Antireflexschicht versehen ist, um eine bessere Ankopplung an einen externen Resonator zu ermöglichen. Außerdem entfällt das Problem, den externen, in diesem Aufbau durch das Gitter und die hintere Facette gegebenen, Laserresonator und den Resonator des Laserchips selbst in ihrer Frequenz aufeinander abzustimmen.

Bei den zunächst verwendeten Gittern mit 1800 Linien/mm wechselte allerdings die Polarisation des emittierten Laserlichts häufig unkontrolliert, was zu einer Abnahme der ausgekoppelten Laserleistung um mehr als 80% aufgrund der sich mit der Polarisation ändernden Beugungseffizienz des Gitters führte. Das unerwünschte Verhalten ließ sich durch den Einsatz von Gittern mit 1400 Linien/mm beheben, was aber auch mit einer Verringerung der nutzbaren Laserintensität verbunden ist. Ein zweites Problem liegt in der sehr schlechten Frequenzmodulierbarkeit des Gitterlasers über den Diodenstrom, wie es bei der realisierten

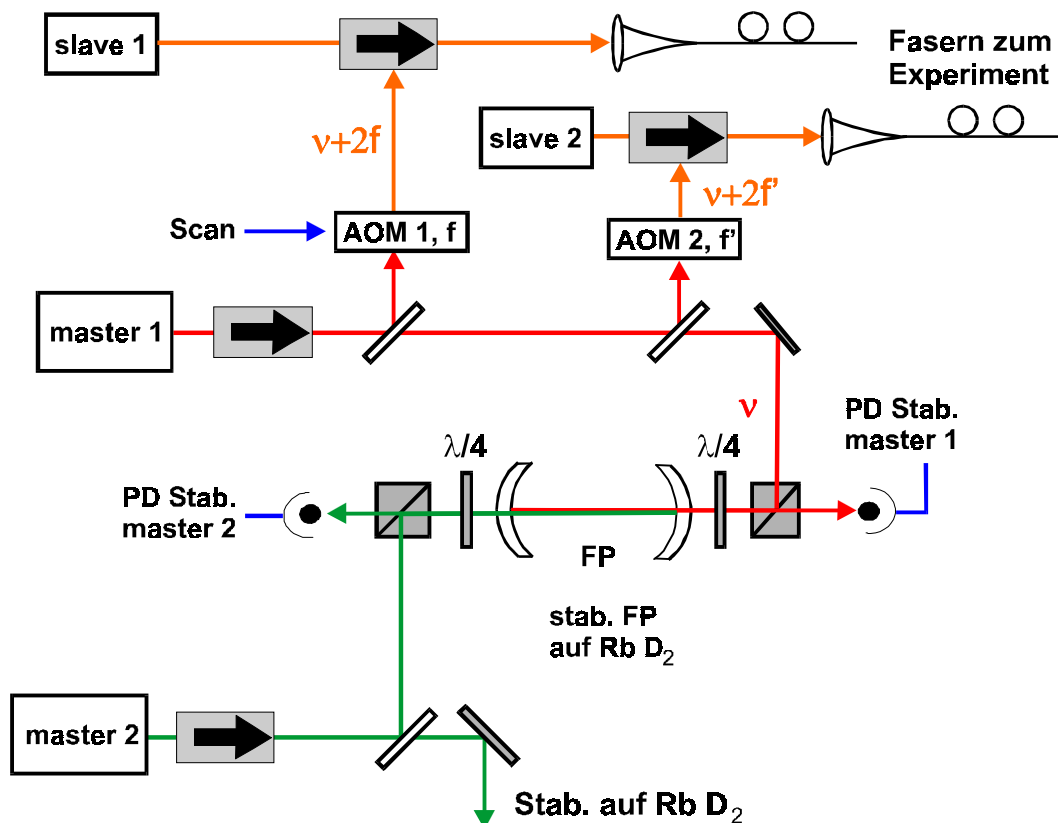


Abbildung 4.4: Schematischer Aufbau des Diodenlaserspektrometers zur Interferometrie. Beide akustooptischen Modulatoren werden im doppelten Durchgang betrieben. Eine ausführliche Beschreibung findet sich im Text.

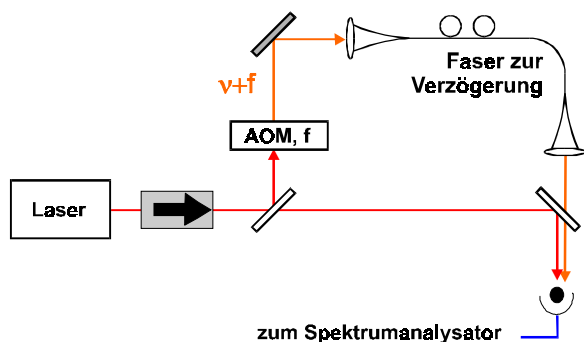


Abbildung 4.5: Schema des verzögerten Selbstheterodyn-Verfahrens zur Messung der Linienbreite eines Lasers auf kurzen Zeitskalen.

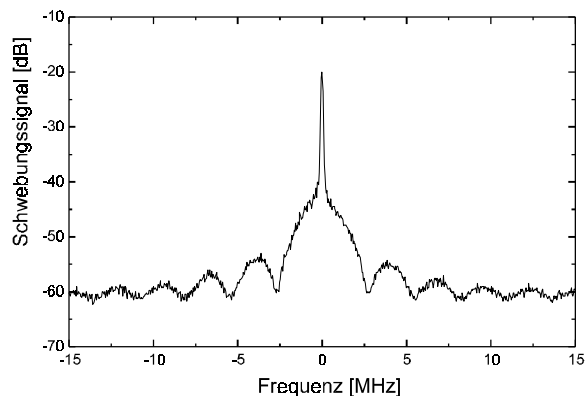


Abbildung 4.6: Mit einem Spektrumanalysator aufgenommenes Selbstheterodyn-Spektrum eines nicht stabilisierten Gitterlasers.

Pound-Drever-Stabilisierung notwendig ist. Aus diesen Gründen wurde von der weiteren Verwendung von entspiegelten Laserdioden in diesem Lasersystem abgesehen.

Gegenüber dem in [52] beschriebenen Aufbau wurden im Verlauf dieser Arbeit einige Änderungen und Erweiterungen vorgenommen, die jetzt im einzelnen diskutiert werden. Einen Überblick über den jetzigen Laseraufbau bietet Abbildung 4.4.

Zur Vereinfachung der Regelkreise der in ihrer Differenzfrequenz stabilisierten Gitterlaserköpfe aus Master 1 und Master 2 werden diese nicht mehr jeweils auf ein eigenes Fabry-Pérot-Interferometer mit der Pound-Drever-Hall-Methode frequenzstabilisiert, sondern direkt auf die gemeinsame Koppelcavity FP. Es entfallen dadurch zwei Interferometer, entsprechend auch zwei Regelkreise zu deren Stabilisierung.

Aufgrund der kleineren Linienbreite des jetzt zur Pound-Drever-Stabilisierung verwendeten Fabry-Pérot-Interferometers von ca. 1 MHz voller Halbwertsbreite anstelle der 10 MHz bei den zuvor verwendeten Interferometern, erhöht sich die Schleifenverstärkung der Regelung deutlich und der Phasengang wird aufgrund der anderen Zeitkonstante des Fabry-Pérot-Interferometers verändert. Dies führte bei den vorhandenen Regelverstärkern in der ursprünglichen Auslegung zunächst zu starken Regelschwingungen bzw. ungenügendem Regelverhalten bei niedrigeren Regelverstärkungen. Der Regelverstärker wurde daraufhin derart verändert, daß im schnellen Regelzweig, der den Laser über den Injektionsstrom der Laserdiode regelt, nur noch eine Proportionalverstärkung von 10 vorgesehen ist. Es wird hierfür ein Operationsverstärker vom Typ OP 37 mit einem Verstärkungsbandbreitenprodukt von 63 MHz verwendet. Die Regelverstärkung wurde so gewählt, daß die Regelung zu leichten Regelschwingungen gebracht werden kann. Der langsame Regelzweig zum Ausgleich von Driften ist als reiner Integrator mit einer Zeitkonstante von 0,2 s ausgeführt.

Die Auswirkungen der Umbauten auf die Linienbreite des Lasers wurden mit Hilfe eines „verzögerten Selbstheterodyn-Verfahrens“ überprüft [53]. Hierbei wird ein Schwebungssignal mit einer schnellen Photodiode beobachtet, das durch Überlagerung des Laserstrahls mit einem frequenzverschobenen und zeitlich verzögerten Anteil erzeugt wird (siehe Abbildung 4.5). Der Frequenzversatz wurde durch einen akusto-optischen Modulator erzeugt, die zeitliche Verzögerung durch eine single-mode Faserstrecke von 70 m Länge. Die Fourier-Komponenten des Photodiodenstroms wurden mit einem Spektrumanalysator gemessen. Ein auf diese Weise erzeugtes Spektrum ist in Abbildung 4.6 abgebildet. Die Bandbreite des Spektrumanalysators war 100 kHz. Es wurden mit einem Speicheroszilloskop 16 Scans gemittelt.

Das Meßverfahren ist dadurch attraktiv, daß man zur Bestimmung der Linienbreite des Lasers nicht zwei gleichartige Laser benötigt, sondern aus der Amplitude des Kohärenzpeaks im Spektrum des Diodenstroms die Linienbreite des Lasers berechnen kann. Die Faserlänge muß dabei nicht die Kohärenzlänge der Laserstrahlung überschreiten, sondern kann sich im Bereich weniger zehn Meter bewegen. Es wird bei der Analyse allerdings vorausgesetzt, daß die Linienbreite auf Zeitskalen der Verzögerungszeit durch weißes Frequenzrauschen dominiert ist [53].

Es wurden mit dem verzögerten Selbstheterodyn-Verfahren Kurzzeitlinienbreiten von 10 – 20 kHz gemessen, was vergleichbar mit den Werten vor dem Umbau ist.

Beim Betrieb mehrerer Pound-Drever-Stabilisierungen zeigten sich auf den Regelsignalen niederfrequente Oszillationen. Sie ließen sich auf schlechte Hochfrequenzabschirmungen zurückführen, die bei leicht unterschiedlichen Modulationsfrequenzen der Laser aufgrund von Exemplarstreuungen der Quarzoszillatoren zu Schwebungen mit deren Differenzfrequenz führten. Die Lecks in der Abschirmung ließen sich in den Laserköpfen lokalisieren. Da dort eine bessere Abschirmung nur schwer möglich ist, wurde der Weg verfolgt, alle Pound-Drever-Hall-Regelungen und deren Lock-In-Verstärker aus einem gemeinsamen Quarzoszillator zu speisen. Dazu wird das Modulationssignal in TTL-Form von System zu System weitergeleitet, wobei es jeweils mit einem Gatter 74 HCT 00 gepuffert wird.

Um für die Interferometerexperimente nicht nur schmalbandige, sondern auch langzeitstabile Strahlung zur Verfügung zu haben, wird Master 2 in Abbildung 4.4 mittels Sättigungsspektroskopie auf einen Hyperfeinübergang der Rubidium- D_2 -Linie stabilisiert (d/f cross-over, siehe Abbildung 4.7).

Zur Erzeugung eines antisymmetrischen Fehlersignals aus den mit einer Photodiode detektierten Sättigungsdips im Spektrum der D_2 -Linie werden die zur Pound-Drever-Hall-Stabilisierung im Abstand von 20 MHz aufmodulierten Seitenbänder benutzt. Sie erfahren

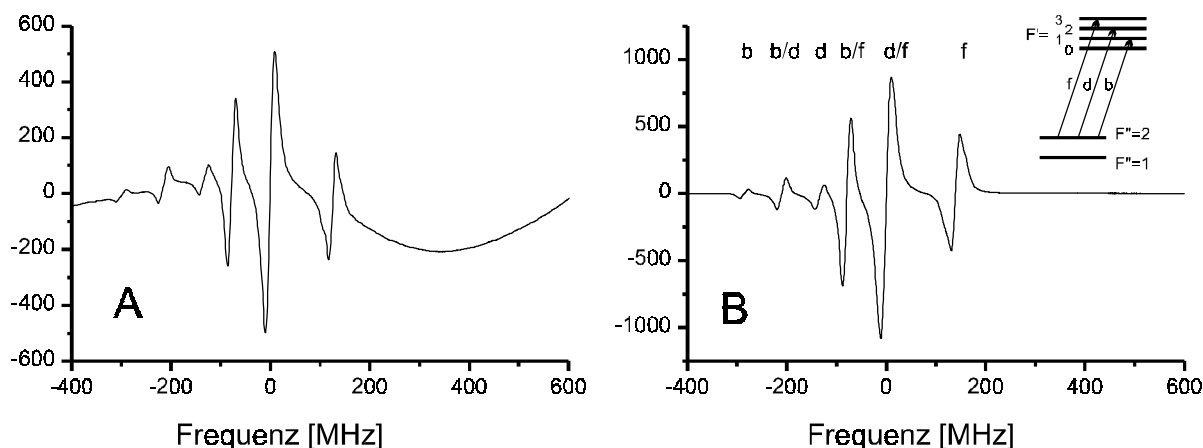


Abbildung 4.7: Teil des Hyperfeinspektrums der Rubidium-D₂-Linie des Isotops ⁸⁷Rb. Die Bezeichnungen der Übergänge sind dem Termschema zu entnehmen. Komponenten *i/j* bezeichnen cross-over-Resonanzen.

A: Spektrum am Ausgang des Hochfrequenz-Lock-In-Verstärkers mit Doppler-Untergrund

B: Spektrum nach Abzug des Doppler-Untergrunds mit einem zweiten Lock-In-Verstärker

analog zur Situation mit einer cavity in der Nähe einer Resonanz im Rubidium-Atom eine andere Phasenverschiebung als der Träger. Ein phasempfindlicher Nachweis mit einem Lock-In-Verstärker liefert ein wie in Abbildung 4.7 A dargestelltes Spektrum. Als Lock-In-Verstärker wurde ein zur Pound-Drever-Hall-Regelung baugleiches System verwendet [52]. Der verbleibende Doppler-Untergrund wird durch Unterbrechen des Pumpstrahls und einen niederfrequenten Lock-In-Nachweis auf der Unterbrecherfrequenz (ca. 440 Hz) abgezogen (Abbildung 4.7 B). Das Regelsignal wird dann mit einem einfachen PI-Regler erzeugt und auf den in FP eingebauten Piezokristall gegeben.

Auf diese Weise wird der Modenkamm von FP in seiner Frequenz fixiert, und Master 1 kann dem Experiment frequenzstabile Strahlung in Schritten dessen Modenabstands zur Verfügung stellen. Um beliebige Frequenzen zu synthetisieren, wird das Licht von Master 1 mit akusto-optischen Modulatoren (AOM, Brimrose TEF 27-10-800) in seiner Frequenz verschoben. Es kann so jede beliebige Zwischenfrequenz erreicht werden. Ohne Nachjustieren eines AOMs kann über die Änderung der Treiberfrequenz *f* des AOM die Ausgangsstrahlung des Spektrometers ca. 60 MHz abgestimmt werden. Weitere Bereiche erfordern mechanisches Justieren des AOMs. Das Verstimmen der AOM-Frequenz erfolgt entweder über einen einfachen spannungsgeregelten Oszillator (VCO), oder über einen stabilen Frequenzsynthesizer (Hewlett Packard 8660), der von der Meßdatenerfassung gesteuert wird. Dieser ermöglicht eine hohe Reproduzierbarkeit der Frequenzachse der Scans und damit einfaches Mitteln mehrerer Spektren durch direktes Summieren der Meßwerte zu gleicher Synthesizerfrequenz.

Um für das Experiment ausreichend optische Leistung zur Verfügung zu stellen, wird auf das frequenzverschobene Licht aus jedem AOM eine Laserdiode injektionsgekoppelt („slave“). Die „slave“-Dioden bestehen aus einer in Strom und Temperatur stabilisierten Laserdiode in einem kommerziellen Halter mit Kollimationsoptik (Schäfter & Kirchhoff). Eine genaue Beschreibung des Aufbaus ist in [46] zu finden. Die Injektionskopplung kann bei stabilen Umgebungsparametern wie z.B. Raumtemperatur über viele Stunden aufrecht bleiben. Das Licht aus dem AOM wird direkt in die Laserdiode eingekoppelt, deren emittierte Strahlung dann die Eigenschaften der eingekoppelten übernimmt, falls beide Frequenzen dicht genug zusammen liegen. Typische Haltebereiche bei den eingekoppelten Leistungen von $200 \mu\text{W}$ liegen im Bereich von 1 – 3 GHz. Als „slave“-Dioden wurden Laserdioden von SDL mit einer Ausgangsleistung von 100 mW verwendet. Die „slaves“ sind, wie auch die Masterlaser, durch Faraday-Isolatoren (Gsänger DLI-1, 60 dB) vor unerwünschten Rückkopplungen geschützt. Die Strahlung wird über single-mode Glasfasern zum Experiment geführt.

Es sind zwei AOMs in dem Aufbau vorgesehen, um neben der Strahlung für das Interferometer aus „slave 1“ noch eine weitere Frequenz („slave 2“) zur Untersuchung von optischem Pumpen und Modulationseffekten einsetzen zu können (vgl. Kapitel 6.4).

5 Spektroskopie am $A^1\Sigma_u^+ - b^3\Pi_u$ System von K_2

Die in diesem Kapitel vorgestellten spektroskopischen Untersuchungen dienen zunächst dem Auffinden und der Auswahl von zur Interferometrie geeigneten Übergängen im K_2 -Molekül, führen aber auch zu einem verbesserten molekülphysikalischen Verständnis von gekoppelten Zuständen. Es wird zunächst ein kurzer Überblick über die Struktur der niedrigsten elektronischen Zustände von K_2 gegeben. In Kapitel 5.2 wird dann ein theoretischer Zugang zur Wechselwirkung zwischen zwei der beteiligten Zustände vorgestellt. Die Kapitel 5.3 und 5.4 befassen sich mit der Auswertung der spektroskopischen Ergebnisse.

5.1 Grundlagen

Kalium liegt im natürlichen Gemisch in Form dreier Isotope vor: ^{39}K zu 93,1%, ^{41}K zu 6,9% und das radioaktive Isotop ^{40}K mit weniger als 0,01% Häufigkeit. Die beiden stabilen

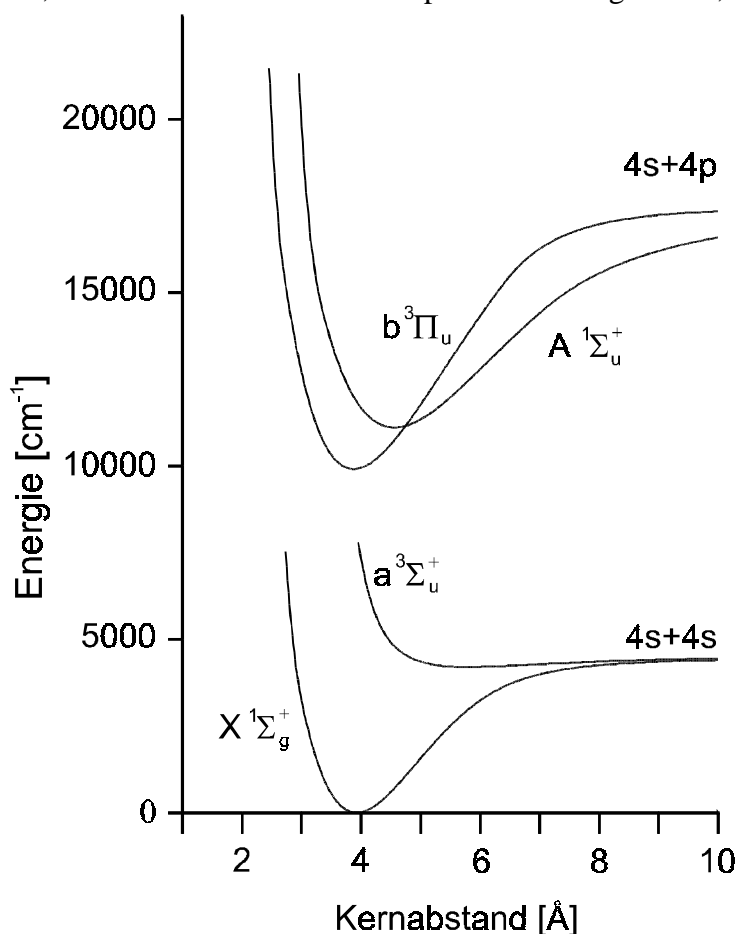


Abbildung 5.1: Vereinfachtes Potentialschema des K_2 -Moleküls, weitere Beschreibungen im Text

Isotope von Kalium haben Kernspin $3/2$. Es bilden sich im Molekülstrahl vornehmlich die Dimere $^{39-39}K_2$ (zu 86,7%) und $^{39-41}K_2$ (12,8%). Bei allen während dieser Arbeit durchgeführten Experimenten wurde mit dem homonuklearen Molekül $^{39}K_2$ gearbeitet.

Ein vereinfachtes Potentialschema von K_2 ist in Abbildung 5.1 zu sehen. Die gezeigten Kurven wurden mit Hilfe des Programms *fcfrkr* [54] anhand von Dunham-Parametern aus der Literatur berechnet. Für den X-Zustand wurden die Daten aus [55] verwendet, das Triplett-Grundzustandspotential basiert auf den Daten in [56]. Die Potentialkurven der Zustände $A^1\Sigma_u^+$ und $b^3\Pi_u$ stammen aus der

Arbeit von Jong *et al.* [57]. Eine erste Untersuchung der Zustände A und b im Bereich ν_A von 12 bis 18 wurde auch in [58] durchgeführt.

In der Arbeit von Kim *et al.* [59] sind einige weitere Termenergien von Vibrationsniveaus im Bereich des Potentialminimums des b-Zustands angegeben.

Die spektroskopischen Untersuchungen der vorliegenden Arbeit wurden mit der Technik der laserinduzierten Fluoreszenz durchgeführt. Dabei wird der Molekülstrahl mit einem in der Frequenz abstimmbaren Laserstrahl gekreuzt. Die bei Anregung einer Resonanz auftretende Fluoreszenz wird mit einem Photomultiplier beobachtet.

Die Moleküle liegen im Strahl fast ausschließlich im vibronischen Grundzustand vor. Es können Übergänge vom X- in den A-Zustand mit $J'' \rightarrow J' = J'' \pm 1$ angeregt werden [60]. Sie werden als R(J'')- bzw. P(J'')-Linie bezeichnet. J gibt den Gesamtdrehimpuls des Moleküls ohne den Kernspin an. Bei der Zuordnung von Rotationsbanden ist eine Betrachtung der relativen Intensitäten der Rotationsbanden häufig hilfreich. Aufgrund der Kernspinstatistik wechseln die Intensitäten von geraden zu ungeraden J'' annähernd im Verhältnis 6/10, wenn man die langsame Änderung der Besetzungen durch die thermische Boltzmann-Verteilung über die Rotationsniveaus und die schwache J -Abhängigkeit des Hönl-London-Faktors vernachlässigt (vgl. Abbildung 5.3). Da die Kerne im Falle von $^{39}\text{K}_2$ Spin 3/2 haben, muß die Gesamtwellenfunktion des Moleküls unter Kernvertauschung der Fermi-Statistik genügen und ihr Vorzeichen wechseln. Die Wellenfunktion des homonuklearen Moleküls ohne den Kernspinanteil ändert bei Vertauschung der Kerne im Falle eines $^1\Sigma_g^+$ -Zustands wie dem X-Zustand ihr Vorzeichen für ungerade J'' , für gerade J'' nicht [60]. Die Kernspinwellenfunktion zum totalen Kernspin $\vec{I}_{tot} = \vec{I}_1 + \vec{I}_2$ ändert für den maximalen Wert von $I_{tot} = 3$ ihr Vorzeichen nicht, genauso für $I_{tot} = 1$. Im Falle gerader I_{tot} tritt ein Vorzeichenwechsel auf. Aus dieser Betrachtung folgt, daß die Kernspins $I_{tot} = 1, 3$ mit ungeraden J'' kombinieren müssen, wogegen für gerade J'' nur $I_{tot} = 0$ und 2 in Frage kommen. Der Kernspin führt zu einem zusätzlichen Entartungsfaktor von $2I_{tot} + 1$ und erklärt die Intensitätsänderung im Verhältnis 6/10.

Zur Hyperfeinstruktur im Grundzustand X ist nur eine ältere Messung mit unbekannter Unsicherheit verfügbar. Als Kopplungsparameter eqQ für die elektrische Quadrupolwechselwirkung, die in Σ -Zuständen die Aufspaltung dominiert, wird in [61] angegeben:

$$eqQ(X) = -158 \text{ kHz} \quad \text{für } ^{39}\text{K}_2 \text{ und niedrige } \nu' \quad (5.1)$$

Für Ausführungen zur elektrischen Quadrupolwechselwirkung sei auf Kapitel 5.4 verwiesen. Gleiches gilt für die Hyperfeinstruktur des b $^3\Pi_u$ -Zustands. Über die Hyperfeinaufspal-

tung im A-Zustand ist experimentell nichts bekannt, sie wird aber wie die des X-Zustands sehr klein sein, da es sich um einen $^1\Sigma$ -Zustand handelt.

5.2 Kopplung von Zuständen in Born-Oppenheimer-Näherung

Die in Abbildung 5.1 gezeigten Potentialkurven wurden in Born-Oppenheimer-Näherung (BON) bestimmt [62,63]. In dieser Näherung werden einige Terme des molekularen Hamiltonoperators vernachlässigt, wie zum Beispiel Teile des Rotationshamiltonoperators oder relativistische Kopplungen. Für eine eingehende Diskussion sei auf [62] verwiesen.

Die vernachlässigten Terme werden nachträglich in Form kleiner Störterme eingeführt, die zur Kopplung von BO-Zuständen führen können. Grundsätzlich können nur Zustände gleicher elektronischer Paritätssymmetrie miteinander koppeln, solange der Einfluß der Hyperfeinstruktur klein ist. Man kann auch sagen, die realen Eigenzustände werden nach BO-Zuständen entwickelt.

Der Einfluß solcher Störterme wird bei der Spektroskopie der Zustände $A \ ^1\Sigma_u^+$ und $b \ ^3\Pi_u$ im K_2 -Molekül sichtbar. Die physikalische Situation soll deshalb in Hinblick auf diese Zustände genauer diskutiert werden.

Der vollständige Hamiltonoperator der Rotation \mathbf{H}^{ROT} hat nach ([62], S. 35) die Form:

$$\begin{aligned} \mathbf{H}^{ROT} = & \frac{1}{2\mu R^2} \left[(\mathbf{J}^2 - \mathbf{J}_z^2) + (\mathbf{L}^2 - \mathbf{L}_z^2) + (\mathbf{S}^2 - \mathbf{S}_z^2) \right. \\ & \left. + (\mathbf{L}^+ \mathbf{S}^- + \mathbf{L}^- \mathbf{S}^+) - (\mathbf{J}^+ \mathbf{L}^- + \mathbf{J}^- \mathbf{L}^+) - (\mathbf{J}^+ \mathbf{S}^- + \mathbf{J}^- \mathbf{S}^+) \right] \end{aligned} \quad (5.2)$$

Hierbei sind \mathbf{A}^\pm die Leiteroperatoren nach der üblichen Definition ([62], S. 37)

$$\mathbf{A}^\pm = \mathbf{A}_x \pm i\mathbf{A}_y. \quad (5.3)$$

\mathbf{L} bezeichnet den elektronischen Gesamtdrehimpuls, \mathbf{S} den elektronischen Gesamtspin, R ist der Kernabstand und μ die reduzierte Masse (3.4) mit den Massen $M_{A,B}$ der Atome A und B des Moleküls.

Die ersten drei Terme in Formel (5.2) führen zu diagonalen Beiträgen im Hamiltonoperator bei der Wahl der Basis des Hundschen Kopplungsfalls (a) [60,62] und folglich zu keiner Kopplung von BO-Zuständen. Ihr Beitrag zur Rotationsenergie E^{ROT} des Moleküls ist ([62], S. 37)

$$E^{ROT}(v, J) = \left\langle v, J, ^{2S+1}\Lambda_\Omega \left| \mathbf{H}_{diag}^{ROT} \right| v, J, ^{2S+1}\Lambda_\Omega \right\rangle = B_v \left[J(J+1) - \Omega^2 + S(S+1) - \Sigma^2 \right] \quad (5.4)$$

mit der Rotationskonstante B_v

$$B_v = (\hbar c)^{-1} \langle v | \hbar^2 / (2\mu R^2) | v \rangle. \quad (5.5)$$

Ω steht für die Projektion des elektronischen Gesamtdrehimpulses J auf die Molekülachse, Σ für die des Spins S , Λ für die des elektronischen Bahndrehimpulses L . Da L im allgemeinen keine gute Quantenzahl ist, der Erwartungswert des Operators aber nur schwach abhängig vom Kernabstand R ist, wird der Beitrag von $\mathbf{L}^2 - \mathbf{L}_z^2$ aus Gleichung (5.2) der elektronischen Energie und damit den Potentialen zugeschlagen ([62], S. 37).

Die letzten drei Terme in Gleichung (5.2) führen zu Kopplungen zwischen BO-Zuständen. Es werden hier nur Kopplungen zwischen den Feinstrukturkomponenten des b $^3\Pi_u(\Omega)$ betrachtet (s.u.), sowie zwischen A- und b-Zustand, da andere elektronische Zustände von dem spektroskopierten Bereich energetisch sehr weit entfernt liegen.

Der Term $\mathbf{L}^+\mathbf{S}^- + \mathbf{L}^-\mathbf{S}^+$ führt zu Kopplungen zwischen Zuständen mit gleichem Ω und S , sowie unterschiedlichem Λ und Σ . Es tritt also durch diesen Beitrag weder eine Wechselwirkung zwischen A- und b-Zustand auf, noch eine Kopplung der Feinstrukturkomponenten von b.

Gleiches gilt für $\mathbf{J}^+\mathbf{L}^- + \mathbf{J}^-\mathbf{L}^+$, da sich bei Anwendung dieses Operators die Projektion des elektronischen Drehimpulses Λ auf die Molekülachse ändert, S aber gleich bleibt.

Nichtverschwindend ist dagegen die Wirkung von $\mathbf{J}^+\mathbf{S}^- + \mathbf{J}^-\mathbf{S}^+$. Sie führt zur Kopplung von Zuständen mit $\Delta\Omega = \Delta\Sigma = \pm 1$, wogegen gilt $\Delta S = \Delta\Lambda = 0$. Es werden also die Feinstrukturkomponenten $\Omega = 0^+$ und 1, sowie $\Omega = 1$ und 2 des b $^3\Pi_u$ -Zustands gekoppelt. Die Matrixelemente ergeben sich wie folgt ([62] S. 115):

$$\begin{aligned} & \langle v_1, J, ^{2S+1}\Lambda_\Omega | \frac{-1}{2\mu R^2} (\mathbf{J}^+\mathbf{S}^- + \mathbf{J}^-\mathbf{S}^+) | v_2, J, ^{2S+1}\Lambda_{\Omega+1} \rangle \\ & = -\langle v_1 | \frac{1}{2\mu R^2} | v_2 \rangle \sqrt{J(J+1) - \Omega(\Omega+1)} \sqrt{S(S+1) - \Sigma(\Sigma+1)} \end{aligned} \quad (5.6)$$

Ebenfalls in der BON nicht berücksichtigt sind relativistische Kopplungen der Spins an andere Drehimpulse im Molekül. Sie werden phänomenologisch eingeführt ([62], S. 87).

Es können der Spin-Bahn-Operator \mathbf{H}^{SO} , der Spin-Rotationsoperator \mathbf{H}^{SR} , sowie die Spin-Spin-Wechselwirkung \mathbf{H}^{SS} auftreten.

\mathbf{H}^{SO} führt zu einem diagonalen Beitrag

$$\begin{aligned}
 \langle b \Omega = 0 | \mathbf{H}^{\text{SO}} | b \Omega = 0 \rangle &= -A \\
 \langle b \Omega = 1 | \mathbf{H}^{\text{SO}} | b \Omega = 1 \rangle &= 0 \\
 \langle b \Omega = 2 | \mathbf{H}^{\text{SO}} | b \Omega = 2 \rangle &= +A,
 \end{aligned}
 \tag{5.7}$$

der die Feinstrukturkomponenten $\Omega = 0, 1, 2$ des $b^3\Pi_u$ -Zustands energetisch aufspaltet ([62], S. 89). A bezeichnet die Spin-Bahn-Aufspaltung. Es wurde hierbei angenommen, daß \mathbf{H}^{SO} im betrachteten Bereich nicht vom Kernabstand R abhängt, was für große Bereiche von R sicher nicht richtig ist, für den Bereich des Potentialminimums aber häufig eine gute Näherung darstellt.

Außerdem führt \mathbf{H}^{SO} zu einer Kopplung von $A^1\Sigma_u^+$ - und $b^3\Pi_u(0^+)$ -Zustand und ist damit für die sogenannten Störungen des System verantwortlich. Nimmt man wieder an, daß sich \mathbf{H}^{SO} nur wenig mit dem Kernabstand ändert, ergibt sich das Wechselwirkungsmatrixelement

$$\langle A^1\Sigma_u^+ v_A | \mathbf{H}^{\text{SO}} | b^3\Pi_u(0^+) v_b \rangle = \zeta \langle v_A | v_b \rangle
 \tag{5.8}$$

zwischen beiden Zuständen. Es hängt also von einer Konstanten ζ und dem Überlappintegral der betrachteten Vibrationswellenfunktionen ab. Da diese Überlappintegrale für ein gegebenes v_1 in einer großen Spanne von v_2 nichtverschwindend sein können, werden Einflüsse von energetisch weiter entfernten Niveaus zu erwarten sein, auch wenn die Kopplung mit wachsendem Abstand abnehmen wird.

Der Einfluß der Störungen auf die Rotationsniveaus in zwei Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$ ist in Abbildung 5.2 veranschaulicht. Es kommt zu einer Abstoßung der Rotationszustände mit gleichem Drehimpuls, die für koinzidierende Energien am größten wird. Ob die Rotationsni-

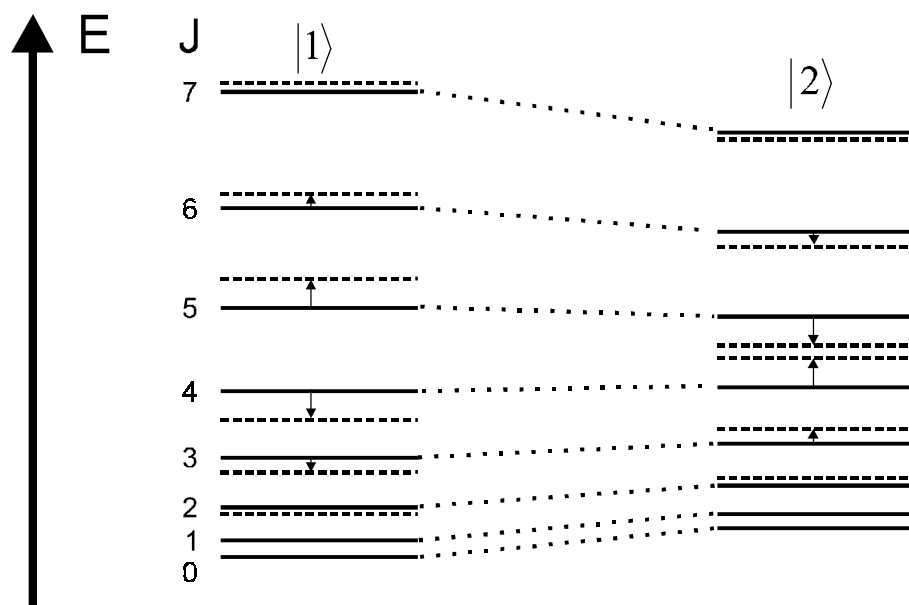


Abbildung 5.2: Schematische Darstellung der Termlagen von gestörten (---) und ungestörten (—) Rotationsniveaus

veaus eines Zustands mit wachsendem J zunächst zu höheren oder niedrigeren Energien verschoben werden, ist von der Differenz der Rotationskonstanten beider Zustände abhängig. Gezeigt ist der Fall von $B_1 > B_2$.

Der Spin-Rotationsoperator \mathbf{H}^{SR} führt zu einer Kopplung innerhalb des b-Zustands, die analog zur Rotationskopplung in Gleichung (5.6) ist. Allerdings übernimmt die Rolle der Rotationskonstante die Spin-Rotationskopplungskonstante γ ([62], S. 98)

$$\begin{aligned} & \langle J, {}^{2S+1}\Lambda_\Omega | \mathbf{H}^{\text{SR}} | J, {}^{2S+1}\Lambda_{\Omega+1} \rangle \\ & = \gamma/2 \sqrt{J(J+1) - \Omega(\Omega+1)} \sqrt{S(S+1) - \Sigma(\Sigma+1)} \end{aligned} \quad (5.9)$$

Auffällig ist, daß der Einfluß der Spin-Rotationskopplung dem der Rotationskopplung entgegenwirkt, wie aus dem zusätzlichen Vorzeichen in Gleichung (5.6) zu erkennen ist.

Außerdem tritt ein diagonaler Beitrag von \mathbf{H}^{SR}

$$\langle J, {}^{2S+1}\Lambda_\Omega | \mathbf{H}^{\text{SR}} | J, {}^{2S+1}\Lambda_\Omega \rangle = \gamma[\Sigma^2 - S(S+1)] \quad (5.10)$$

auf ([62], S. 97). Aus der expliziten Form von \mathbf{H}^{SR} kann man entnehmen, daß γ ungefähr im Verhältnis der Elektronenmasse m_e zur Neutronenmasse m_N kleiner ist als ζ in Gleichung (5.8) ([62], S. 99), was zu

$$\gamma \propto \frac{m_e}{m_N} \zeta \quad (5.11)$$

führt. Mit dem Literaturwert für ζ aus [57] von

$$\zeta \approx 19 \text{ cm}^{-1} \quad (5.12)$$

ergibt sich für γ ein Wert in der Größenordnung von

$$\gamma \approx \frac{1}{1836} \cdot 19 \text{ cm}^{-1} \approx 0,010 \text{ cm}^{-1}. \quad (5.13)$$

Dieser Wert liegt damit in der Größe der Rotationskonstante B des b $^3\Pi_u$ -Zustands aus [57] von

$$B \approx 0,057 \text{ cm}^{-1} \quad (5.14)$$

und läßt somit eine Spin-Rotationskopplung von größenordnungsmäßig 1/10 der Rotationskopplung erwarten.

Der Spin-Spin-Operator \mathbf{H}^{SS} führt in erster Ordnung nur zu diagonalen Beiträgen in der Energie ([62], S. 101). Sie haben die Form

$$\langle J, ^{2S+1}\Lambda_\Omega | \mathbf{H}^{\text{SS}} | J, ^{2S+1}\Lambda_\Omega \rangle = \varepsilon[3\Sigma^2 - S(S+1)], \quad (5.15)$$

wobei ε als Spin-Spin-Kopplungskonstante eingeführt wurde.

Die Wechselwirkungen und Energien von Niveaus mit Drehimpuls J der beiden elektronischen Zustände sind in der folgenden Matrix H des Unterraums A $^1\Sigma_u^+$ und b $^3\Pi_u$ zusammengefaßt. Als Basis wurden die Vibrations- und Rotationszustände des Moleküls gewählt.

$$\mathbf{H} = \begin{pmatrix} \Omega_A = 0 & \Omega_b = 0 & \Omega_b = 1 & \Omega_b = 2 \\ T_\Sigma + B_v^\Sigma X & \zeta \langle v_A | v_b \rangle & 0 & 0 \\ \zeta \langle v_A | v_b \rangle & T_\Pi - A + B_v^\Pi [X+1] + c & (\frac{\gamma}{2} - B_{vv'})\sqrt{2X} & 0 \\ 0 & (\frac{\gamma}{2} - B_{vv'})\sqrt{2X} & T_\Pi + B_v^\Pi [X+1] - 2(\gamma + \varepsilon) & (\frac{\gamma}{2} - B_{vv'})\sqrt{2X-4} \\ 0 & 0 & (\frac{\gamma}{2} - B_{vv'})\sqrt{2X-4} & T_\Pi + A + B_v^\Pi [X-3] + c \end{pmatrix} \quad (5.16)$$

$$\text{mit } X := J(J+1), \quad B_{vv'} = \langle v | \frac{1}{2\mu R^2} | v' \rangle, \quad c = -\gamma + \varepsilon$$

Die Größen T_Σ und T_Π geben die Termenergie der jeweiligen Vibrationsbande an. Wie man der Wechselwirkungsmatrix entnehmen kann, besteht eine starke Korrelation zwischen dem Spin-Spin Parameter ε , der Termenergie T_Π und der Spin-Bahn-Aufspaltung A . Die Wirkung von ε besteht in nicht mehr äquidistanten Feinstrukturaufspaltung der drei Ω -Komponenten des $^3\Pi_u$. Liegt keine detaillierte Kenntnis über alle Feinstrukturkomponenten vor, wird es kaum möglich sein, den Einfluß der kleinen Größe ε zu separieren. Sofern vorhanden wird er also zu A und T_Π beitragen.

Wie man an der Wechselwirkungsmatrix (5.16) erkennt, bilden die BO-Zustände in Anwesenheit der diskutierten Störterme keine Basis von Eigenfunktionen mehr. Die Eigenzustände des durch die Nichtdiagonalelemente in (5.16) gekoppelten Systems erhält man durch Diagonalisieren der Matrix, was zu einer Mischung der BO-Zustände führt.

5.3 Entstörung des A $^1\Sigma_u^+$ – b $^3\Pi_u$ Systems

Das Ziel der im folgenden durchgeführten Entstörungsanalyse ist es, unter Ausnutzung der physikalischen Zusammenhänge die aus spektroskopischen Untersuchungen gewonnenen Informationen auf einen wesentlich weniger umfangreichen Parametersatz zu reduzieren. Dieser sollte die ursprünglichen Daten möglichst genau reproduzieren und in beschränkten Bereichen Voraussagen auf noch nicht beobachtete Niveaus ermöglichen.

5.3.1 Spektroskopische Untersuchungen

Als Grundlage für das Erstellen eines Parametersatzes wird ein Datensatz benötigt, der Informationen über alle zu beschreibenden Teile enthält. Die in der Literatur bisher veröffentlichten Arbeiten basieren allerdings vorwiegend auf gemessenen Übergängen in den A-Zustand, es wurden nur wenige sogenannte „extra Linien“ des b-Zustands in Bereichen besonders großer Störungen beobachtet. Informationen über den $b \ ^3\Pi_u$ -Zustand konnten daher nur indirekt aus Verschiebungen der Linien des A-Zustands gewonnen werden. Dies geht aus den veröffentlichten Termenergien [57], bzw. aus den der Analyse zu Grunde liegenden Meßdaten hervor, die freundlicherweise zur Verfügung gestellt wurden [64,65]. Einige nicht veröffentlichte Daten von C. Amiot [66] konnten ebenfalls berücksichtigt werden. Die Unsicherheiten der Daten von Jong [57,65] ist mit $0,015 \text{ cm}^{-1}$ angegeben, die der von Ross [58,64] mit $0,040 \text{ cm}^{-1}$, bzw. $0,005 \text{ cm}^{-1}$ bei Amiot.

Wie aus den ersten beiden Abschnitten des Kapitels hervorgeht, ist die direkte Anregung in den b-Zustand aus dem Molekülgrundzustand $X \ ^1\Sigma_g^+$ wegen der Änderung der Multiplizität von Singulett nach Triplet verboten, es tritt allerdings eine Mischung von $A \ ^1\Sigma_u^+$ und $b \ ^3\Pi_u(0^+)$ auf. Ist der Versuchsaufbau empfindlich genug, sodaß auch schwache Anregungen in die 0^+ -Komponente und damit deren Spektren beobachtet werden können, gibt es die Möglichkeit, direkt Informationen über den b-Zustand zu gewinnen.

Es konnten während dieser Arbeit auf die beschriebene Weise Spektren $b \ 0^+ (v' = 23 - 31) \leftarrow X (v'' = 0)$ und $A (v' = 13 - 22) \leftarrow X (v'' = 0)$ beobachtet werden. Beschränkt wurde dieser Bereich zu kleinen v' durch die geringere Nachweisempfindlichkeit des Photomultipliers auf die Fluoreszenz bei immer langwelligerer Anregung. Zu großen v' sind die sich schnell verringernden Franck-Condon-Faktoren und damit die abnehmende Anregungswahrscheinlichkeit limitierend.

Zur Spektroskopie diente ein Diodenlaserspektrometer mit einer beheizten Jodzelle zur Bestimmung der Frequenz durch Absorptionsspektroskopie und Vergleich mit dem Jod-Atlas [67] und einem evakuierten und temperaturstabilisierten Fabry-Pérot-Interferometer mit einem freien Spektralbereich von 150 MHz für relative Frequenzen. Als Laserkopf wurden sowohl freilaufende, in Strom und Temperatur stabilisierte Laserdioden als auch Gitterlaser in Littrow-Konfiguration eingesetzt. Die spektralen Breiten der emittierten Laserstrahlung liegen ungefähr bei 30 MHz bzw. 1 MHz. Die Unsicherheit der Frequenzbestimmung der gemessenen Übergänge läßt sich nach oben mit $0,005 \text{ cm}^{-1}$ abschätzen und ist gegeben durch die Unsicherheit des Jod-Atlases von $0,003 \text{ cm}^{-1}$ und die Unsicherheit bei der Bestimmung

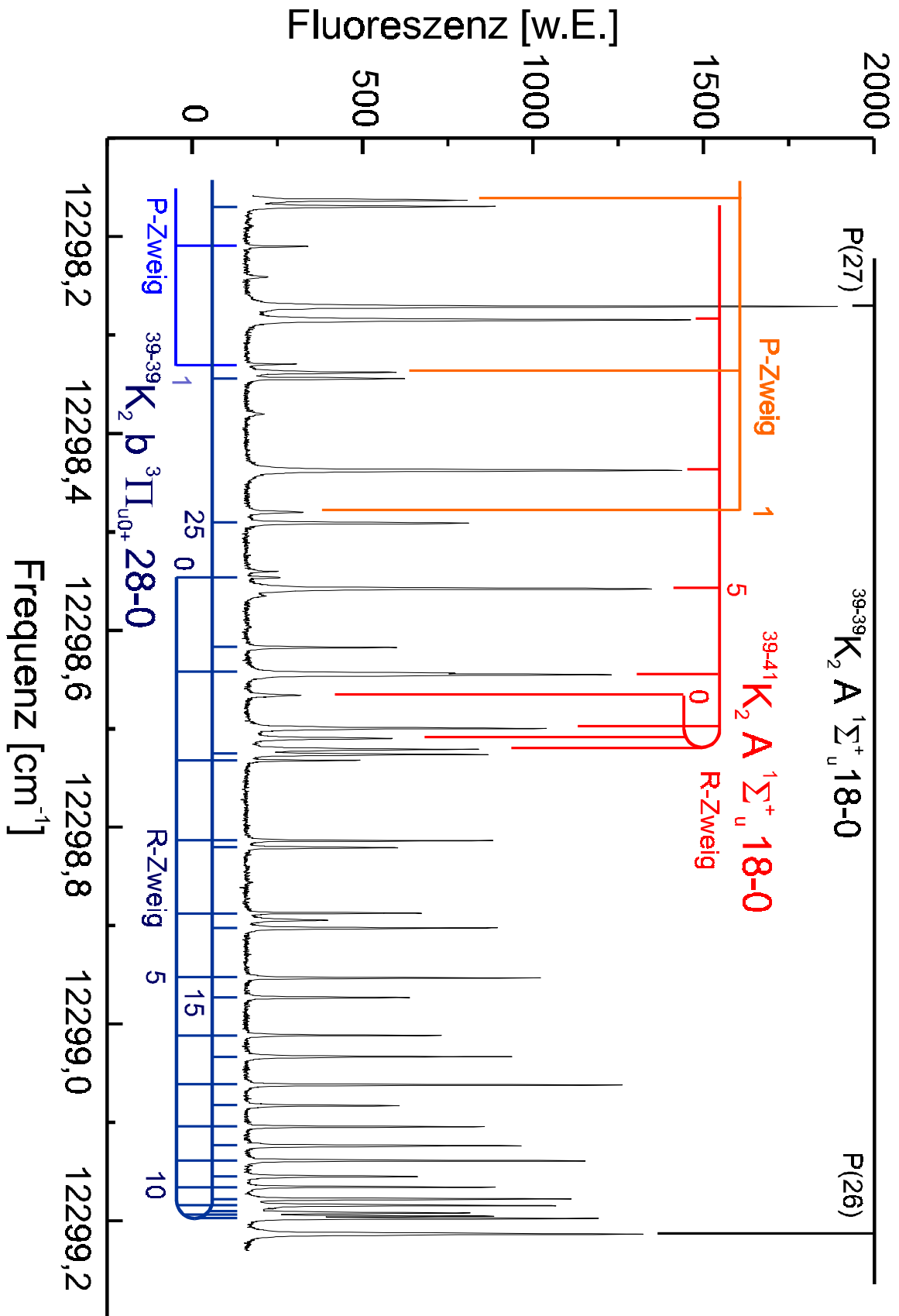


Abbildung 5.3: Bandenköpfe von Übergängen im $b(0^+) \leftarrow X$ in $^{39}K_2$ und $A \leftarrow X$ in $^{39-41}K_2$. Gut zu erkennen ist der in Kapitel 5.1 beschriebene Intensitätswechsel zwischen geraden und ungeraden Drehimpulsen im homonuklearen Molekül, der beim heteronuklearen verschwindet.

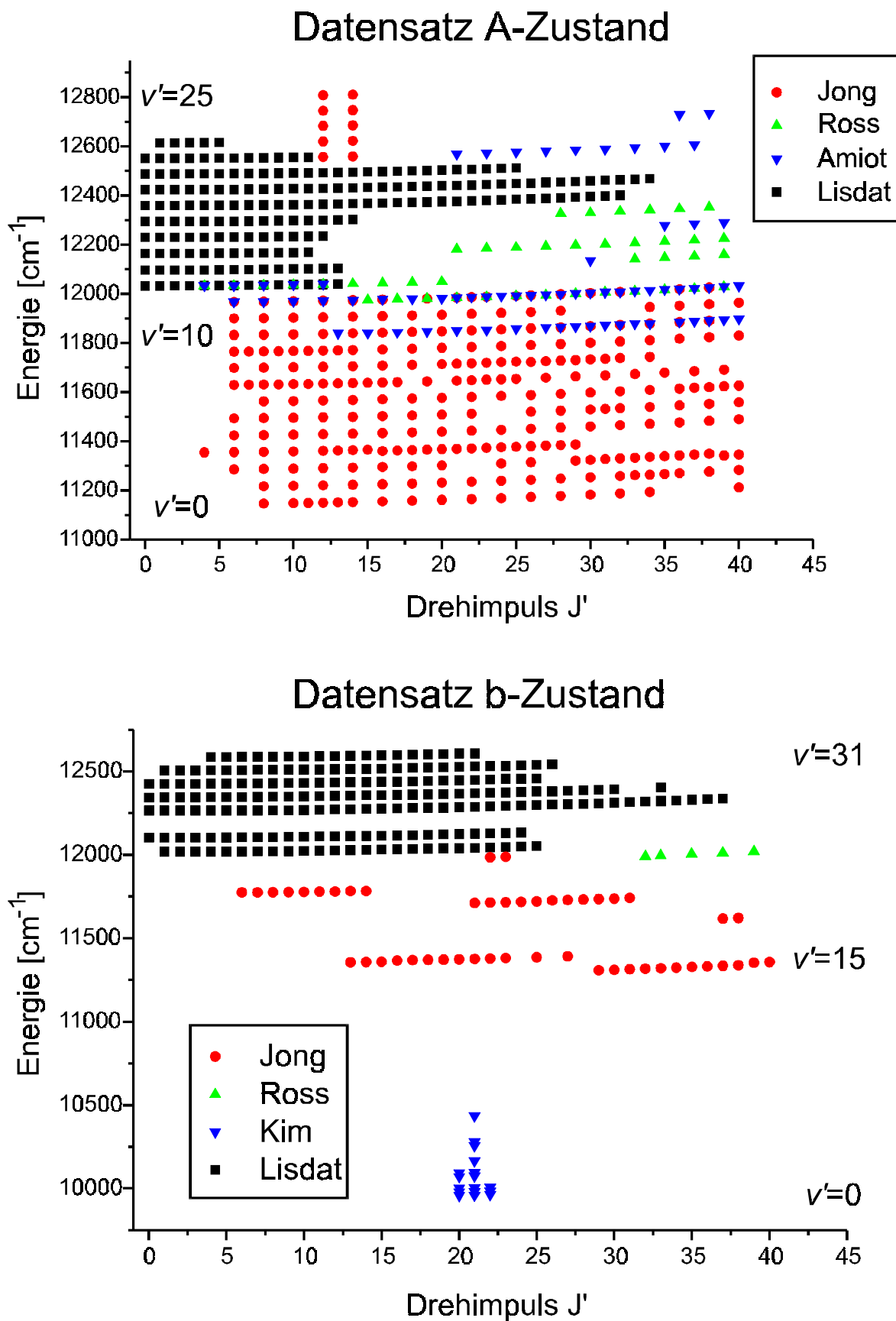


Abbildung 5.4: Zusammenstellung der verwendeten Daten für den A- und b-Zustand im Bereich $J' < 40$ und v_A bis 25, bzw. v_b bis 31. In den Legenden bezieht sich *Jong* auf [57,65], *Ross* auf [58,64], *Kim* auf [59] und *Amiot* auf [66].

der Extrema der Jodabsorptionslinien. Es standen für die Spektroskopie zwischen 10 und 30 mW Laserleistung am Vakuumtopf zur Verfügung.

Als Beispiel für beobachtete Spektren dient Abbildung 5.3, in der die 28 – 0 Bande des $b(0^+) \leftarrow X$ Systems, sowie ein Bandenkopf der 18 – 0 Bande $A \leftarrow X$ des heteronuklearen Moleküls $^{39-41}\text{K}_2$ zu sehen sind. Die Zuordnung wurde anhand der Literaturdaten und der Intensitätswechsel zwischen geraden und ungeraden Drehimpulsen durchgeführt.

Wenn Linienpaare $R(J'') - P(J'' + 2)$ mit gemeinsamen oberem Niveau $J' = J'' + 1$ beobachtet wurden, konnten diese aufgrund ihrer alleine durch das gut bekannte Grundzustandspotential gegebenen Energiedifferenz sicher zugeordnet werden. Dies war jedoch nicht in allen Banden möglich, da die Laser teilweise hinsichtlich ihres Abstimmbereichs stark eingeschränkt waren. So wurde die Priorität bei den Messungen auf die Bandenköpfe mit einer großen Dichte von Linien gelegt. Da dieser speziell im b-Zustand aber aus R-Linien mit vergleichsweise hohen Drehimpulsen besteht, konnte der P-Zweig teilweise gar nicht oder nicht weit genug spektroskopiert werden, um Paare $R(J'') - P(J'' + 2)$ von Linien mit gemeinsamem oberem Niveau zu beobachten. In diesen Fällen mußte die Zuordnung der Rotationsquantenzahlen durch die in den nachfolgenden Abschnitten beschriebene Analyse bestätigt werden. Die beobachteten Übergangsfrequenzen sind im Anhang zusammengestellt. Es konnte so erstmals ein umfangreicher Datensatz für den b $^3\Pi_u$ erstellt werden, der sich allerdings aus den oben bereits erwähnten Gründen der möglichen Anregungswellenlängen auf relativ hohe Vibrationsniveaus beschränkt. Eine Zusammenstellung der Daten im Bereich $J' < 40$ und maximale Vibrationsquantenzahlen von $v_A = 25$ bzw. von $v_b = 31$ ist in Abbildung 5.4 zu sehen. Die Anzahl der Termenergien und Übergangsfrequenzen beträgt für den b-Zustand etwa 300, für den A-Zustand ungefähr 710.

5.3.2 Lokale Entstörung im Dunham-Formalismus

Eine häufig verwendete Beschreibung der Energien E der Niveaus eines Moleküls ist die Beschreibung mit einer Potenzreihe in $(v + 1/2)$ und $J(J + 1)$:

$$E(v, J) = \sum_{l,k} Y_{lk} \cdot (v + 1/2)^l \cdot [J(J + 1) - \Omega^2]^k \quad (5.17)$$

Die Entwicklungskoeffizienten Y_{lk} sind die Dunham-Parameter. Es lassen sich so Größen wie der Ursprung T_v von Vibrationsbanden, die Rotationskonstante B_v oder Zentrifugalkorrekturen D_v und H_v in einer Reihenentwicklung über v schreiben:

$$\begin{aligned}
T_v &= Y_{00} + Y_{10}(v + 1/2) + Y_{20}(v + 1/2)^2 + \dots \\
B_v &= Y_{01} + Y_{11}(v + 1/2) + Y_{21}(v + 1/2)^2 + \dots \\
-D_v &= Y_{02} + Y_{12}(v + 1/2) + Y_{22}(v + 1/2)^2 + \dots \\
H_v &= Y_{03} + Y_{13}(v + 1/2) + Y_{23}(v + 1/2)^2 + \dots
\end{aligned} \tag{5.18}$$

Die allgemeine Beschreibung der Störungen zweier elektronischer Zustände wie in Kapitel 5.2 geschildert, läßt sich im Dunham-Formalismus relativ einfach durch eine lokale Beschreibung annähern. Dies ist auch ein in der Literatur häufig eingeschlagener Weg [57,58,68]. Es wird dabei die Energie eines Niveaus beschrieben, indem eine Matrix mit den Termenergien dieses und der störenden benachbarten Zustände, sowie deren Kopplungen aufgestellt wird. Die Eigenwerte dieser Matrix ergeben dann aus den durch eine Dunhamreihe gegebenen „ungestörten“ die tatsächlichen „gestörten“ Energien. Für die hier interessierende Kopplung von $A^1\Sigma_u^+$ - und $b^3\Pi_u$ -Zustand gibt Effantin [69] die Wechselwirkungsmatrix (5.16) in Dunham-Näherung unter Berücksichtigung von Zentrifugalkorrekturen für ein Niveau des A-Zustands, sowie die drei Feinstrukturkomponenten des $^3\Pi_u$ wie folgt an:

$$\begin{aligned}
\langle ^1\Sigma | \mathbf{H} | ^1\Sigma \rangle &= T_\Sigma + B_v^\Sigma X - D_v^\Sigma X^2 + H_v^\Sigma X^3 \\
\langle ^3\Pi_0 | \mathbf{H} | ^3\Pi_0 \rangle &= T_\Pi - A + B_v^\Pi(X + 1) - D_v^\Pi(X^2 + 4X + 1) + H_v^\Pi(X^3 + 9X^2 + 9X + 1) \\
\langle ^3\Pi_1 | \mathbf{H} | ^3\Pi_1 \rangle &= T_\Pi + B_v^\Pi(X + 1) - D_v^\Pi(X^2 + 6X - 3) + H_v^\Pi(X^3 + 15X^2 - 5X - 5) \\
\langle ^3\Pi_2 | \mathbf{H} | ^3\Pi_2 \rangle &= T_\Pi + A + B_v^\Pi(X - 3) - D_v^\Pi(X^2 - 4X + 5) + H_v^\Pi(X^3 - 3X^2 + 5X - 7) \\
\langle ^3\Pi_0 | \mathbf{H}_{\text{Rot}} | ^3\Pi_1 \rangle &= -\sqrt{2X} [B_v^\Pi - 2D_v^\Pi(X + 1) + H_v^\Pi(3X^2 + 10X - 1)] \\
\langle ^3\Pi_0 | \mathbf{H}_{\text{Rot}} | ^3\Pi_2 \rangle &= \sqrt{X(X - 2)} [-2D_v^\Pi + 2H_v^\Pi(3X - 1)] \\
\langle ^3\Pi_1 | \mathbf{H}_{\text{Rot}} | ^3\Pi_2 \rangle &= -\sqrt{2X - 4} [B_v^\Pi - 2D_v^\Pi(X - 1) + H_v^\Pi(3X^2 - 2X + 3)]
\end{aligned} \tag{5.19}$$

mit $X := J(J + 1)$

Zu beachten ist, daß gegenüber (5.16) die Rotationskopplung (5.6) zwischen unterschiedlichen Vibrationsniveaus vernachlässigt wird. Genauso wurden die Spin-Spin und Spin-Rotationswechselwirkung vernachlässigt. Der Beitrag zur Rotationsenergie der Feinstrukturkomponenten durch den Term $S(S + 1) - \Sigma^2$ in (5.4) ist dagegen berücksichtigt.

Problematisch bei dieser Art der Beschreibung ist die Wahl der Größe der Matrix und damit die Anzahl der miteinander wechselwirkenden Niveaus, da der Beitrag von weit entfernten Niveaus nur schwer abzuschätzen ist.

In der Arbeitsgruppe wurde bereits ein Programm zur numerischen Anpassung von Dunham-Parametern mit Hilfe eines nichtlinearen Fitalgorithmus [70] an beobachtete Übergänge

in gestörten Systemen erstellt und für die Entstörung von Spektren von Na₂ verwendet [71]. Es beruht auf dem in (5.19) gegebenen Ausdruck zur Beschreibung der Energie von Übergängen, wobei Parameter für den Grundzustand zur Berechnung von Termenergien aus den gemessenen Übergangsfrequenzen bereitgestellt werden müssen. Für die Anpassung der spektroskopierten Übergänge im K₂ wurde hierfür der Datensatz aus [55] gewählt. Das Programm berechnet die Energie jedes beobachteten Übergangs und vergleicht diese mit den experimentellen Ergebnissen. Die Abweichungen zwischen beiden wird durch die jeweilige experimentelle Unsicherheit geteilt und der so gewonnene Wert quadriert. Die Summe dieser Quadrate (die sogenannte Fehlerquadratsumme oder χ^2 -Funktion) wird dann vom Programm durch Variation der Dunham- und Kopplungsparameter der Zustände minimiert. Bei einer guten Beschreibung der experimentellen Werte sollte sich so eine Fehlerquadratsumme in der Größe der Anzahl der anzupassenden Werte ergeben.

Gegenüber der ursprünglichen Programmversion wurden einige Erweiterungen vorgenommen. Die Wechselwirkungsmatrix wurde auf jeweils fünf benachbarte Niveaus aus A- und b-Zustand erweitert, sodaß sich eine Dimension von 20 ergibt. Die Niveaus sind so gewählt, daß das anzupassende energetisch zentriert liegt.

Da sich durch die Variation der Dunham-Parameter nicht nur die Energie der jeweiligen Zustände ändert, sondern auch die Form der damit verbundenen Potentiale, besteht eine Rückwirkung durch die Überlappintegrale auf das Matrixelement (5.8). Um zu einer konsistenten Beschreibung zu gelangen, wurden deshalb mit Hilfe des Programmes *fcfrkr* [54] in jedem Iterationsschritt die Überlappintegrale neu berechnet. Die Abhängigkeit der Überlappintegrale vom Drehimpuls durch das zusätzlich auftretende Zentrifugalpotential wurde näherungsweise berücksichtigt, indem zwischen den Werten für die Drehimpulse 0, 20, 40, 60, 80 und 100 linear interpoliert wurde.

Um die Zahl der benötigten Fitparameter klein zu halten, wurden außerdem in jedem Iterationsschritt mit Hilfe des Programmes *cdist* [72] Zentrifugalkorrekturen $Y_{k,2}$ und $Y_{k,3}$ aus den Potentialen berechnet. Eine schematische Darstellung des Programmablaufs ist in Abbildung 5.5 zu sehen.

Mit dem so modifizierten Programm wurde eine Reihe von Fits mit acht freien Parametern pro Zustand, sowie der Spin-Bahn-Aufspaltung A und der elektronischen Kopplungskonstante ζ durchgeführt. Der Datensatz umfaßte neben den in Abbildung 5.4 dargestellten Werten eine Reihe von Linien des A-Zustands zu höheren Drehimpulsen bis maximal 100 aus [57] und [64].

In den Anpassungen wurden lediglich Standardabweichungen $\sigma = \sqrt{\chi^2 / (N_{Mes} - N_{Par})}$ von leicht unter vier erreicht. Die Standardabweichung berechnet sich aus der Wurzel der

Fehlerquadratsumme χ^2 , die durch die Anzahl der anzupassenden Werte N_{Mes} abzüglich der Anzahl der freien Parameter N_{Par} geteilt wurde. Versuche, diesen unbefriedigenden Wert durch Erhöhen der Zahl von Dunham-Parametern zu verringern, blieben erfolglos. Gleiches gilt für Ansätze, eine Variation von ζ oder A mit dem Kernabstand R zuzulassen:

Für den nichtdiagonalen Anteil von $\mathbf{H}^{SO}(R)$ (5.8) wurden sogenannte R-Zentroide benutzt, die bei einer Reihenentwicklung von \mathbf{H}^{SO} in R auftreten:

$$\langle A^1\Sigma_u^+ v_A | \mathbf{H}^{SO} | b^3\Pi_u(0^+) v_b \rangle \approx \zeta (\langle v_A | v_b \rangle + \xi \langle v_A | R | v_b \rangle / \langle v_A | v_b \rangle) + O(R^2) \quad (5.20)$$

Die Werte der R-Zentroide wurden ebenfalls mit *fcfrkr* berechnet.

Im Falle der Spin-Bahn-Aufspaltung A wurde ein Parameter α eingeführt, der multipliziert mit $(v + 1/2)$ eine Änderung

$$A + \alpha \cdot (v + \frac{1}{2}) \quad (5.21)$$

über die Vibrationsleiter erlaubt.

Eine genauere Analyse der berechneten Energien und ihrer Abweichungen von den beobachteten Werten zeigte, daß die Fehlerquadratsumme durch die Abweichungen in den Vibra-

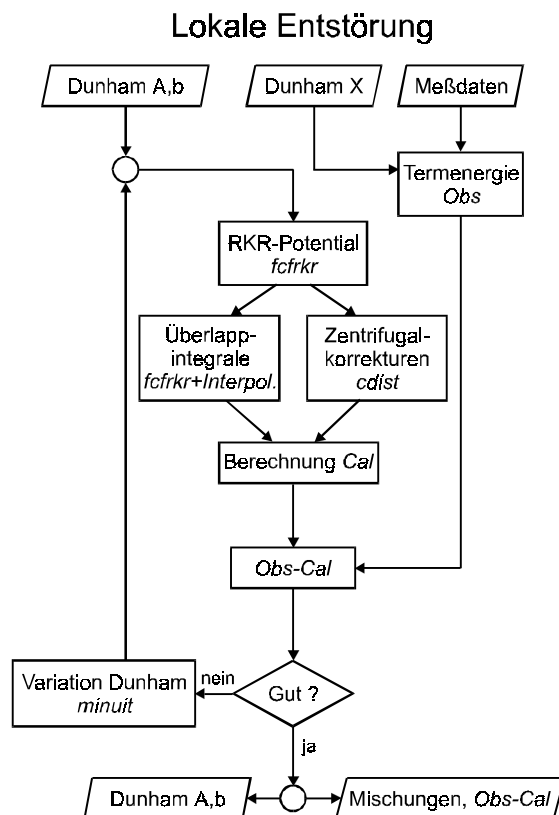


Abbildung 5.5: Schema des Programmablaufs zur lokalen Entstörung

tionsniveaus 0 und 1 des A-Zustands dominiert wurde. Die experimentellen Werte waren dabei bei $v_A = 0$ systematisch um mehr als $0,1 \text{ cm}^{-1}$ zu hohen Energien verschoben. Für $v_A = 1$ traten Abweichungen zu niedrigeren Energien auf, dann wieder zu positiven Werten bei $v_A = 2$. Ausschluß der Übergänge zu $v_A = 0$ aus dem Fit führte zu einer verbesserten Anpassung mit $\sigma \approx 2,6$.

Ein Vergleich der Ergebnisse des Dunham-Fits mit den Ergebnissen von [57] ist nicht möglich, da dort keine Güte der Anpassung aller Niveaus angegeben wird, sondern nur die Standardabweichung der Anpassung einzelner Rotationsbanden mit Rotationskonstanten und Bandenursprüngen. Die Zusammenfassung der so gewonnenen Parameter zu einem Satz von Parametern wurde erst in einem weiteren Schritt durch-

geführt, was aber zu unphysikalischen Freiheiten im Fit führt.

Da sich die Abweichungen auf das Potentialminimum konzentrierten, das grundsätzlich wegen seiner geringen Anharmonizität relativ gut durch einen Reihenansatz beschreibbar sein sollte, schien es naheliegend, nach Unvollständigkeiten in der physikalischen Beschreibung zu suchen.

Die Vermutung bestand, daß die Begrenzung der Dimension der Wechselwirkungsmatrix zu derartigen Problemen führen kann. Aufgrund der Kopplung aller Niveaus miteinander erschien es nicht ausgeschlossen, daß die Vibrationsniveaus des b-Zustands unterhalb des Potentialminimums des A-Zustands einen kumulativen Einfluß auch auf energetisch weit entfernte Niveaus im A-Zustand haben könnten. Ein solcher Einfluß könnte in anderen Teilen des Potentials durch weitere, dazwischenliegende A Vibrationsniveaus verdeckt werden. Jeder Einfluß von weiter als drei Vibrationsquanten entfernten Niveaus wurde aber in der vorliegenden Analyse nicht berücksichtigt.

Eine Kopplung über energetisch weit entfernte Niveaus hätte im gewählten Formalismus allerdings zu einer unübersichtlichen Vergrößerung der Wechselwirkungsmatrix geführt, ohne dabei eine vollständige Beschreibung zu erreichen. Erst die Integration aller Vibrationsniveaus in die Matrix hätte zu diesem Ziel geführt, was aber dem konzeptionellen Ansatz der Beschreibung widersprochen hätte. Es wurde daher nach einer Beschreibung des Systems durch einen Formalismus gesucht, in dem die Kopplung aller Zustände a priori enthalten ist.

5.3.3 Entstörung mit der Fourier-Grid-Methode

Ein Möglichkeit zur Beschreibung der kompletten gekoppelten Zustände wurde durch eine Zusammenarbeit mit O. Dulieu aus der Arbeitsgruppe von F. Masnou-Seeuws am Laboratoire Aimé Cotton in Orsay eröffnet. In der Arbeitsgruppe wurde ein Programm entwickelt, das mit Hilfe der Fourier-Grid-Methode Eigenwerte des molekularen Hamiltonoperators in der Basis der elektronischen Zustände berechnet [73,74].

Die zeitunabhängige Schrödingergleichung wird auf einem im Kernabstand äquidistanten Raster mit N Punkten gelöst. Grundsätzlich ist auch eine Anpassung der Schrittweite an die lokale de-Broglie-Wellenlänge möglich, was aber hier nicht verwendet wurde. Auf diesem Gitter läßt sich die potentielle Energie als $N \times N$ Diagonalmatrix schreiben. Die kinetische Energie des Systems kann ebenfalls durch eine $N \times N$ Matrix beschrieben werden, die allerdings im Ortsraum nichtdiagonal ist. Unter Ausnutzung des Zusammenhangs zwischen Orts- und Impulsraum über die Fourier-Transformation kann sie aber aus der Darstellung der kinetischen Energie als Diagonalmatrix im Impulsraum gewonnen werden.

Bei der Analyse von k gekoppelten Zuständen vergrößert sich die Matrix auf $kN \times kN$. Kopplungen zwischen Zuständen, wie die in Gleichung (5.16), können in einfacher Weise als nichtdiagonale Beiträge zur potentiellen Energie berücksichtigt werden. Der Einfluß der Rotation ergibt sich durch Addition eines Zentrifugalpotentials der Form $J(J+1)/2\mu R^2$ zu den Potentialen.

Die Eigenzustände des Systems werden dann durch Diagonalisierung der aufgestellten Matrix berechnet. Bei dieser Art der Beschreibung bleibt die Wechselwirkung zwischen den Zuständen nicht auf lokale Kopplungen beschränkt, sondern berücksichtigt das gekoppelte System aller Niveaus.

Für den hier betrachteten Bereich der Potentialkurven für $5 a_0 < R < 13,5 a_0$ erwiesen sich weniger als 200 Gitterpunkte zur Beschreibung als ausreichend, um die Ergebnisse der Rechnungen unabhängig von den eingestellten Parametern zu machen.

Erste Schritte im Umgang mit dem Programm bestanden darin, die Mischungsverhältnisse von A- und $b(0^+)$ -Zustand für verschiedene Vibrationsniveaus zu berechnen. Hierzu wurden zunächst tabellarisch bereitgestellte RKR-Potentiale aus der lokalen Störungsanalyse für $J' = 0$ benutzt. In Abbildung 5.6 ist der Singulettcharakter der niedrigsten Vibrationsniveaus beider Zustände über deren Termenergie aufgetragen. Zunächst scheint die Annahme der lokalen Ent störungsanalyse bestätigt zu werden, daß nur energetisch dicht benachbarte Niveaus einen signifikanten Einfluß auf die jeweiligen Niveaus haben. Beispielhaft ist die Situation direkt unterhalb des niedrigsten Vibrationsniveaus im A-Zustand. Hier kann die Störung durch weit entfernte Niveaus untersucht werden, indem die Mischungskoeffizienten für abnehmendes v im b-Zustand beobachtet werden. Der Singulettcharakter nimmt tatsächlich schnell ab und erreicht einen Wert in der Größe von nur 10^{-4} für $v_b = 0$.

Für die spektroskopische Beschreibung ist in den meisten Fällen aber die Energie der Niveaus von größerer Bedeutung als die Beimischung aus anderen Zuständen. Deshalb wurden mit dem Fourier-Grid-Programm zusätzlich die Energien der jeweiligen Zustände ohne Kopplung berechnet und daraus die Linienverschiebungen bestimmt. Abbildung 5.7 zeigt die Ergebnisse der Berechnung von Termenergien für den unteren Bereich wie im Falle der Mischungskoeffizienten. Auch hier sind wieder die Vibrationsniveaus des b-Zustands unterhalb des Potentialminimums des $A^1\Sigma_u^+$ -Zustands für das Verständnis von besonderem Interesse. Anders als für den in Abbildung 5.6 dargestellten Singulettanteil nimmt die energetische Verschiebung in Abbildung 5.7 für die tiefer liegenden Vibrationsniveaus nicht schnell ab, sondern bleibt bis zum Minimum des b-Zustands bei Werten von mehr als $0,2 \text{ cm}^{-1}$.

Es handelt sich hierbei um Verschiebungen, die bei der Genauigkeit der vorliegenden Daten keinesfalls vernachlässigbar sind. Der Einfluß der mehr als 1000 Wellenzahlen entfernt

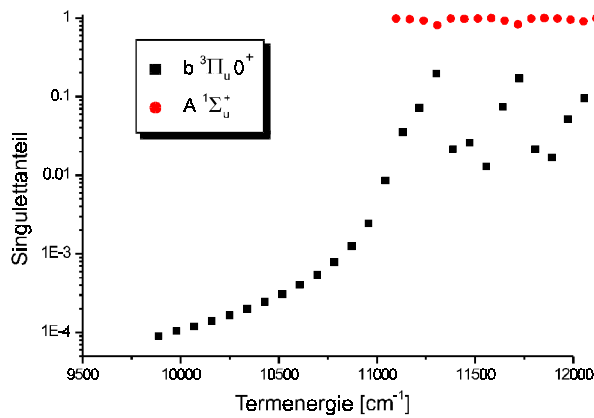


Abbildung 5.6: Singulettcharakter der untersten Vibrationsniveaus von A- und $b(0^+)$ -Zustand über ihrer Termenergie.

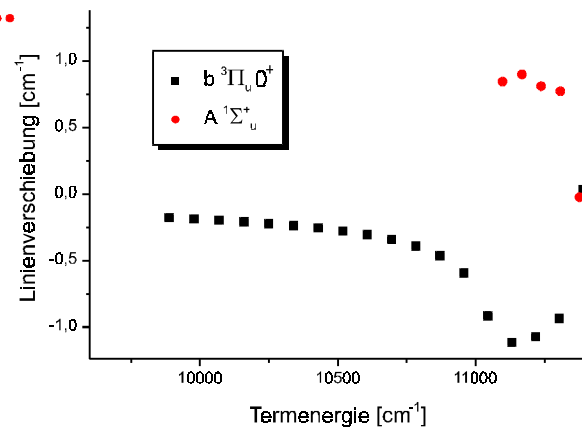


Abbildung 5.7: Verschiebungen von gekoppelten gegenüber ungekoppelten Niveaus für $J' = 0$ in A- und $b(0^+)$ -Zustand.

liegenden Niveaus des A-Zustands ist überraschend groß, sodaß zunächst auch ein Fehler in der Analyse nicht ausgeschlossen wurde. Am Beispiel von $v_b = 0$ wurde exemplarisch eine Vergleichsrechnung mit dem Wechselwirkungsoperator (5.19) aus Kapitel 5.3.2 durchgeführt. Es wurde dabei aus dem b-Zustand das Niveau $v_b = 0$ und die Vibrationsniveaus 0 bis 30 des A-Zustands berücksichtigt. Das niedrigste Vibrationsniveau des Triplett-Zustands ist für diese Berechnung besonders günstig, da aufgrund der stark lokalisierten Wellenfunktion die Überlappintegrale in den Kopplungsmatrixelementen (5.8) nur in einem überschaubaren Intervall von Vibrationsniveaus nichtverschwindend sind. Zum Vergleich sind die Überlappintegrale in Abbildung 5.8 für die Niveaus $v_b = 0$ und $v_b = 27$ in Abhängigkeit von v_A dargestellt.

Sowohl die mit der beschriebenen 31×31 Matrix berechnete Linienverschiebung, als auch der Singulettanteil des Niveaus $v_b = 0$ zeigten sehr gute Übereinstimmung mit den Werten aus der Fourier-Grid-Analyse, sodaß davon ausgegangen werden muß, daß die Berechnungen zu richtigen Ergebnissen führen und diese nicht auf numerischen Ungenauigkeiten beruhen.

Bereits aus diesen anfänglichen Rechenergebnissen wird deutlich, daß die konsistente Beschreibung der gestörten Zustände $A^1\Sigma_u^+$ und $b^3\Pi_u$ durch einen lokalen Ansatz wie im vorherigen Kapitel beschrieben kaum möglich sein dürfte. Speziell die Diskrepanz zwischen berechneten und beobachteten Energien für die Vibrationsniveaus im Potentialminimum des A-Zustands im lokalen Modell ist mit hoher Wahrscheinlichkeit auf die fehlende Ankopplung der tiefer liegenden b-Niveaus zurückzuführen. Es dürfte für diese Niveaus ein ähnlich starker Einfluß zu erwarten sein, wie er für das Minimum des b-Zustands berechnet wurde (Abbildung 5.7).

Für die numerische Anpassung von Potentialen an Meßwerte wurde im Fourier-Grid-Programm die Darstellung der Potentiale von tabellierten Kurven auf analytische Ausdrücke

umgestellt. Die analytische Darstellung des Potentials $V(R)$ als Funktion des Kernabstands R erfolgt in dem Energiebereich, für den Meßwerte vorliegen, durch den Reihenansatz [75]

$$V(R) = \sum_i a_i \cdot \xi^i \quad \text{mit } i \geq 0, \quad \xi = \xi(R) = \frac{R - R_0}{R + bR_0}, \quad (5.22)$$

in dem R_0 der Entwicklungspunkt der Reihe ist und b zur Verbesserung ihrer Konvergenz dient. Das erste Glied der Reihenentwicklung a_0 gibt die Termenergie des Zustands an. Als Bezugspunkt für die Energie wurde das Minimum des $X^1\Sigma_g^+$ -Zustands gewählt. Zu kleinen Kernabständen $R < R_i$ wird der repulsive Potentialast durch stetigen und differenzierbaren Anschluß bei R_i mit einer Exponentialfunktion der Form

$$V(r) = A \cdot e^{-B(R-R_i)} \quad \text{für } R < R_i \quad (5.23)$$

dargestellt. Der stetige und differenzierbare Anschluß von (5.23) an (5.22) wird durch Anpassung der Parameter A und B erreicht. Für große Kernabstände R wird ab R_a ein asymptotischer Potentialverlauf angeschlossen:

$$V(R) = D - \frac{C_3}{R^3} - \frac{C_6}{R^6} + E_{ex}(R) \quad \text{für } R > R_a \quad (5.24)$$

$$E_{ex}(R) = -A_{ex} \cdot R \cdot e^{-B_{ex}R}$$

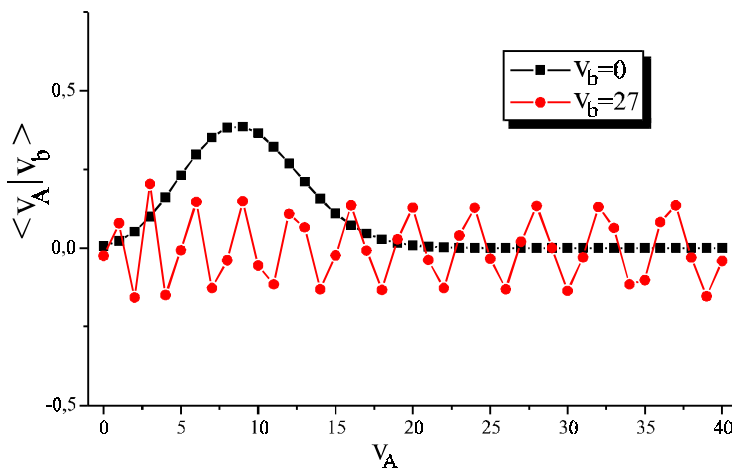


Abbildung 5.8: Überlappintegrale der Vibrationsniveaus 0 und 27 des b -Zustands mit verschiedenen Niveaus des A -Zustands. Für $v_b = 0$ beschränken sich die signifikanten Integrale auf niedrige v_A , wogegen für $v_b = 27$ diese über einen großen Bereich groß bleiben. Die Linien dienen der Übersichtlichkeit.

Die Austauschwechselwirkung E_{ex} dient dem stetig-differenzierbaren Anschluß über die Parameter A_{ex} und B_{ex} und hat hier keine physikalische Bedeutung. Die Koeffizienten C_3 und C_6 sind der Literatur entnommen [76]. D bezeichnet die Dissoziationsenergie bezüglich des Minimums des $X^1\Sigma_g^+$ -Zustands. D wurde aus der Dissoziationsenergie des elektronischen Grundzustands [56] sowie den Übergangsfrequenzen der Kalium D-Linien berechnet [77]. Es ergaben sich die Werte

$D_{1/2} = 17435,860(75) \text{ cm}^{-1}$ und $D_{3/2} = 17493,570(75) \text{ cm}^{-1}$ für beide Feinstrukturasympoten.

Der Wechselwirkungsoperator wurde in das Programm implementiert, woraus sich ein System von vier gekoppelten Zuständen ergibt. Die drei Feinstrukturkomponenten des b -Zustands werden durch gleiche Potentialkurven beschrieben, die um die Spin-Bahn-Aufspaltung A verschoben sind. Die Spin-Spin-Wechselwirkung ε wird nicht berücksichtigt, da der vorliegende Datensatz nur sehr geringe Information über die Zustände mit $\Omega = 1$ und 2 enthält und die Wirkung von ε nicht von A und der Termenergie des $^3\Pi_u$ -Zustands separiert werden kann.

Es wurden mehrere Anpassungen der Potential- und Kopplungsparameter durchgeführt, um die Fehlerquadratsumme zu minimieren (vgl. Kapitel 5.3.2). Bereits mit einem der lokalen Entstörung vergleichbaren Parametersatz von neun bzw. zehn Koeffizienten für die Beschreibung der Potentiale von A - und b -Zustand (5.22) und zwei Kopplungsparametern für die Spin-Bahn-Wechselwirkung wurde eine gegenüber dem „lokalen Ansatz“ deutlich verbesserte Anpassung mit einer Standardabweichung σ von kleiner als 1,8 erreicht. Speziell war keine systematische Verschiebung ganzer Rotationsbanden wie bei der lokalen Entstörung zu beobachten.

Zur weiteren Verbesserung der Anpassung wurde die Anzahl der Potentialparameter erhöht, was aber keinen entscheidenden Fortschritt brachte. Erweiterung der Kopplungsparameter um die Spin-Rotationswechselwirkung ((5.9) und (5.10)) führte dagegen zu einer Verringerung von σ auf 1,4. Das Verhältnis der Kopplungskonstante γ zur Spin-Bahn-Aufspaltung A lag bei ca. 1808, was in sehr guter Übereinstimmung mit dem abgeschätzten Verhältnis in Gleichung (5.13) ist.

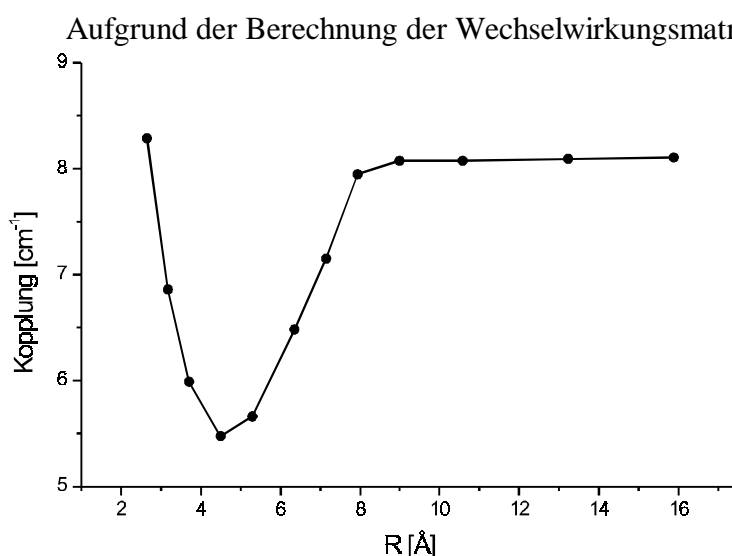


Abbildung 5.9: Für Na_2 berechnete Abhängigkeit des nichtdiagonalen Spin-Bahn-Parameters vom Kernabstand R [78].

zwischen den Zuständen mit $\Omega = 0$

$$\langle A^1\Sigma_u^+ | \mathbf{H}^{SO} | b^3\Pi_u(0^+) \rangle = \zeta + \xi(R - R_{SB})^2 \quad (5.25)$$

erprobt, wobei neben ξ auch die Position des Minimums R_{SB} angepaßt wurde. Dieser Ansatz versucht, die in Abbildung 5.9 dargestellte und auf ab-initio Berechnungen für Na_2 basierenden Abhängigkeit der Wechselwirkung von Kernabstand R im Bereich des Potentialminimums zu approximieren [78]. Mit dieser Beschreibung wurde die Anpassung an die Meßdaten auf $\sigma = 1,16$ verbessert. Die Parameter sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Als Energienullpunkt wurde das tatsächliche Minimum des X-Zustands gewählt, wie es sich aus den in [55] gegebenen Parametern berechnen läßt.

Zusätzliche Berücksichtigung der Spin-Rotationswechselwirkung verringerte die Beschreibung wenig signifikant, was auf eine starke Korrelation beider Abhängigkeiten hindeutet, da beide Ansätze für sich zu einer Verbesserung des Fits führen, zusammen aber kaum einen Fortschritt erzielen.

Die Entstörung mit der Fourier-Grid-Methode führt demnach zu einer deutlich besseren Beschreibung der Meßdaten, die nahezu innerhalb der experimentellen Unsicherheiten liegt. Auch die Voruntersuchungen zu den Linienverschiebungen der niedrigsten Niveaus des b-Zustands (Abbildung 5.7) zeigen, daß die Beschreibung mit der Fourier-Grid-Methode zu einem besseren Verständnis der gekoppelten Zustände führt.

Verbleibende kleine Abweichungen in der Beschreibung der Rotation einzelner Banden

$A^1\Sigma_u^+$ -Zustand		$b^3\Pi_u$ -Zustand	
R_0	4,55078 Å	R_0	3,89453 Å
R_i	3,55 Å	R_i	2,95 Å
R_a	6,55 Å	R_a	6,50 Å
b	0,27	b	-0,28
a_0	11107,14047105 cm ⁻¹	a_0	9912,9473385 cm ⁻¹
a_1	0,1007465432989786E+03 cm ⁻¹	a_1	0,5027182481888079E+03 cm ⁻¹
a_2	0,4801186850450368E+05 cm ⁻¹	a_2	0,1837738599100174E+05 cm ⁻¹
a_3	-0,3013653187863855E+05 cm ⁻¹	a_3	0,7978306012718549E+04 cm ⁻¹
a_4	-0,2539382171659424E+05 cm ⁻¹	a_4	0,7470731040837401E+04 cm ⁻¹
a_5	0,1604617279636257E+06 cm ⁻¹	a_5	0,3779329545631846E+05 cm ⁻¹
a_6	-0,6401403006921175E+06 cm ⁻¹	a_6	-0,2938252641672602E+05 cm ⁻¹
a_7	0,1181097008045726E+06 cm ⁻¹	a_7	-0,1662774643622072E+06 cm ⁻¹
a_8	0,2245416782703050E+07 cm ⁻¹	a_8	-0,9724350811494303E+05 cm ⁻¹
		a_9	0,1007012942226215E+05 cm ⁻¹
A	21,314534 cm ⁻¹	ζ	18,302106 cm ⁻¹
R_{SO}	4,681965 Å	ξ	9,418662 cm ⁻¹

Tabelle 1: Potentialparameter aus der Entstörung mit der Fourier-Grid-Methode. Nicht alle angegebenen Stellen sind von physikalischer Bedeutung. Sie werden angegeben, um numerische Abweichungen zu vermeiden. Weitere Details im Text.

konnten nicht vollständig beseitigt werden. Eine sehr schwache Ankopplung weiterer Zustände wie des repulsiven Asts des $a^3\Sigma_u^-$ -Zustands könnte hierfür verantwortlich sein. Eine Untersuchung derartiger Kopplungen hätte aber den Rahmen dieser Analyse überschritten, stichhaltige Aussagen wären außerdem aufgrund des noch relativ kleinen Datensatzes wahrscheinlich nicht möglich.

5.4 Hyperfeinstruktur im $b^3\Pi_u$ -Zustand

Die bisherigen Abschnitte dieses Kapitels beschäftigten sich ausschließlich mit der Rotations- und Vibrationsstruktur, bzw. der Feinstruktur von A- und b-Zustand. Der Einfluß des Kernspins wurde bereits in Form der Spin-Rotationswechselwirkung und des Intensitätswechsels der Rotationslinien in den Spektren sichtbar. Im $b^3\Pi_u$ -Zustand wird eine Kopplung des Kernspins mit dem Elektronenspin und dem elektronischen Bahndrehimpuls als Hyperfeinstrukturaufspaltung beobachtet, wie auch bereits bei anderen Alkali-Dimeren, so beispielsweise in Na_2 [79]. Der Hauptbeitrag zur Hyperfeinenergie wird durch die magnetische Dipolwechselwirkung gegeben.

5.4.1 Analyse der Hyperfeinmultipletts

Spektren wie in Abbildung 5.3 lassen zwar noch keine Aufspaltung der einzelnen Rotationslinien erkennen, wird aber ein kleinerer Scanbereich gewählt, können Spektren wie in Abbildung 5.10 aufgezeichnet werden. Es handelt sich um je eine Rotationslinie mit geradem bzw. ungeradem J'' der Vibrationsbande $27 - 0$ des elektronischen Übergangs $b^3\Pi_u(0^+) \leftarrow X^1\Sigma_g^+$. Die beobachtete Aufspaltung geht vornehmlich auf die Hyperfeinstruktur des b-Zustands zurück, da der Grundzustand als $^1\Sigma$ -Zustand nur eine sehr kleine Aufspaltung hat (vgl. (5.1)). Die Hyperfeinstruktur des $b^3\Pi_u(0^+)$ -Zustands wurde im Rahmen dieser Arbeit erstmalig beobachtet. Ein Teil der in diesem Kapitel vorgestellten Ergebnisse wurden bereits veröffentlicht [80], allerdings wurden dort noch nicht die Ergebnisse der Entstörung mit Hilfe der Fourier-Grid-Methode benutzt.

Wie schon in Kapitel 5.1 geschildert, treten im K_2 -Molekül für gerade Drehimpulse J'' im elektronischen Grundzustand aus Symmetriegründen nur die totalen Kernspins $I = 0$ und 2 auf, für ungerade J'' dagegen $I = 1$ und 3 . Die Hyperfeinwechselwirkung koppelt beide Drehimpulse zum Gesamtdrehimpuls $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$. Für F treten folglich die Kombinationen von $|J - I|$ bis $J + I$ auf. Demnach ergeben sich zehn mögliche Kombinationen für F bei ungeraden J'' und sechs für gerade J'' .

Diese Zahl der F -Komponenten zum Drehimpuls J sind in den Spektren von Abbildung 5.10 jeweils eindeutig zu identifizieren. Im oberen Spektrum zu geradem J'' sind fünf Linien

aufgelöst. Die zentrale Komponente weist verglichen mit den übrigen ungefähr die doppelte Intensität auf, was den Schluß nahelegt, daß hier zwei Linien überlagert sind. Wie später gezeigt wird, handelt es sich bei den überlagerten Komponenten um Linien mit gleichem F und unterschiedlichem I handelt.

Das gleiche Bild bietet sich für das untere Spektrum in Abbildung 5.10, in dem eine Linie mit ungeradem J'' zu sehen ist. Hier sind sieben F -Komponenten aufgelöst, wobei es sich bei den mittleren drei um überlagerte Paare handelt, sodaß man insgesamt zehn Hyperfeinkomponenten erhält.

Am Beispiel der $27 - 0$ Bande des Übergangs $^3\Pi_u(0^+) \leftarrow X \ ^1\Sigma_g^+$ wurden aus den beobachteten Linien mit Drehimpulsen $J' < 50$ Hyperfeinparameter bestimmt und diese anschließend in ihrer Rotationsabhängigkeit interpretiert.

Wie in Na₂ [79] ist auch im K₂ die Hyperfeinstruktur des b-Zustands durch die magnetische Dipolwechselwirkung dominiert. Die Hyperfeinwechselwirkungsenergie E_{MD} wird durch die Kopplungskonstante C und einen Geometriefaktor bestimmt, der aus der Kopplung von \vec{I} und \vec{J} resultiert [81]:

$$\begin{aligned} E_{MD} &= \langle \phi_0(J) J I F | \mathbf{H}_{MD} | \phi_0(J') J' I' F \rangle \\ &= \frac{1}{2} \delta_{JJ'} \delta_{II'} \cdot C \cdot [F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)] \end{aligned} \quad (5.26)$$

$\phi_0(J)$ bezeichnet die übrigen Quantenzahlen der molekularen Wellenfunktion in der jetzt betrachteten 0^+ -Komponente des b $^3\Pi_u$ -Zustands.

Zur Bestimmung der Koeffizienten C wurde für jede beobachtete Rotationslinie ein Fit der Linienform durchgeführt. Hierzu wurde das Linienformprofil der einzelnen Hyperfeinkomponenten als ein modifiziertes Lorentz-Profil

$$F(x) = \frac{1}{1 + a(x - x_0)^2 + (1 - a)(x - x_0)^4} \quad (5.27)$$

mit normalisierten Frequenzen

$$x = \frac{2\nu}{\delta\nu} \quad \text{und} \quad x_0 = \frac{2\nu_0}{\delta\nu} \quad (5.28)$$

angenommen.

Es sind ν die Frequenz des Lasers, ν_0 die Resonanzfrequenz des Übergangs und $\delta\nu$ deren volle Halbwertsbreite. Für $a = 1$ erhält man ein reines Lorentz-Profil, typische gefittete Werte liegen bei $a = 0,9$. Die Resonanzfrequenzen der einzelnen Hyperfeinübergänge wurden mit Gleichung (5.26) berechnet. Die relativen Intensitäten der Hyperfeinkomponenten lassen sich

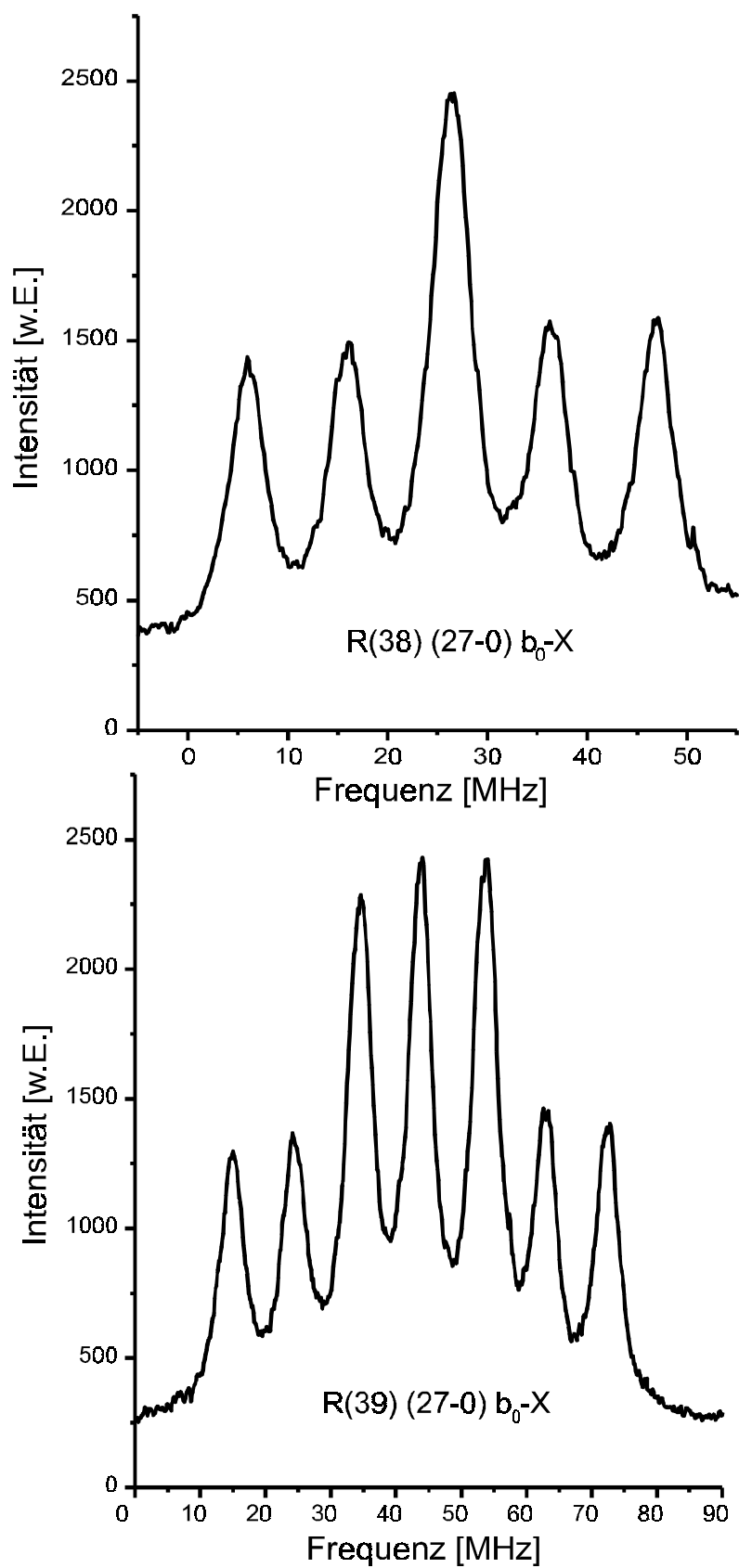


Abbildung 5.10: Hyperfeinstruktur der Linien R(38) und R(39) der 27 – 0 Bande des Übergangs $b^3\Pi_u(0^+) \leftarrow X^1\Sigma_g^+$. Vgl. auch Abbildung 6.3

mit Hilfe tensoralgebraischer Berechnungen analytisch aus dem elektronischen Übergangsmatrixelement μ_{el} berechnen [82]. Als Basis für die Berechnung wurde die Basis a_β gewählt, was bedeutet, daß die elektronischen Drehimpulse im Hundschen Kopplungsfall (a) beschrieben werden, wogegen für die Kernspins die Kopplung im Fall (b) vorgenommen wird. Die relativen Intensitäten I für den Übergang $\phi_0(J) \leftarrow X$ berechnen sich dann zu:

$$\begin{aligned}
 I(J', F', J'', F'') &\propto \left| \langle \phi(J')(J' I) F' \| \mu_{el} \| X(J'' I) F'' \rangle \right|^2 \\
 &\propto (2F' + 1)(2F'' + 1) \begin{Bmatrix} J' & F' & I \\ F'' & J'' & 1 \end{Bmatrix}^2 \left| \langle \phi(J') \| \mu_{el} \| X J'' \rangle \right|^2
 \end{aligned} \tag{5.29}$$

Das verbleibende reduzierte Matrixelement hängt nur noch von den elektronischen Wellenfunktionen und der Rotation des Moleküls ab, sodaß die relativen Intensitäten innerhalb eines Hyperfeinmultipletts vollständig durch (5.29) gegeben sind.

Grundsätzlich sind in den Hyperfeinmultipletts Übergänge mit $\Delta F = 0$ und ± 1 erlaubt. Mit Hilfe von (5.29) läßt sich auch berechnen, daß Übergänge mit $\Delta F \neq \Delta J$ mit wachsendem J schnell an Intensität verlieren. So ist die Übergangswahrscheinlichkeit für eine R-Linie mit $F = J$ und $\Delta F = \Delta J$ bei $J'' = 7$ schon um einen Faktor zehn größer als bei dem Übergang mit $\Delta F = 0$. Für $\Delta F = \Delta J - 1$ ist dies sogar schon bei $J'' = 3$ der Fall.

In der Simulation wurden deshalb die Übergänge mit $\Delta F \neq \Delta J$ vernachlässigt und auf die Analyse der Linien mit sehr kleinen Drehimpulsen verzichtet. Aufgrund dieser Überlegungen ist auch das Auftreten von 6 bzw. 10 Komponenten in den Spektren mit geradem und ungeradem J'' (vgl. Abbildung 5.10) zu verstehen, da die Anzahl der beobachteten Komponenten die Anzahl der möglichen Werte von F wiedergibt, wenn nur Übergänge mit $\Delta F = \Delta J$ auftreten.

Das gemessene Multiplett der R(13)-Linie ist zusammen mit dem unter den beschriebenen Randbedingungen bestmöglichen Fit in Abbildung 5.11 dargestellt. Man erkennt zwischen den Meßpunkten und dem Fit, der nur die magnetische Dipolwechselwirkung berücksichtigt, Abweichungen in der Intensität im Bereich der Minima überlagerter Strukturen. Die Beschreibung dieser Bereiche ist sehr empfindlich auf kleine Verschiebungen der Frequenz der einzelnen Hyperfeinkomponenten. Es läßt sich aus der unbefriedigenden Anpassung der Fitkurve an die Meßpunkte daher schließen, daß die Aufspaltung des Multipletts allein durch die magnetische Dipolwechselwirkung nicht richtig wiedergegeben wird.

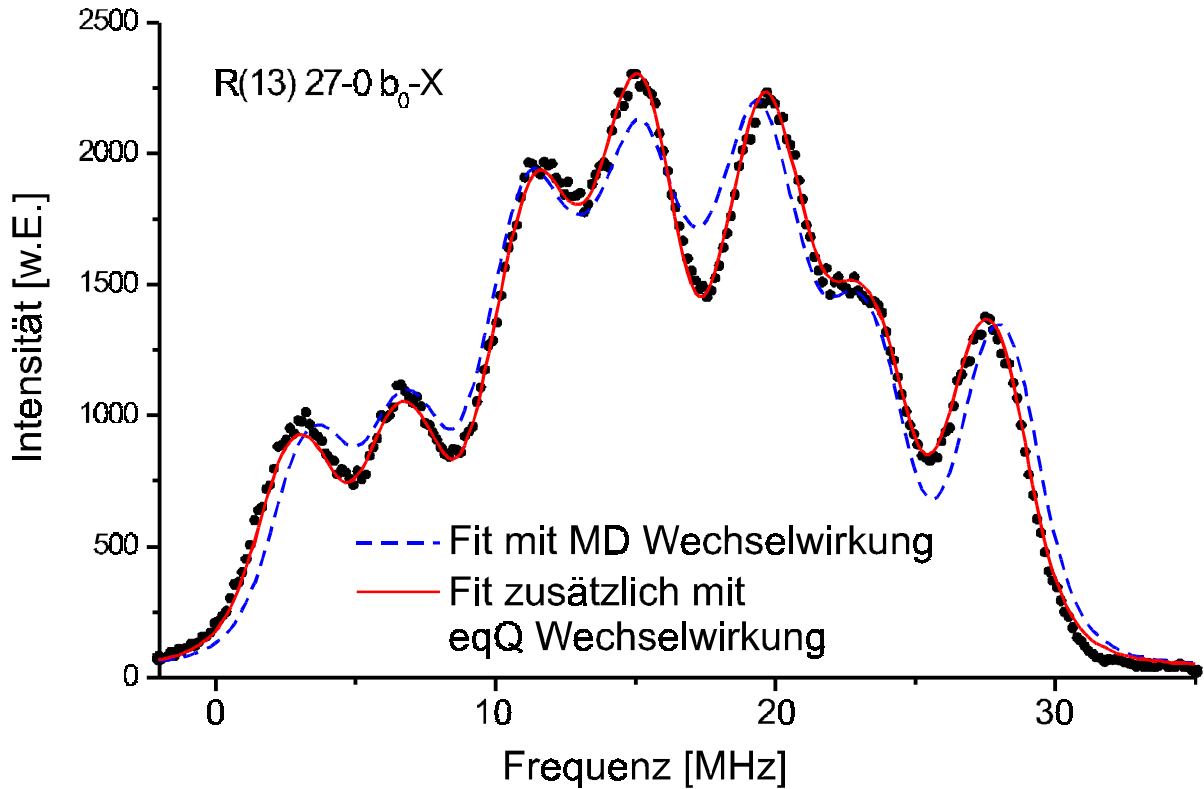


Abbildung 5.11: R(13)-Linie des Übergangs $27 - 0 \text{ } b^3\Pi_u(0^+) \leftarrow X^1\Sigma_g^+$ mit numerischer Anpassungen. Die Meßwerte sind durch Punkte dargestellt. Die gestrichelte Linie zeigt den besten Fit bei Beschreibung der Hyperfeinaufspaltung durch die magnetische Dipolwechselwirkung. Bei der Anpassung der durchgezogenen Kurve wurde zusätzlich die elektrische Quadrupolwechselwirkung berücksichtigt.

Von den weiteren drei Hyperfeinwechselwirkungen ist die elektrische Quadrupolwechselwirkung typischerweise deutlich größer als die tensorielle und skalare Spin-Spin-Wechselwirkung [81], weshalb letztere vernachlässigt wurden. Der Beitrag der elektrischen Quadrupolwechselwirkung E_{eqQ} zur Hyperfeinenergie wird von [81] in Abhängigkeit von den molekularen Quantenzahlen zu

$$\begin{aligned}
 E_{eqQ} &= \langle \phi_0(J) J I F | \mathbf{H}_{eqQ} | \phi_0(J') J' I' F \rangle \\
 &= -1^{1+F+I'+J+J'} f_2 \sqrt{(2I+1)(2I'+1)} \sqrt{(2J+1)(2J'+1)} \\
 &\quad \times \begin{pmatrix} J' & 2 & J \\ -\Omega' & 0 & \Omega \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} I_2 & I_1 & I \\ 2 & I' & I_1 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} F & I' & J' \\ 2 & J & I \end{Bmatrix}
 \end{aligned} \tag{5.30}$$

bestimmt, wobei f_2 durch

$$f_2 = \frac{\sqrt{(2I_1 + 3)(2I_1 + 2)(2I_1 + 1)}}{4\sqrt{2I_1(2I_1 - 1)}} \cdot eqQ \quad (5.31)$$

gegeben ist. Hier bezeichnet eqQ den Kopplungsparameter der elektrischen Quadrupolwechselwirkung.

Gleichung (5.30) führt sowohl zu einer Kopplung von F -Komponenten mit gleichem totalen Kernspin I als auch zu einem nichtdiagonalen Betrag für $\Delta I = 2$. Beide Einflüsse wurden in den Fits der Linienformprofile berücksichtigt. Die Nichtdiagonalbeiträge treten für $^{39}\text{K}_2$ bei geraden J' für $F' = J' - 1$ bis $J' + 1$ auf, bei ungeraden J' nur für $F' = J'$. Sie wurden durch Diagonalisieren einer 2×2 Matrix mit den auftretenden Hyperfeinwechselwirkungen berücksichtigt. Ebenfalls auftretende Kopplungen mit $\Delta J = 2$ wurden aufgrund des großen energetischen Abstands der Rotationslinien im Vergleich zur Hyperfeinaufspaltung vernachlässigt.

Da in die Berechnung der relativen Intensitäten nach Gleichung (5.29) die Größe des Kernspins I eingeht, aber im eben geschilderten Fall zwei Werte von I zu einer Komponente beitragen, wurden die Beiträge der relativen Intensitäten von verschiedenen I zu einem F mit den quadrierten und normierten Amplituden der Wellenfunktionen gewichtet und beide Beiträge zur relativen Intensität summiert.

Bemerkenswert ist, daß sich bei ungeraden J' die elektrische Quadrupolwechselwirkung auf den nichtdiagonalen Beitrag beschränkt. Trotzdem führt sie zu einer deutlichen Verbesserung des Profilsfits.

Ein Fit, der neben der magnetischen Dipolwechselwirkung auch die elektrische Quadrupolwechselwirkung berücksichtigt, ist ebenfalls in Abbildung 5.11 gezeigt. Man erkennt eine sehr gute Übereinstimmung der angepaßten Kurve mit den Meßpunkten. Der Einfluß der zusätzlich eingeführten Wechselwirkung ermöglicht eine leichte Korrektur der einzelnen Hyperfeinenergien und dadurch eine bessere Anpassung der überlagerten Strukturen.

5.4.2 Rotationsabhängigkeit der Hyperfeinparameter

Der Kopplungsparameter C in Gleichung (5.26) ist gegeben durch den Ausdruck

$$C = \langle \phi_0(J) | \mathbf{H}_{\text{MD}} | \phi_0(J) \rangle \quad (5.32)$$

und enthält die Wechselwirkung des magnetischen Kerndipols mit den magnetischen Momenten der Hülle. Detaillierte Berechnung des Ausdrucks (5.32) zeigt, daß C für einen reinen 0^+ -Zustand identisch Null ist [79]. Tatsächlich ist nach den Ausführungen im Unterkapitel 5.3 aber bereits bekannt, daß es sich bei A- und b-Zustand um ein gekoppeltes System handelt

und Mischungen der BO-Zustände auftreten. Schreibt man daher den molekularen Zustand $\phi_0(J)$ als Superposition der BO-Zustände

$$|\phi_0(J)\rangle = S_{0\Sigma} |^1\Sigma_u^+\rangle + S_{00} |^3\Pi_{0u}\rangle + S_{01} |^3\Pi_{1u}\rangle + S_{02} |^3\Pi_{2u}\rangle, \quad (5.33)$$

kann man mit dieser Wellenfunktion den Kopplungsparameter C in Abhängigkeit der Mischungskoeffizienten S_{0i} berechnen:

$$\begin{aligned} C = \langle \phi_0(J) | \mathbf{H}_{\text{MD}} | \phi_0(J) \rangle &= |S_{01}|^2 \langle ^3\Pi_{1u} | \mathbf{H}_{\text{MD}} | ^3\Pi_{1u} \rangle \\ &+ |S_{02}|^2 \langle ^3\Pi_{2u} | \mathbf{H}_{\text{MD}} | ^3\Pi_{2u} \rangle + 2S_{00}^* S_{01} \langle ^3\Pi_{0u} | \mathbf{H}_{\text{MD}} | ^3\Pi_{1u} \rangle \\ &+ 2S_{01}^* S_{02} \langle ^3\Pi_{1u} | \mathbf{H}_{\text{MD}} | ^3\Pi_{2u} \rangle + 2S_{01}^* S_{0\Sigma} \langle ^3\Pi_{1u} | \mathbf{H}_{\text{MD}} | ^1\Sigma_u^+ \rangle \end{aligned} \quad (5.34)$$

Die Interpretation der einzelnen Matrixelemente, die zu C in Gleichung (5.34) beitragen, wird weiter unten geschehen.

Wie aus Gleichung (5.34) zu ersehen ist, kann für die Kopplungskonstante C der magnetischen Dipolwechselwirkung eine Abhängigkeit von der Rotation aufgrund der variierenden Mischungskoeffizienten S erwartet werden. Die aus den Linienfits für $v' = 27$ des $b(0^+)$ bestimmten Werte für C sind in Abbildung 5.12 über der Rotationsquantenzahl J' dargestellt. Die angegebenen Fehler ergeben sich aus der Unsicherheit der nichtlinearen Fits und der Unsicherheit in der Frequenzachse, die bei den Messungen durch ein 150 MHz Eichmarken-Fabry-Pérot-Interferometer gegeben wurde.

Betrachtet man die für diese Bande in (5.34) auftretenden Mischungskoeffizienten, die man aus der Entstörungsanalyse erhält, stellt man fest, daß diese im größten Teil des betrachteten Drehimpulsintervalls durch S_{00} dominiert werden. Nur im Bereich um $J' = 47$ wird aufgrund der dort auftretenden Kreuzung der Rotationsbanden von A- und $b(0^+)$ -Zustand und der damit verbundenen starken Mischung beider Zustände $S_{0\Sigma}$ mit $S_{0\Sigma} \approx S_{00} \approx 1/2$ von bedeutender Größe. Die Kreuzung beider Rotationsbanden und die vorliegenden Meßwerte des Vibrationsniveaus $v' = 27$ sind in Abbildung 5.13 veranschaulicht.

Aufgrund der kleinen übrigen Mischungskoeffizienten als Gewichtungsfaktoren vor den Matrixelementen in (5.34) wird nur der Term mit $S_{00}^* S_{01}$ berücksichtigt. Der Term, der den $^1\Sigma_u^+$ -Zustand enthält, wird vernachlässigt, obwohl $S_{0\Sigma}$ im Bereich der Kreuzung relativ groß wird, da das Matrixelement $\langle ^3\Pi_{1u} | \mathbf{H}_{\text{MD}} | ^1\Sigma_u^+ \rangle$ normalerweise klein ist [68].

Man erhält dann für Gleichung (5.34) die vereinfachte Form:

$$\begin{aligned}
C &\approx 2S_{00}^*S_{01} \left\langle {}^3\Pi_{0u} \left| \mathbf{H}_{\text{MD}} \right| {}^3\Pi_{1u} \right\rangle \\
&\approx 2S_{00}^*S_{01} \frac{\sqrt{2}}{24} \cdot \frac{D_{11} / \sqrt{5} - \sqrt{6}K_{11}}{\sqrt{J'(J'+1)}}
\end{aligned} \tag{5.35}$$

Die Konstanten $D_{\Lambda\Lambda'}$ und $K_{\Lambda\Lambda'}$ bezeichnen die reduzierten Matrixelemente für die Kernspin-Elektronenspin- und Fermi-Kontaktwechselwirkung. Durch Kenntnis der Mischungskoeffizienten aus der Entstörungsanalyse lassen sich an die experimentellen Werte die Differenz der reduzierten Matrixelemente D_{11} und K_{11} anpassen. Man erhält

$$D_{11} / \sqrt{5} - \sqrt{6}K_{11} = 722 \pm 9 \text{ MHz} . \tag{5.36}$$

Die durchgezogene Linie in Abbildung 5.12 wurde mit diesem Wert berechnet. Die gute Anpassung der experimentellen Werte bestätigt die gemachten Annahmen und die Mischungskoeffizienten aus der Entstörungsanalyse.

Prinzipiell müßte der Parameter f_2 in gleicher Weise wie C in Gleichung (5.34) in seiner Abhängigkeit von der Superposition der BO-Zustände diskutiert werden. Da aber der Einfluß der elektrischen Quadrupolwechselwirkung, wie man an Abbildung 5.11 erkennt, nur verhältnismäßig klein sein kann, und der Term nullter Ordnung durch den großen Mischungskoeffi-

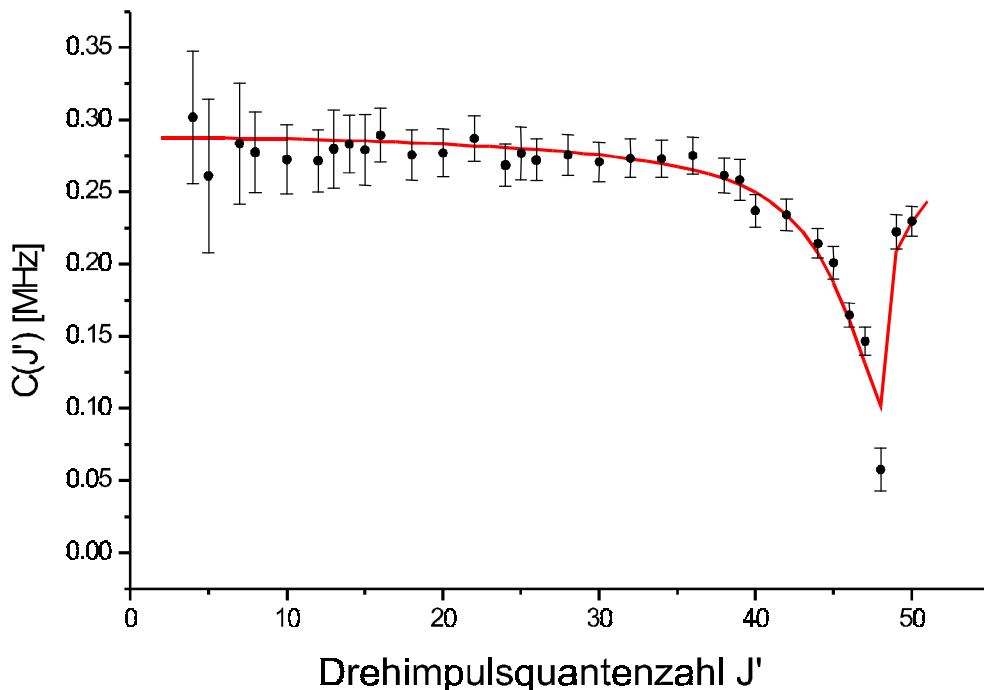


Abbildung 5.12: Werte der Kopplungskonstante C der magnetischen Dipolwechselwirkung über der Rotationsquantenzahl J' für $v' = 27$ des $b(0^+)$ -Zustands. Die durchgezogene Linie entstand durch Anpassung eines Matrixelements und Berücksichtigung der Mischungskoeffizienten S . Bei $J' = 49$ kreuzt der A-Zustand, weswegen die Hyperfeinaufspaltung deutlich zurückgeht.

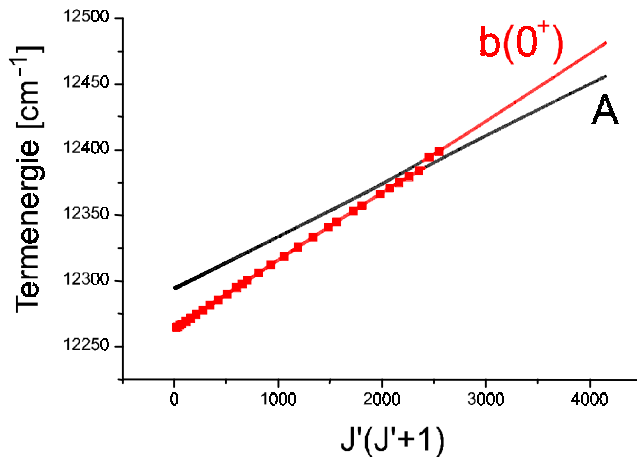


Abbildung 5.13: Termenergien der Vibrationsbanden $v_A = 17$ und $v_{b0} = 27$. Meßwerte sind durch Quadrate symbolisiert.

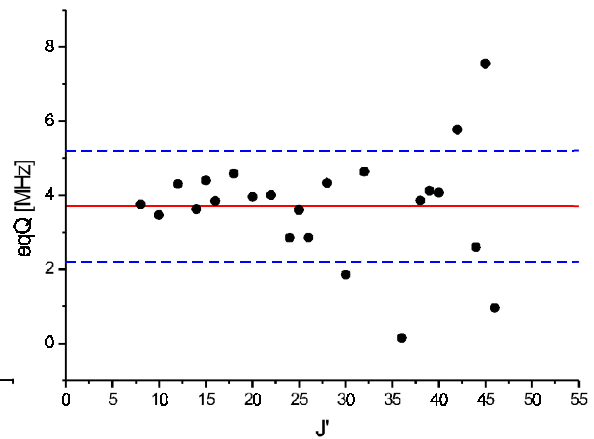


Abbildung 5.14: Gefittete Werte des eqQ -Parameters für $v_{b0} = 27$. Der angepaßte Wert ist durch die durchgezogene Linie gegeben. Die anderen Linien geben dessen Unsicherheit an.

zient $|S_{00}|^2$ dominiert, können die Beiträge von anderen als dem $\Omega = 0$ -Zustand des $^3\Pi_u$ vernachlässigt werden.

Aufgrund des kleinen Effekts der elektrischen Quadrupolwechselwirkung und der damit verbundenen Unsicherheit wurde für den eqQ -Parameter nur der Mittelwert bestimmt und keine Analyse der Rotationsabhängigkeit durchgeführt. Es ergibt sich

$$eqQ = 3,7 \pm 1,5 \text{ MHz} \quad \text{für } ^{39}\text{K}_2. \quad (5.37)$$

Meßwerte, Mittelwert und Unsicherheiten sind in Abbildung 5.14 dargestellt.

Unter Verwendung der Mischungskoeffizienten aus der bereits vorgestellten Entstörungsanalyse kann die Hyperfeinstruktur des $b^3\Pi_u(0^+)$ -Zustands durch wenige Parameter in guter Weise beschrieben werden. Es ist dabei unbedingt notwendig, neben der magnetischen Dipolwechselwirkung auch die elektrische Quadrupolkopplung zu berücksichtigen, auch wenn die Größe des eqQ -Parameters selbst verhältnismäßig klein ist.

6 Materiewelleninterferometrie

Nach den theoretischen Vorbetrachtungen in Kapitel 2 und der spektroskopischen Analyse der gekoppelten Zustände A und b im K_2 -Molekül in Kapitel 5 werden jetzt die Experimente zu Materiewelleninterferometrie vorgestellt.

Im ersten Abschnitt werden die für die Interferometrie geeigneten Niveaus basierend auf der Entstörungsanalyse im vorherigen Kapitel ausgewählt. Das zweite Unterkapitel befaßt sich dann mit der Realisation des optischen Aufbaus des Interferometers. Kapitel 6.3 stellt erste interferometrische Experimente vor, die zur Charakterisierung des Aufbaus dienen. Messungen werden mit Simulationen verglichen, bzw. systematische Variationen der experimentellen Parameter durchgeführt. Der letzte Abschnitt befaßt sich mit verschiedenen Modulationstechniken zur Vereinfachung und Manipulation der beobachteten Spektren.

6.1 K_2 als Wellenpaket zur Interferometrie

Wie aus den theoretischen Überlegungen in Kapitel 2 hervorgeht, wird für ein Materiewelleninterferometer vom Ramsey-Bordé-Typ ein Übergang mit hinreichend langer Lebensdauer des angeregten Niveaus benötigt. Hinreichend bedeutet in diesem Zusammenhang, daß die vom ersten Laserstrahlteiler erzeugte kohärente Überlagerung nicht durch spontane Emission eines Photons aus dem angeregten Zustand während der Flugzeit durch die erste Dunkelzone D zerstört wird.

Bei realisierbaren Zonenlängen in der Größenordnung von einem Millimeter oder mehr und typischen Translationsgeschwindigkeiten eines Molekülstrahls von 1000 m/s ergeben sich so benötigte Lebensdauern um 1 μ s.

Ein aussichtsreicher Zustand im K_2 -Molekül, um Niveaus dieser Lebensdauer zu finden, ist der $b^3\Pi_u$ -Zustand. Dieser ist als reiner BO-Zustand metastabil, da der Zerfall über einen elektrischen Dipolprozeß in die energetisch tiefer liegenden Zustände $X^1\Sigma_g^+$ und $a^3\Sigma_u^+$ aus Gründen der Multiplizität bzw. der Symmetrie nicht erlaubt ist.

Aus dem vorherigen Kapitel geht bereits hervor, daß eine Anregung aus dem X-Zustand zumindest in die 0^+ -Komponenten des b-Zustands möglich ist, da eine signifikante Singulettbeimischung aus dem A-Zustand vorhanden ist. Diese verkürzt allerdings auch die effektive Lebensdauer τ_b des b-Zustands. Eine einfache Abschätzung der Größe von τ_b läßt sich durch die folgende Überlegung erhalten: Schreibt man die tatsächliche Wellenfunktion ϕ_0 eines Niveaus des $b(0^+)$ wie in (5.33) als Überlagerung von BO-Zuständen mit den aus der Entstö-

rungsanalyse bekannten Mischungskoeffizienten S als Amplituden und vernachlässigt die kleine Beimischung anderer Zustände, kann man das Dipolmatrixelement mit dem Grundzustand $X \ ^1\Sigma_g^+$ berechnen:

$$\begin{aligned} \langle X \ ^1\Sigma_g^+ | \vec{d} | \phi_0(J) \rangle &= \langle X \ ^1\Sigma_g^+ | \vec{d} \cdot [S_{0\Sigma} | ^1\Sigma_u^+ \rangle + S_{00} | ^3\Pi_{0u} \rangle + S_{01} | ^3\Pi_{1u} \rangle + S_{02} | ^3\Pi_{2u} \rangle] \rangle \\ &= S_{0\Sigma} \langle X \ ^1\Sigma_g^+ | \vec{d} | ^1\Sigma_u^+ \rangle \end{aligned} \quad (6.1)$$

Im vorliegenden Fall ist wegen der relativ großen Singulettbeimischungen in erster Näherung die Lebensdauer eines Zustands proportional zum Quadrat des Dipolmatrixelements. Daher kann die Lebensdauer τ_{b0} des Zustands ϕ_0 durch die Lebensdauer τ_A des A-Zustands und die Beimischung des Singulettzustands ausgedrückt werden

$$\begin{aligned} \tau_{b0} &\propto |S_{0\Sigma} \langle ^1\Sigma_g^+ | \vec{d} | ^1\Sigma_u^+ \rangle|^{-2} \quad \text{oder} \\ \tau_{b0} &\approx |S_{0\Sigma}|^{-2} \tau_A, \end{aligned} \quad (6.2)$$

solange τ_{b0} noch so kurz ist, daß andere Multipolmomente nicht signifikant zum Zerfall des angeregten Zustands beitragen.

Nimmt man für den A-Zustand eine Lebensdauer von 20 ns an, was nach Vergleich der bekannten Lebensdauern für das K_2 -Molekül und das K-Atom mit anderen Alkalimetallen sinnvoll erscheint, und berücksichtigt typische Singulettanteile der 0^+ -Komponente von $|S_{0\Sigma}|^2 \approx 1\%$, erwartet man eine Lebensdauer von ungefähr 2 μ s. Die Lebensdauern werden sowohl von Bande zu Bande variieren, als auch innerhalb einer Vibrationsbande mit der Rotation veränderlich sein. In Abbildung 6.1 sind die Verläufe berechneter Lebensdauern verschiedener Vibrations-Rotationsniveaus des $b(0^+)$ -Zustands in Abhängigkeit von J dargestellt.

Es ergeben sich demzufolge eine ganze Reihe von für die Materiewelleninterferometrie geeigneten Niveaus in diversen Vibrationsbanden. Da die Spektren relativ dicht sind (Abbildung 5.3), stehen innerhalb eines Abstimmereichs der unstabilisierten Gitterlaser von ungefähr 30 GHz viele geeignete Übergänge bereit, sodaß innerhalb kurzer Zeit der Interferometerübergang gewechselt werden kann, um beispielsweise einen Zustand anderer Lebensdauer zu wählen.

Aufgrund der kleineren Kopplung der Komponenten $\Omega = 1,2$ an den A-Zustand sind für diese noch größere Lebensdauern zu erwarten. Wie aber schon im vorherigen Kapitel erwähnt, ist die Empfindlichkeit der Apparatur bzw. die zur Verfügung stehende Laserleistung nicht ausreichend zur Untersuchung dieser Übergänge. In Bereichen von Kreuzungen der Vibrationsbanden aus A- und $b(1,2)$ -Zustand kann dies aufgrund der lokal größeren Mischung beider Zustände anders sein. Dieser Fall soll aber hier nicht weiter betrachtet werden.

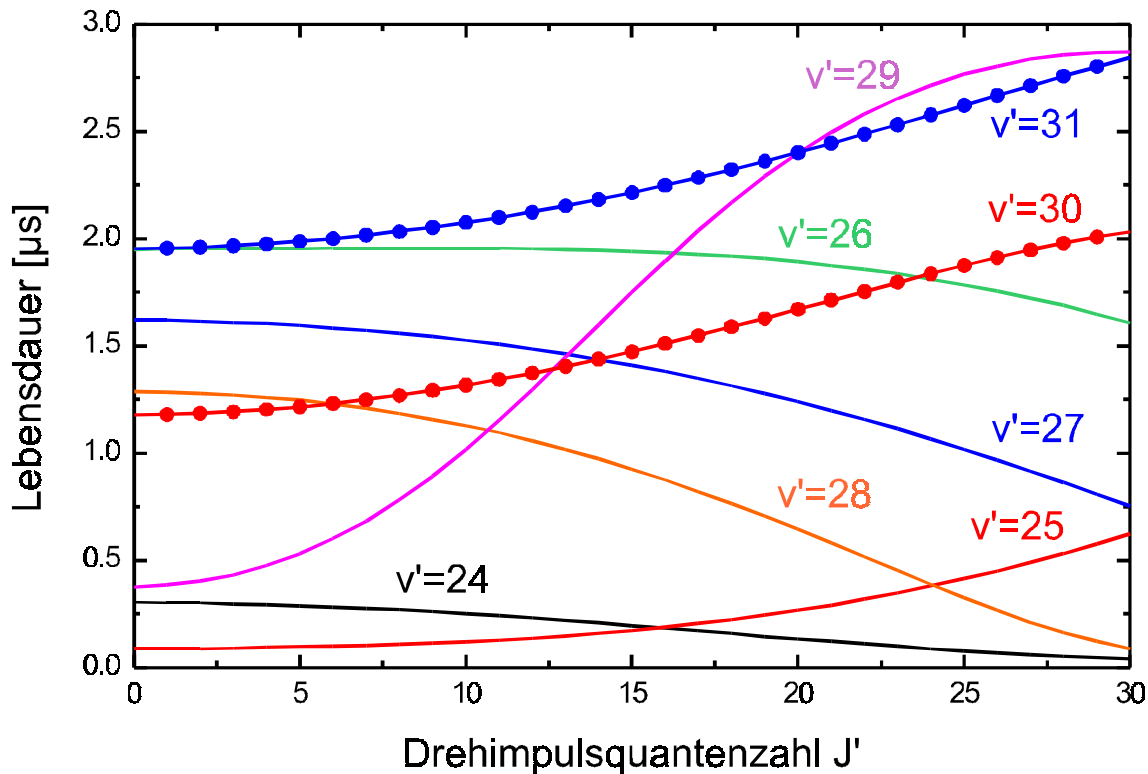


Abbildung 6.1: Berechnete Lebensdauern der 0^+ -Komponente des $b^3\Pi_u$ -Zustands für verschiedene Vibrationsbanden und Drehimpulse

Für die im folgenden beschriebenen Experimente wurde die $27 - 0$ Bande des Übergangs vom X- in den $b(0^+)$ -Zustand gewählt, da hier zum einen die Lebensdauern hinreichend groß sind und zum anderen leistungsstarke Laserdioden für die Übergangsfrequenz zur Verfügung stehen. Außerdem ist der Franck-Condon-Faktor des Übergangs mit etwa 2% noch verhältnismäßig groß.

6.2 Der Interferometeraufbau

In diesem Unterkapitel wird der optomechanische Aufbau zur Erzeugung der für die Materiewelleninterferometrie notwendigen Laserstrahlen vorgestellt. Es wurde bei dem gesamten Aufbau auf eine hohe mechanische Stabilität geachtet, um Experimente über größere Zeiträume ohne aufwendige Justage reproduzierbar zu machen. Außerdem sollten Einflüsse durch mechanische Unzulänglichkeiten so weit wie möglich reduziert werden. Die Führung der Laserstrahlen hat eine besondere Bedeutung, da die Phase des Laserfelds als globale Phase auf das Interferenzsignal übertragen wird, wie aus den Gleichungen (2.25) und (2.26) hervorgeht. Kommt es zu Fluktuationen der Laserphase aufgrund von z.B. akustischer Einkopplung in Spiegelhalterungen, fluktuiert auch das Interferenzsignal entsprechend in seiner Phase und wird ausgewaschen.

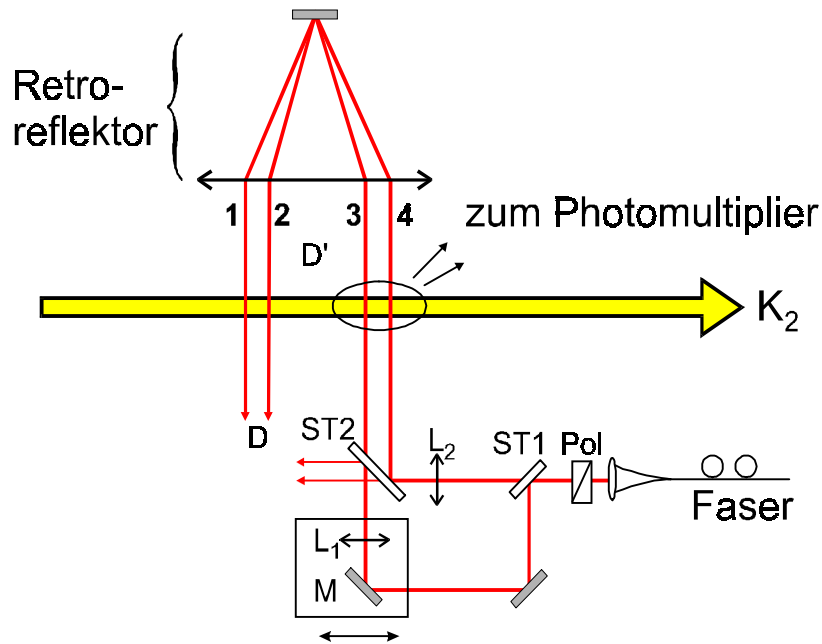


Abbildung 6.2: Aufbau zur Erzeugung der vier paarweise gegenläufigen Laserstrahlen für ein Ramsey-Bordé-Interferometer

Aus Gründen der Phasen- und Frequenzstabilität ist es sinnvoll, alle vier für das Interferometer benötigten Laserstrahlen aus einem einzigen Strahl zu gewinnen. Es wurde der in Abbildung 6.2 gezeigte Strahlengang und Aufbau gewählt.

Das Licht des in Kapitel 4.3 beschriebenen Laserspektrometers wird mit einer single-mode Glasfaser an den Vakuumtopf geführt. Zur Kollimation hinter der Faser dient ein kommerzieller Auskoppler (Linos MB 04), der im nahen Infrarot einen kollimierten Strahldurchmesser von 3,6 mm erzeugt. Ein Glan-Laserpolarisator definiert die Polarisationsrichtung im weiteren Aufbau.

Die kollinear verlaufenden Laserstrahlen 1 und 2, bzw. 3 und 4 in Abbildung 6.2 müssen bei den Lebensdauern des verwendeten $b(0^+)$ -Zustands um eine Mikrosekunde (Abbildung 6.1) und den gemessenen Molekülstrahlgeschwindigkeiten zwischen 900 und 1000 m/s (Abbildung 4.2) Abstände D um 1 mm aufweisen, um übermäßige Verluste durch spontane Emission zu vermeiden. Das bedeutet, daß die Durchmesser der Laserstrahlen in der Wechselwirkungszone deutlich kleiner sein müssen, um die Ausbildung einer Dunkelzone zu ermöglichen. Die Laserstrahlen müssen demzufolge fokussiert werden, Durchmesser von 100 bis 200 μm sind wünschenswert, was bei dem vorliegenden Strahldurchmesser Brennweiten f um 500 mm für die eingesetzten Linsen bedeutet. Aufgrund der durch die Fokussierung erzeugte Divergenz der Laserstrahlen überlagern sich die Laserstrahlen 1 – 2 und 3 – 4 bei Dunkelzonenlängen D von 1,5 mm oder weniger zwangsläufig außerhalb der Vakuumapparatur.

Mit dem 50%-Strahlteiler $ST1$ wird der Laserstrahl aus der Faser zunächst in zwei Teile gleicher Intensität aufgespalten. Beide Teile werden dann mit den Linsen L_1 und L_2 auf den Molekülstrahl fokussiert und auf einem zweiten 50%-Strahlteiler $ST2$ überlagert. An dieser Stelle verliert man zwar die Hälfte der Laserleistung, was aber bei gleichen Polarisationsrichtungen beider rekombinierter Laserstrahlen unausweichlich ist.

Der Abstand D zwischen beiden Laserstrahlen wird über einen schrittmotorgesteuerten Verschiebetisch eingestellt, auf dem der Spiegel M und die Linse L_1 montiert sind. Der Parallelversatz der Laserstrahlen verhindert auch ab Zonenabständen $D > 250 \mu\text{m}$ eine störende Interferenz der Laserstrahlen. Zur parallelen Ausrichtung beider Laserstrahlen kann diese aber bei vollständiger Überlagerung gut genutzt werden, indem das Interferenzmuster mit einer Laserstrahlanalysekamera beobachtet wird.

Die Länge der Dunkelzone D' wurde zu 1 cm eingestellt. Diese Länge garantiert den Zerfall aller elektronisch angeregten Moleküle durch spontane Emission, weshalb in diesem Experiment von den beiden möglichen Rückstoßkomponenten (2.25) und (2.26) nur die blaue auftreten wird.

Als Linsen L_1 und L_2 wurden anfangs sphärische Linsen mit einer Brennweite $f = 500 \text{ mm}$ verwendet. Die Ausrichtung aller vier Foki in einer Linie auf dem Molekülstrahl erwies sich allerdings als kompliziert. Außerdem wechselwirkte nur ein geringer Teil der Moleküle des Strahls von 2 mm Durchmesser in der Richtung senkrecht zu den Laserstrahlen und dem Molekülstrahl mit den Feldern, da auch in dieser Richtung nur ein Durchmesser der Laserstrahlen von ca. $150 \mu\text{m}$ vorhanden war. Günstiger erwies sich die Verwendung von Zylinderlinsen an dieser Stelle, die den Laserstrahl in dieser Richtung kollimiert lassen. Da keine Zylinderlinsen mit einer Brennweite von 500 mm zur Verfügung standen, wurde jeweils eine Kombination einer plan-konvexen ($f = 150 \text{ mm}$) und plan-konkaven ($f = -200 \text{ mm}$) Zylinderlinse gewählt, die zusammen eine Brennweite von annähernd einem halben Meter haben. Es ergibt sich ein Strahldurchmesser in horizontaler Richtung von ca. $120 \mu\text{m}$. Der Wert wurde mit Hilfe einer Laserstrahlanalysekamera bestimmt.

In dieser Konfiguration wird der Molekülstrahl mit einer in der Amplitude nahezu homogenen Feldverteilung senkrechter zur Ebene Laserstrahl-Molekülstrahl ausgeleuchtet. Das elektrische Feld an den Rändern des Molekülstrahls ist auf nur ungefähr 78% seines maximalen Wertes abgefallen. Der Austausch der Linsen führte außerdem zu einer deutlich einfacheren Justage des Aufbaus und größeren Signalen, da mehr Teilchen erfaßt werden.

Die Laserstrahlen 1 und 2 werden aus 3 und 4 durch Rückreflexion mit einem Retroreflektor erzeugt. Der Retroreflektor besteht aus einer achromatischen Linse ($f = 300 \text{ mm}$, $\varnothing = 82 \text{ mm}$) und einem kardanisch gelagerten Spiegel im Abstand der Brennweite. Der Ab-

stand kann durch einen Verschiebetisch fein eingestellt werden. Der Retroreflektor ist so justiert, daß der Fokus der Laserstrahlen wieder auf den Molekülstrahl abgebildet wird. Der Versatz und damit die Länge der Zone D' kann durch Verschieben des Retroreflektors in Richtung des Molekülstrahls eingestellt werden. Zu diesem Zweck ist dieser auf einem Verschiebetisch mit Bewegungsrichtung parallel zum Molekülstrahl aufgebaut.

Aufgrund der Anordnung der Laserstrahlen wie in Abbildung 6.2 wird der Einfluß von Phasenschwankungen des Laserfelds durch Bewegungen optischer Komponenten unterdrückt, die langsam im Vergleich zur Durchflußzeit eines Moleküls durch den Aufbau sind. Dies liegt daran, daß jede optische Komponente Einfluß auf zwei Laserstrahlen hat, deren Phasen nach Gleichung (2.25) und (2.26) mit unterschiedlichem Vorzeichen auf das Interferenzsignal einwirken und sich demzufolge weitestgehend aufhebt. Für schnelle Variationen greift diese Argumentation natürlich nicht mehr. Bei einer Gesamtlänge des Interferometers von ca. 1 cm entspricht dies aber Frequenzen von um 100 kHz, die bei akustischen Einflüssen keine große Rolle spielen und gut in mechanischen Aufbauten unterdrückt werden können.

6.3 Charakterisierung des Interferometers

In diesem Unterkapitel werden die beobachteten Spektren zunächst in ihrer grundsätzlichen Struktur diskutiert und mit Simulationen verglichen. Danach werden systematische Untersuchungen zur Abhängigkeit der Interferogramme von experimentellen Parametern vorgestellt. Teile der Ergebnisse wurden bereits veröffentlicht [83].

Wie in Unterkapitel 6.1 diskutiert wurde, stehen mit den Übergängen vom X-Zustand in einige Vibrationsbanden des $b^3\Pi_u(0^+)$ -Zustands zur Interferometrie geeignete Zustände zur Verfügung. In Kapitel 5.4 wurde bereits die Hyperfeinstruktur des $b^3\Pi_u(0^+)$ betrachtet, die je nach Drehimpuls, zu sechs oder zehn Komponenten einer Rotationslinie führt, die aufgrund der langen Lebensdauer des Rotationsübergangs alle zur Interferometrie geeignet sind. Man kann also mit einer Reihe von Interferenzen innerhalb eines Hyperfeinmultipletts rechnen. Um vorab einen besseren Eindruck von der zu erwartenden Position der Interferenzen innerhalb der Rotationslinie zu bekommen, ist in Abbildung 6.3 eine typische Hyperfeinstruktur am Beispiel der R(25)-Linie der 27 – 0 Bande des $b(0^+) \leftarrow X$ Systems zu sehen, die mit einer sättigungsspektroskopischen Anordnung aufgenommen wurde. Die experimentelle Anordnung der Laserstrahlen ist in der Abbildung skizziert. Es wurde mit kollimierten Laserstrahlen von 3,6 mm Durchmesser gearbeitet. Zusätzlich ist eine Spur mit den durch Amplitudenmodulation des ersten Laserstrahls und Lock-In-Nachweis der Fluoreszenz gewonnenen Sättigungsdips gezeigt. Diese zeigen Linienbreiten von unter 800 kHz, was eine Bestätigung der

Annahme von langen Lebensdauern des oberen Niveaus ist, zumal unter den gegebenen experimentellen Bedingungen zu dieser Linienbreite ca. 225 kHz Flugzeitverbreiterung beiträgt.

Die Sättigungsdips in den jeweils zwei äußeren Hyperfeinkomponenten sind gut zu erkennen. In den zentralen drei Linien sind die dort paarweise überlagerten sechs Komponenten nicht aufgelöst. Diese werden im Interferenzsignal ebenfalls zu überlagerten Signalen führen.

Nach den Ausführungen im Kapitel 2.3 ist ein Interferenzsignal im Bereich der homogenen Linienbreite zu erwarten, was in Abbildung 6.3 der Breite der Sättigungsdips entspricht. Beim Vergleich mit Spektren, die mit dem in Abbildung 6.2 gezeigten Aufbau erzeugt wurden, ist allerdings zu beachten, daß aufgrund der Fokussierung der Laserstrahlen auf den Molekülstrahl eine deutlich größere Flugzeitverbreiterung erzeugt wird. Hierdurch vergrößert sich ebenfalls der Frequenzbereich, in dem Interferenzen auftreten können (vgl. Abbildung 2.4).

In Abbildung 6.4 oben ist das Spektrum der R(25)-Linie des Übergangs $27 - 0$ $^3\Pi_u(0^+) \leftarrow ^1\Sigma_g^+$ bei Verwendung des Interferometeraufbaus in Abbildung 6.2 mit einer Dunkelzonenlänge von $D = 0,5$ mm zu sehen. Vergleich dieser Abbildung mit Abbildung 6.3 zeigt deutlich den Einfluß der stärkeren Flugzeitverbreiterung durch Fokussieren der Laserstrahlen, sodaß die einzelnen Hyperfeinkomponenten nicht mehr aufgelöst sind. Auf der Einhüllenden

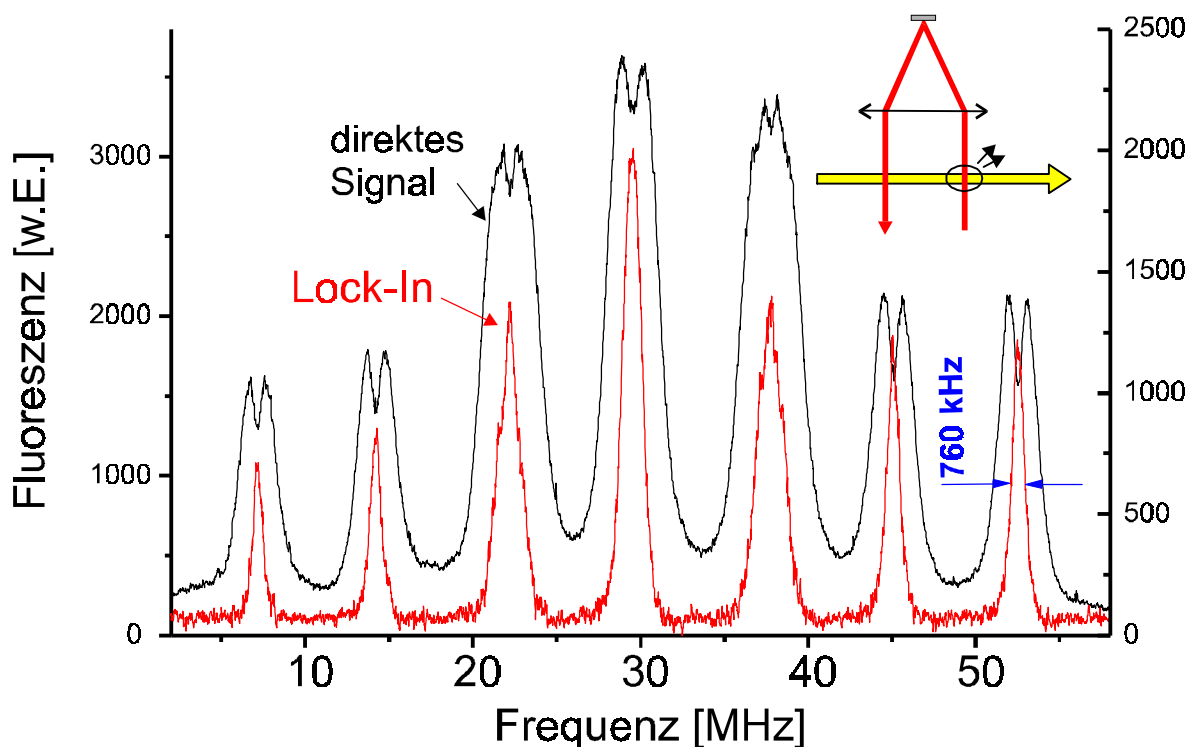


Abbildung 6.3: Hyperfeinmultipllett der R(25)-Linie ($27 - 0$, $b(0^+) \leftarrow X$), aufgenommen mit Sättigungsspektroskopie am Strahl. Zusätzlich sind die durch Unterbrechen des ersten Laserstrahls und Lock-In-Nachweis beobachteten Sättigungsdips abgebildet (Aufbau oben rechts). Vgl. auch das Spektrum in Abbildung 5.10.

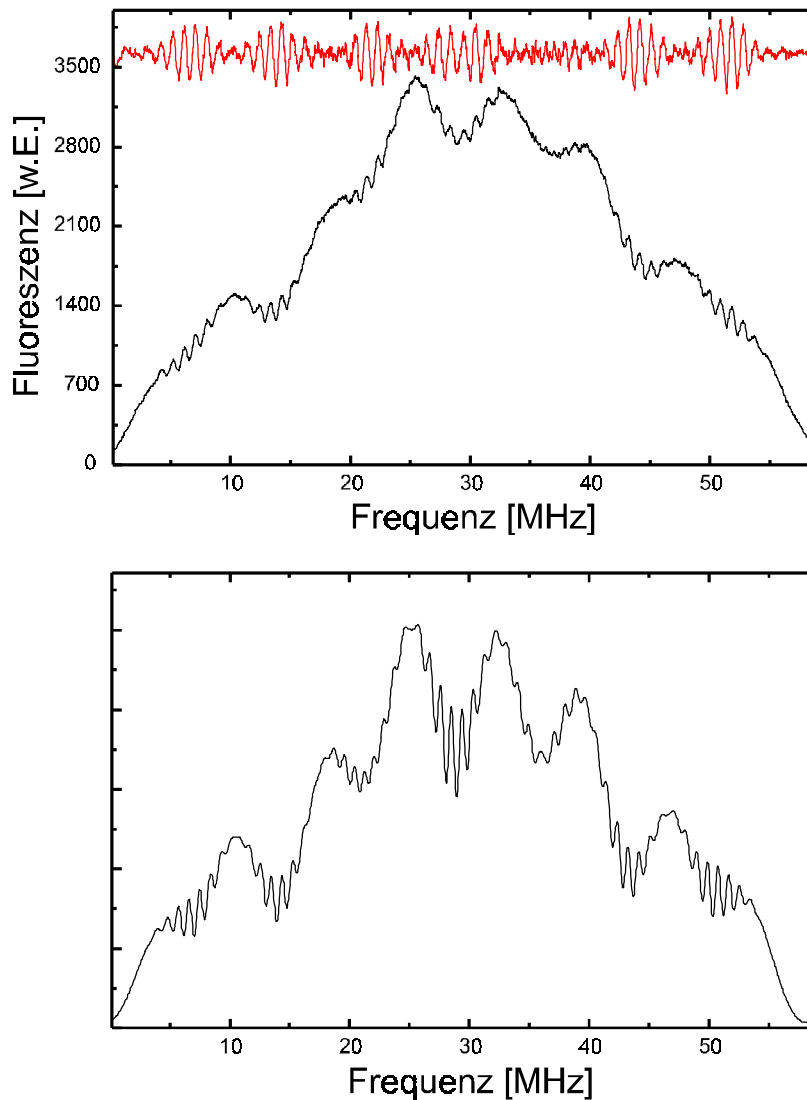


Abbildung 6.4: Materiewelleninterferenz am Beispiel der $R(25) 27 - 0 b(0^+) \leftarrow X$. Oben das gemessene Spektrum, unten das Resultat einer Simulation. In der oberen Grafik ist außerdem das mit einem digitalen Hochpaß gefilterte Spektrum zu sehen (Details im Text).

sind mehrere Oszillationen in Bereichen der entsprechenden Sättigungsdips in Abbildung 6.3 zu erkennen. Es handelt sich hierbei um die gesuchten Interferenzsignale.

Zur Registrierung des Spektrums wurde die Treiberfrequenz des AOM 1 des in Kapitel 4.3 beschriebenen Laserspektrometers durch einen vom Meßrechner gesteuerten Frequenzsynthesizer in Schritten von 8 kHz erhöht, was aufgrund des im doppelten Durchgang betriebenen akusto-optischen Modulators zu einer Veränderung der Laserfrequenz in Schritten von 16 kHz führt. Diese Größe wird im folgenden als Schrittweite der Registrierung bezeichnet. Es wurden für das in Abbildung 6.4 gezeigte Spektrum vier einzelne Scans aufgezeichnet, wobei für jeden Meßpunkt eine Integrationszeit von 70 ms verwendet wurde. Die Zeitkonstante für jeden Meßpunkt direkt bei der Aufzeichnung soll als Registrierungszeitkon-

stante bezeichnet werden. Durch die Mittelung der vier Scans ergibt sich die gesamte Integrationszeit pro Meßpunkt zu 280 ms.

Im unteren Teil von Abbildung 6.4 ist das Ergebnis einer Simulation abgebildet, die mit dem in Kapitel 2.3 vorgestellten Programm durchgeführt wurde. Es wurde je ein Interferogramm für jede der zehn Hyperfeinübergänge berechnet und diese entsprechend der in Kapitel 5.4 diskutierten Hyperfeinaufspaltung überlagert. Die Mittelung über die Zeeman-Niveaus jeder Komponente wurde vorab durchgeführt.

Da es aufgrund der unterschiedlichen Übergangswahrscheinlichkeiten der Hyperfeinkomponenten im Experiment nicht möglich ist, die $\pi/2$ -Bedingung simultan für alle Interferometerübergänge zu erfüllen, wurde in der Simulation ebenfalls mit unterschiedlichen Übergangswahrscheinlichkeiten gerechnet. Für die wahrscheinlichste Geschwindigkeit im Strahl (vgl. Kapitel 4.1.1 für die Parameter) wurde ein $\pi/2$ -Puls für den $m_F = 0$ Übergang der hochfrequentesten F -Komponente eingestellt. Die übrigen Übergangswahrscheinlichkeiten wurden entsprechend des Matrixelements (5.29) skaliert. Die Lebensdauer des angeregten Zustands wurde gemäß der Berechnungen in Kapitel 6.1 gewählt (vgl. Abbildung 6.1), die Längen der Laserpulse den experimentellen Werten der Laserstrahldurchmesser angepaßt.

Man erkennt eine gute qualitative Übereinstimmung des gemessenen und berechneten Spektrums. Der Kontrast der Interferenzen im simulierten Spektrum ist deutlich größer als der experimentell beobachtete. Diese Diskrepanz kann durch nicht optimaler Justage des Interferometeraufbaus oder einer deutlich zu lang angesetzten Lebensdauer des angeregten Zustands bewirkt werden. Eine Halbierung der Lebensdauer würde noch nicht zu einer Angleichung des Kontrasts von gemessenen und simulierten Spektren führen. Ein Auswaschen der Interferenzen durch Fluktuationen der Laserfrequenz erscheint bei den gemessenen Laserlinienbreiten von wenigen 10 kHz unwahrscheinlich. So sind leichte Fehljustagen oder nicht vollständig unterdrückte akustische Störungen wahrscheinlich für den verminderten Kontrast verantwortlich.

Im oberen Teil des gemessenen Interferogramms in Abbildung 6.4 ist eine Spur abgebildet, die nur die Interferenzen zeigt, nicht aber die Einhüllende des Hyperfeinmultipletts. Sie wurde durch digitale Filterung des aufgezeichneten Spektrums mit einem Fourier-Transform-Hochpaßfilter gewonnen [84]. Die Grenzfrequenz des Filters wurde zu 0,6 MHz gewählt, was deutlich unter der Periodizität der Interferenzen von ca. 1 MHz liegt, aber die langsam variierende Einhüllende der Linie gut unterdrückt.

In dieser Darstellung der Interferenzsignale ist besonders gut zu erkennen, daß die drei überlagerten Paare von Interferogrammen unterschiedliche Form haben, die Interferenz bei ca. 35 MHz ist beispielsweise nur sehr schwach ausgeprägt. Die Ursache für die abweichen-

den Ergebnisse der Überlagerungen zweier Interferenzen liegt in den unterschiedlichen Frequenzabständen der sich überdeckenden Hyperfeinkomponenten. Je nach Oszillationsperiode des Interferogramms können sich diese konstruktiv (zentrale Komponente) oder destruktiv (bei 35 MHz) überlagern. Ändert man die Dunkelzonenlänge D und damit die Periodizität der Interferogramme, kommt es zu einer anderen Überlagerung, wodurch z.B. die Interferenz bei 35 MHz wieder sichtbar wird. Das Verhalten der überlagerten Interferogramme wird auch von der Simulation wiedergegeben.

6.3.1 Variation des Zonenabstands

Aus den Vorüberlegungen in Kapitel 2 geht hervor, daß die Länge f der Oszillationsperioden der Interferenzsignale mit die Länge der Dunkelzone D und der Geschwindigkeit v der Moleküle durch den Zusammenhang

$$f = \frac{v}{2D} \quad (6.3)$$

verknüpft ist.

Unter festgehaltenen experimentellen Bedingungen wurden Interferenzen bei verschiedenen Zonenlängen D aufgezeichnet. Aus diesen wurde f durch Fourier-Transformation bestimmt. Die so bestimmten Frequenzen f sind über D in Abbildung 6.5 dargestellt. Die angegebenen Unsicherheiten sind durch die Genauigkeit bestimmt, mit der das den Interferenzen zugehörige Maximum in der Fourier-transformierten des Spektrums bestimmt werden konnte.

Für die Dunkelzonenlänge sind keine Unsicherheiten angegeben, da der Verschiebetisch zur Verstellung von D mit einer Genauigkeit von wenigen Mikrometern arbeitet. Allerdings

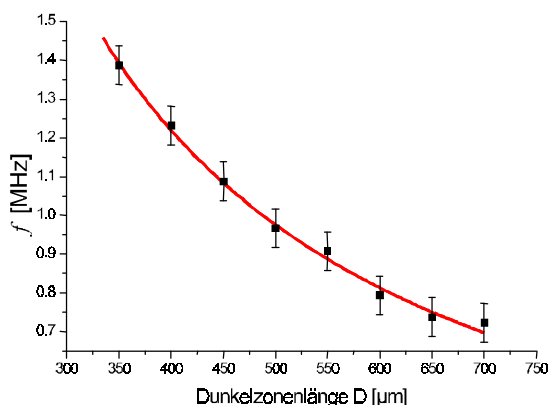


Abbildung 6.5: Periodenlänge der Interferenzen in Abhängigkeit von der Länge der Dunkelzone D

weist die gesamte Skala eine Unsicherheit von ca. $\pm 20 \mu\text{m}$ auf, die aus der anfänglichen Bestimmung von D mit Hilfe der Laserstrahlanalysekamera herrührt, deren räumliches Auflösungsvermögen von dieser Größe ist.

Die durchgezogene Linie in Abbildung 6.5 stellt eine Anpassung des Ausdrucks (6.3) mit $v = 970 \text{ m/s}$ dar, was in guter Übereinstimmung mit den in Kapitel 4.1.1 vorgestellten Werten ist. Schwankungen der Molekülstrahlgeschwindigkeit von einigen 10 m/s zwischen Messungen an verschiedenen Tagen, wahrscheinlich aufgrund un-

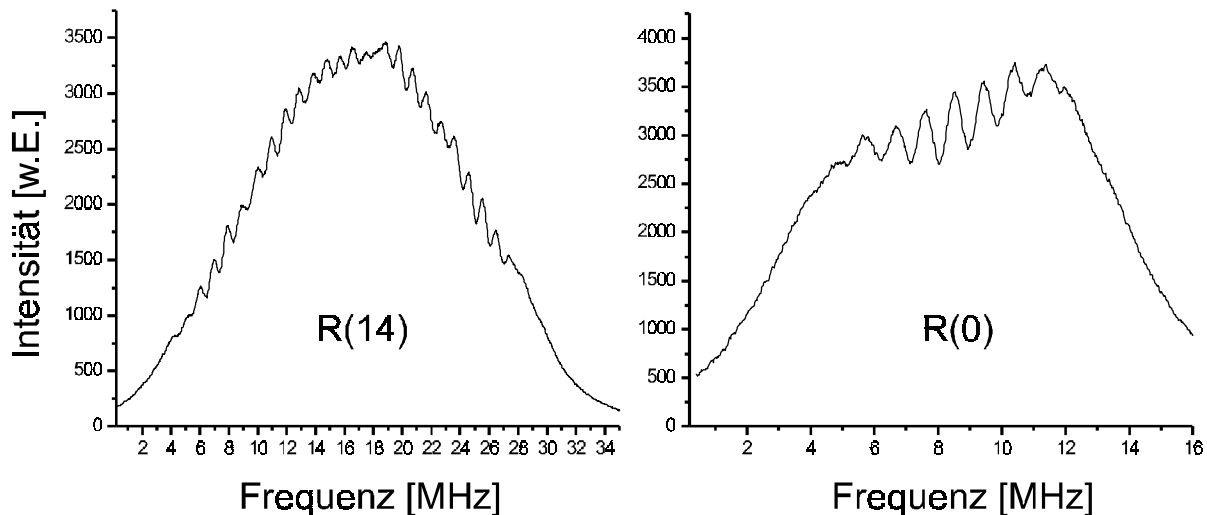


Abbildung 6.6: Interferogramme der R(14)- bzw. R(0)-Linie der 27 – 0 Bande ($b(0^+) \leftarrow X$). Die Zonenabstände D betrugen 0,5 mm, die Integrationszeit pro Meßpunkt lag bei 0,32 s (R(14)) bzw. 0,8 s (R(0)).

terschiedlicher Ofentemperaturen, wurden häufig beobachtet. Über einen Meßtag waren die Parameter des Molekülstrahls allerdings stabil.

6.3.2 Variation des Drehimpulses

Die Wahl verschiedener Rotationslinien einer Vibrationsbande als Strahlteilerübergang beeinflusst das Interferometer und die mit ihm gemessenen Spektren auf drei Weisen.

Erstens wird durch die Variation des Drehimpulses J die Hyperfeinstruktur verändert. Die Aufspaltung nimmt mit J ab (Abbildung 5.12, Formel (5.32)), sodaß es bei niedrigeren Drehimpulsen zu Überlagerungen der Interferenzen kommt.

Zweitens verändert sich die Lebensdauer des angeregten Zustands (Abbildung 6.1). Da der Zerfall des angeregten Zustands zu einer Dämpfung des Interferenzsignals führt, sind Oszillationen mit unterschiedlichem Kontrast zu erwarten. Die Bestimmung des Kontrasts ist in teilweise überlagerten Strukturen wie in Abbildung 6.4 nur schwer möglich. Deswegen ist es einfacher, Interferogramme mit großen Längen D der Dunkelzonen aufzuzeichnen und einen Rückschluß auf die verschiedenen Lebensdauern über den größtmöglichen Abstand der Laserstrahlen zu machen, bei dem noch signifikante Oszillationen beobachtet wurden.

Zuletzt muß aufgrund der mit der Lebensdauer verknüpften Übergangswahrscheinlichkeit eine andere Laserleistung für die Interferometerstrahlen zur Realisation der $\pi/2$ -Bedingung gewählt werden, um Interferenzen optimaler Amplitude zu erzeugen.

In Abbildung 6.6 sind Interferogramme der R(14)- und R(0)-Linie der 27 – 0 Bande ($b(0^+) \leftarrow X$) abgebildet. Die Hyperfeinaufspaltung hat bei beiden Linien gegenüber der R(25)-Linie in Abbildung 6.4 abgenommen. Speziell bei der R(0)-Linie kommt es zu einer

starken Überlagerung der Interferenzen von allen Hyperfeinübergängen. Es ist bei diesem Übergang noch zu beachten, daß die in Kapitel 5.4.1 genannte „Auswahlregel“ $\Delta F = \Delta J$ wegen des zu kleinen Drehimpulses nicht ausreichend ist. Es treten deshalb insgesamt vier sich überlagernde Linien auf.

Interferogramme einzelner Hyperfeinkomponenten der R(25)- und R(14)-Linie, sowie der gesamten R(0)-Linie sind in Abbildung 6.7 zu sehen. Es wurde jeweils eine so große Dunkelzonenlänge D gewählt, daß noch deutliche Interferenzen beobachtbar waren. Trotz dieser etwas unscharfen Bedingung ist gut zu erkennen, daß mit abnehmendem Drehimpuls größere Zonenabstände möglich werden, wie es auch nach den Berechnungen der Lebensdauern (Abbildung 6.1) zu erwarten war. Die volle Halbwertsbreite der zentralen Oszillation beträgt bei der Interferenz der R(14)-Linie ca. 215 kHz, bei der R(0) sogar nur 160 kHz, sodaß auch hochauflösende Spektroskopie mit dem Interferometer möglich ist. Bei dem Spektrum der R(0)-Linie sei nochmals darauf hingewiesen, daß es sich um eine Überlagerung mehrerer Interferogramme handelt, was die große Anzahl von Oszillationen im Vergleich zu den übrigen Interferogrammen erklärt.

Zur Erzeugung von Interferenzen mit optimalem Kontrast wurde im Falle der R(25)-Linie eine optische Leistung von 3,8 mW pro Laserstrahl benötigt, bei der R(14) 5,4 mW. Nimmt man an, daß sich optimaler Kontrast bei einem $\pi/2$ -Puls in jeder Wechselwirkungszone für die wahrscheinlichste Molekülgeschwindigkeit im Strahl einstellt, kann man die Lebensdauer des angeregten Zustands abschätzen. Dazu benötigt man außerdem die geometrischen Abmessungen der Laserstrahlen, die man mit Hilfe der Laserstrahlanalysekamera bestimmen kann, und die wahrscheinlichste Molekülgeschwindigkeit, die man bei Kenntnis von D mit Hilfe der Beziehung (6.3) aus der Periodizität der Interferenz bestimmen kann.

Man findet so Lebensdauern von 0,7 μs für die R(25), bzw. 1,0 μs für die R(14). Die bestimmten Werte weichen deutlich von denen der Berechnung in Kapitel 6.1 ab, die 0,97 μs bzw. 1,41 μs ergaben. Gestützt werden die Ergebnisse der Entstörung allerdings dadurch, daß die Verhältnisse der Lebensdauern nach beiden Bestimmungswegen nahezu gleich sind (Entstörung 1,45, Interferometer 1,43). Es ist daher davon auszugehen, daß die Mischungskoeffizienten der Entstörungsanalyse die Kopplung der Zustände gut wiedergeben, möglicherweise aber die angenommene Lebensdauer des A-Zustands nicht korrekt ist. Ein Angleichung des Kontrasts der Interferenzen von gemessenen und simulierten Spektren in Abbildung 6.3 tritt bei Verwendung der kürzeren Lebensdauern noch nicht auf.

Die R(0)-Linie wurde wegen der Überlagerungen der Interferogramme und damit verbundenen Unsicherheiten in der Wahl der Leistung von der Betrachtung ausgeklammert.

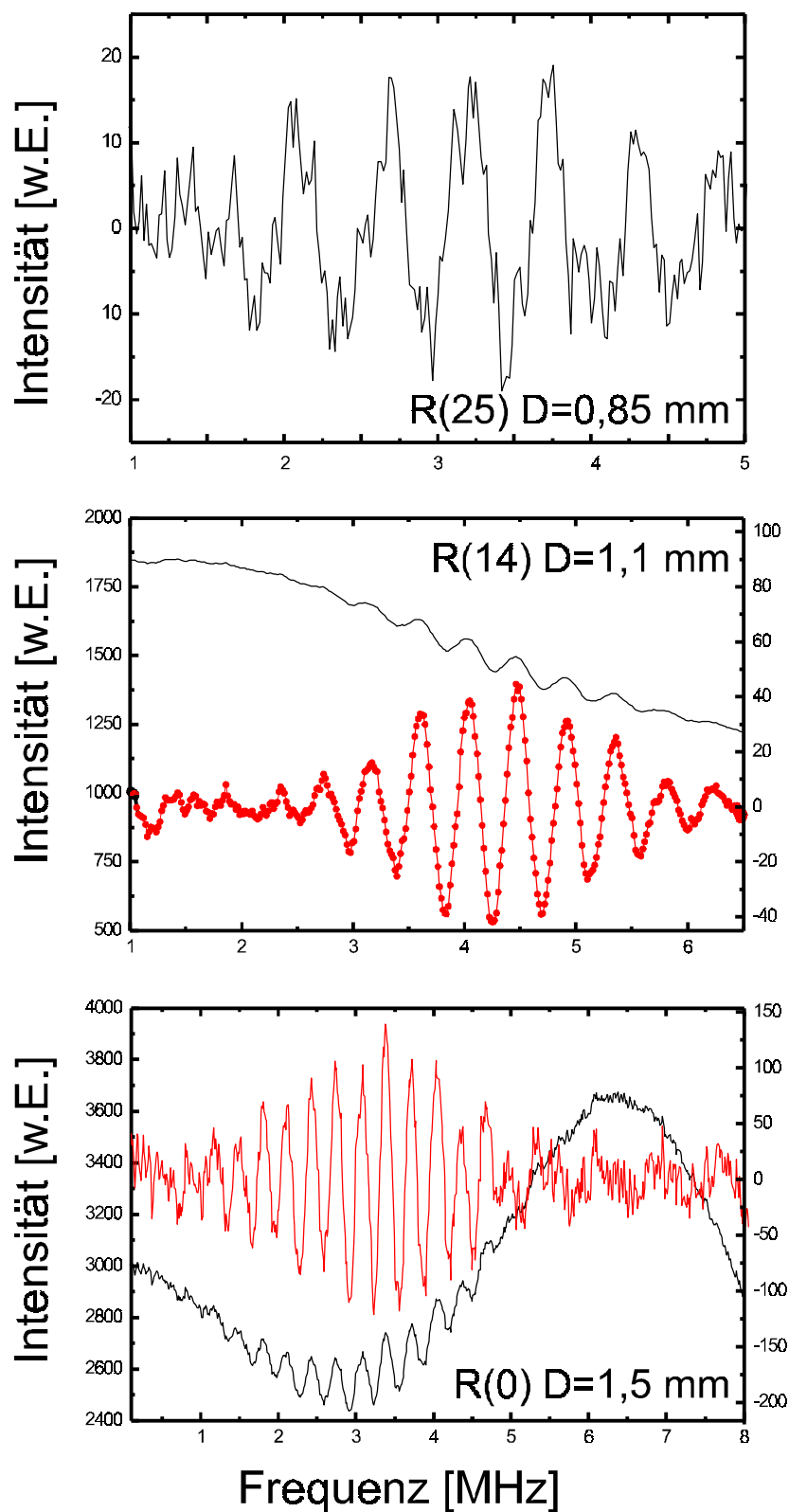


Abbildung 6.7: Interferenzen verschiedener Rotationslinien der $27 - 0$ Bande ($b(0^+) \leftarrow X$) bei großen Dunkelzonenlängen D . Es sind die mit einem Fourier-Transform-Hochpaß gefilterten Spektren abgebildet, bei der R(14) und R(0) auch das Ausgangssignal. Die Integrationszeit pro Meßpunkt betrug (von oben nach unten): 1,7 s, 3,36 s und 1,6 s.

6.4 Modulationstechniken

Wie aus den Abbildungen im vorherigen Kapitel zu entnehmen ist, werden die Interferenzsignale aufgrund der Hyperfeinstruktur auf einer komplizierten, unsymmetrischen Einhüllenden beobachtet und überlagern sich teilweise sogar. Die Ausgangssituation für die Bestimmung von Größen wie der Phase oder der Periode der Interferenzsignale aus diesen Spektren, wie es zur Untersuchung von Stoßeinflüssen notwendig ist, ist deshalb nicht optimal.

Es wurden daher verschiedene experimentelle Techniken erprobt, um einfachere Linienformprofile zu erzeugen oder sogar zu einer untergrundfreien Beobachtung der Interferenzen zu kommen.

Im vorausgehenden Kapitel ist bereits eine digitale Filterung vorgestellt worden, die gut zum nachträglichen Abziehen einer langsam variierenden Einhüllenden geeignet ist. Es ist aber dennoch wünschenswert, den Untergrund direkt bei der Detektion möglichst gut zu unterdrücken.

Alle Experimente, die in diesem Kapitel vorgestellt werden, wurden exemplarisch an der R(25)-Linie der 27 – 0 Bande ($b(0^+) \leftarrow X$) durchgeführt, die Ergebnisse sind zur Veröffentlichung eingereicht [85].

6.4.1 Optisches Pumpen

Als erster Ansatz wurde zur Separation eines einzelnen, freistehenden Interferometerübergangs aus einem Hyperfeinmultiplett optisches Pumpen mit einem zusätzlichen Laserfeld untersucht.

Mit diesem Laserfeld wird über Franck-Condon-Pumpen die Grundzustandsbesetzung derjenigen Hyperfeinniveaus in andere, nicht beobachtete Rotations-Vibrationsniveaus gepumpt, die im Interferogramm zu mit dem zu beobachtenden Übergang überlagerten Anregungen führen. Zu diesem Zweck ist es notwendig, einen Übergang für das Umpumpen zu wählen, der eine hinreichende Hyperfeinaufspaltung zur Adressierung der Grundzustandsbesetzung in den einzelnen F -Niveaus aufweist.

Der einzige angeregte Zustand mit gut handhabbaren Übergangsfrequenzen und ausreichender Hyperfeinaufspaltung ist der $b^3\Pi_u(0^+)$ -Zustand. Dafür muß allerdings eine schlechte Anregungswahrscheinlichkeit aufgrund der langen Lebensdauer in Kauf genommen werden. Wählt man der Einfachheit halber für das optische Pumpen dieselbe Linie wie für das Interferometer, kann das benötigte Laserfeld von „slave 2“ in Abbildung 4.4 bereitgestellt werden.

Will man beispielsweise die Hyperfeinkomponente $F - 1 \rightarrow F$ mit der höchsten Frequenz in Abbildung 6.4 beobachten, muß zumindest die Besetzung der benachbarten Komponente $F - 1$ entfernt werden. Die Frequenz von „slave 2“ wird mit dem AOM 2 resonant zu diesem

Übergang eingestellt, und der Laserstrahl strahlaufwärts des Interferometers mit dem Molekülstrahl gekreuzt. Man beobachtet den Einfluß des optischen Pumpens, stellt aber fest, daß die Linienfüße des Übergangs von $F - 2$ noch die zu beobachtende Linie $F - 1 \rightarrow F$ erreichen. Deshalb muß auch die Besetzung von $F - 2$ durch optisches Pumpen entfernt werden, was durch Rückreflexion des Pumpstrahls unter einem Winkel und Ausnutzung des Doppler-Effekts möglich ist.

Der Aufbau und ein so beobachtetes Spektrum sind in Abbildung 6.8 zu sehen. Der höchstfrequente Interferometerübergang des Multipletts erscheint jetzt als symmetrische, freistehende Linie.

Etwas problematisch ist bei dem in Abbildung 6.8 gezeigten optischen Aufbau, daß bei Verwendung eines kollimierten Laserstrahls für das optische Pumpen die homogene Linienbreite kleiner als die Doppler-Breite ist und nicht die Besetzung aller transversalen Geschwindigkeitsklassen in einem Pumpschritt entfernt werden kann (vgl. Abbildung 6.3). Da aber im Interferometer aufgrund der Fokussierung der Laserstrahlen die Besetzung aller transversalen Geschwindigkeitsklassen angesprochen wird, muß der Laserstrahl für das optische Pumpen mehrfach unter verschiedenen Winkeln zurückreflektiert werden.

Ein Ansatz zur Verbesserung des Aufbaus ist die Verwendung einer zylindrischen Linse zur Fokussierung des Pumpstrahls auf den Molekülstrahl. Sphärische Linsen sind nicht sinnvoll, da der Molekülstrahl in seiner ganzen Höhe ausgeleuchtet werden soll. Um den Laserstrahl wieder unter einem Winkel zurückzereflektieren, sollte an Stelle eines Planspiegels ein zylindrischer verwendet werden, um den Strichfokus des Laserstrahls wieder auf den Mole-

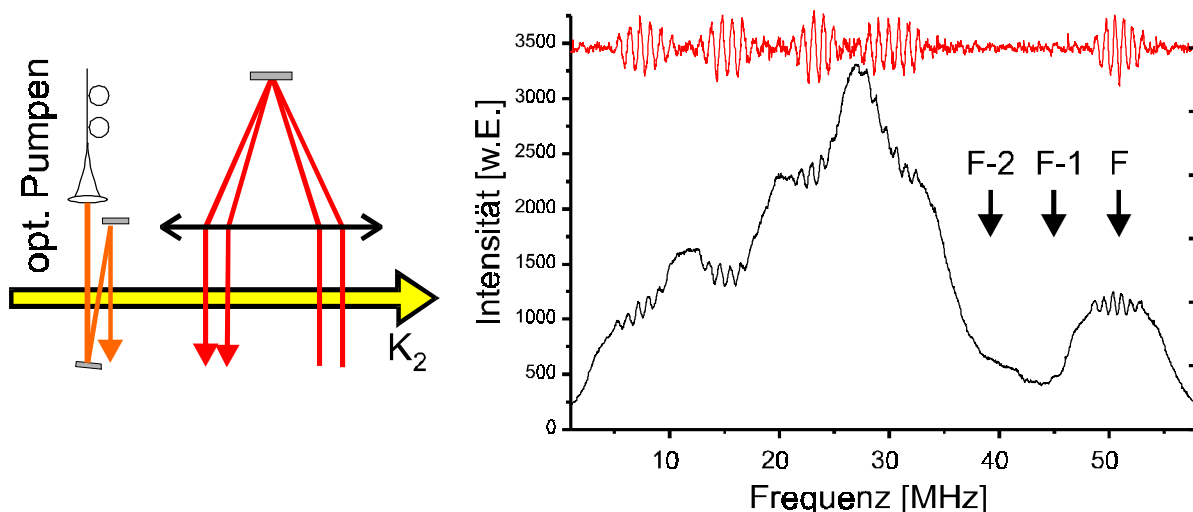


Abbildung 6.8: Aufbau für optisches Pumpen zur Erzeugung nicht überlagerter Interferometerübergänge und resultierendes Spektrum am Beispiel der R(25)-Linie. Die Laufstrecke zwischen Pumpzone und Interferometer betrug ca. 50 cm.

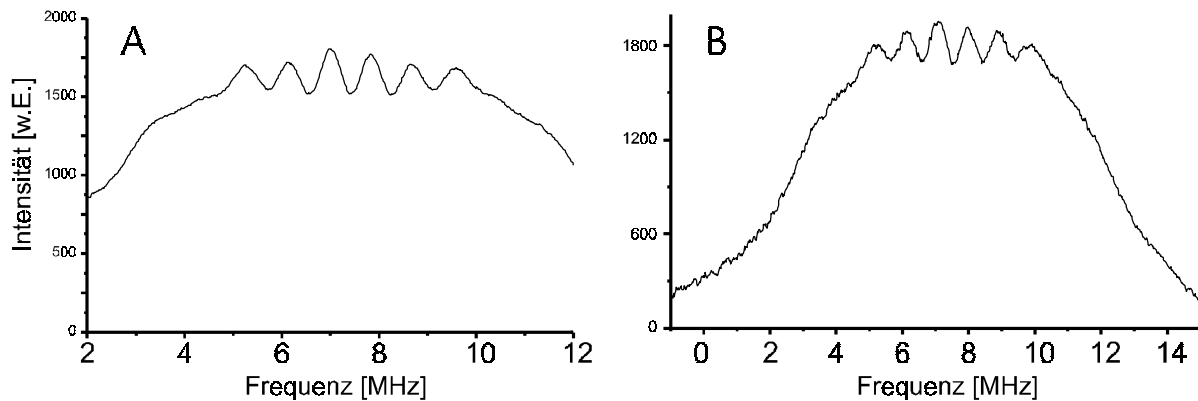


Abbildung 6.9: A: Spektrum mit direktem Nachweis und Entleerung der benachbarten Hyperfeinkomponenten durch optisches Pumpen, Integrationszeit pro Meßpunkt 2,1 s
 B: Dieselbe Komponente bei unterbrochenem Pumpstrahl und Lock-In-Nachweis, Integrationszeit pro Meßpunkt 3,6 s

külstrahl abzubilden. Da aber keine solchen Spiegel zur Verfügung standen, wurde der Aufbau mit einem Hohlspiegel getestet und lieferte bei etwas einfachere Justage zu denen in Abbildung 6.8 vergleichbare Ergebnisse.

Die Entleerung von Grundzustandsniveaus wird mit wachsender Anzahl der benötigten Frequenzen unpraktikabel. Mehr Niveaus müssen beispielsweise zu Präparation einer freistehenden zentralen Hyperfeinkomponente oder bei kleinerer Hyperfeinaufspaltung entleert werden. Eine Alternative ist, den Entleerungslaser in seiner Frequenz resonant zu dem zu beobachtenden Übergang einzustellen und in seiner Intensität zu modulieren. Bei einem Lock-In-Nachweis des Interferometersignals auf der Unterbrecherfrequenz des Pumpasers wird dann nur die gewünschte Komponente beobachtet.

In Abbildung 6.9 sind zum Vergleich beider Methoden des optischen Pumpens Spektren der höchstfrequenten Hyperfeinkomponenten dargestellt. Aufgrund des kleinen Photonenflusses und den damit verbundenen schwachen Signalen benötigte der Lock-In-Verstärker eine Zeitkonstante von 1 s bei einer Frequenz des Unterbrechers von ungefähr 490 Hz. Dies hat zur Folge, daß die Registrierungszeitkonstante mit 300 ms relativ lang im Vergleich zum direkten Nachweis ohne Lock-In-Verstärker (70 – 100 ms) gewählt werden mußte. Die Unterbrecherfrequenz ist niedrig genug, sodaß durch die Geschwindigkeitsverteilung im Strahl keine signifikante Mischung der Molekülpakete mit und ohne optisches Pumpen auftritt.

Unglücklicherweise wird durch das langsame Verstimmen des Lasers beim Lock-In-Nachweis zusätzliches Rauschen sichtbar, das wahrscheinlich auf langsame Schwankungen der Teilchendichte im Molekülstrahl zurückzuführen ist. Dies äußert sich darin, daß das Signal-zu-Rausch-Verhältnis der Interferenz bei der Verwendung des Lock-In-Verstärkers

trotz der um 50% größeren Integrationszeit pro Meßpunkt (3,6 s gegen 2,1 s) mit 15 nur halb so groß ist wie bei dem Spektrum in Abbildung 6.9 A.

Es ist demzufolge für ein gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis besser, viele Spektren mit kurzer Registrierungszeitkonstante aufzunehmen und diese zu mitteln, als wenige mit langer Zeitkonstante, was in ähnlicher Form bereits in [86] beobachtet wurde. Die Limitierung durch die lange Zeitkonstante des Lock-In-Verstärkers kann unter anderen experimentellen Bedingungen entfallen, speziell bei der Beobachtung von stärkerer Fluoreszenz, wird aber auch bei den im folgenden diskutierten Methoden erhalten bleiben.

6.4.2 Amplitudenmodulation von Laserstrahlen im Interferometer

Optisches Pumpen ermöglicht es in den beiden vorgestellten Varianten, einzelne Komponenten aus einem Hyperfeinmultiplett zu separieren und so symmetrische Linienprofile zu erzeugen. Für viele Anwendungen ist es aber wünschenswert, mit einer geeigneten Modulationstechnik den inkohärenten Untergrund komplett zu unterdrücken und idealerweise nur die Interferenzen zu beobachten.

Als erster Ansatz wird die Amplitudenmodulation von Laserstrahlen im Interferometer betrachtet. Aufgrund des räumlichen Überlapps der Laserstrahlen mit gleicher Ausbreitungsrichtung (vgl. Abbildung 6.2) ist es nur möglich, eine gemeinsame Modulation auf Paare von Laserstrahlen aufzuprägen. Von Interesse sind die Paare 2 – 3 und 1 – 2. Die Modulation der Strahlen 1 und 2 wurde auch in [87] verwendet.

Die Amplitudenmodulation der Strahlen 2 und 3 schaltet zwischen der Ramsey-Bordé-Anordnung und einer Anordnung für Sättigungsspektroskopie. Nimmt man an, daß innerhalb der Dunkelzonen D keine Verluste durch spontane Prozesse auftreten, allerdings vollständiger Verlust der Besetzung im angeregten Zustand in der Zone D' , werden nach der letzten Wechselwirkungszone in beiden Anordnungen gleich viele Moleküle im angeregten Zustand sein, wenn man den Mittelwert des Interferogramms betrachtet. Dies bedeutet, daß die Differenz zwischen den jeweils beobachteten Signalen nur in dem Interferenzsignal besteht. Da die Lebensdauer des angeregten Zustands mit ungefähr $1 \mu\text{s}$ aber keineswegs lang gegen die Durchflugzeit durch D von ungefähr $0,5 \mu\text{s}$ ist, wird es zu signifikanten Verlusten auch in D kommen, was zu einer weniger idealen Situation führt.

Das in Abbildung 6.10 A gezeigte Spektrum wurde in der beschriebenen Anordnung aufgezeichnet. Es wurde mit der Situation mit optischem Pumpen wie in Abbildung 6.8 begonnen. Die Unterbrecherfrequenz wurde zu ungefähr 490 Hz gewählt, was wieder niedrig genug ist, um eine Vermischung der Teilchenpakete fast vollständig zu unterdrücken. Das Spektrum zeigt nicht die erhofften Eigenschaften, sondern einen relativ steilen Untergrund. Dieser ist

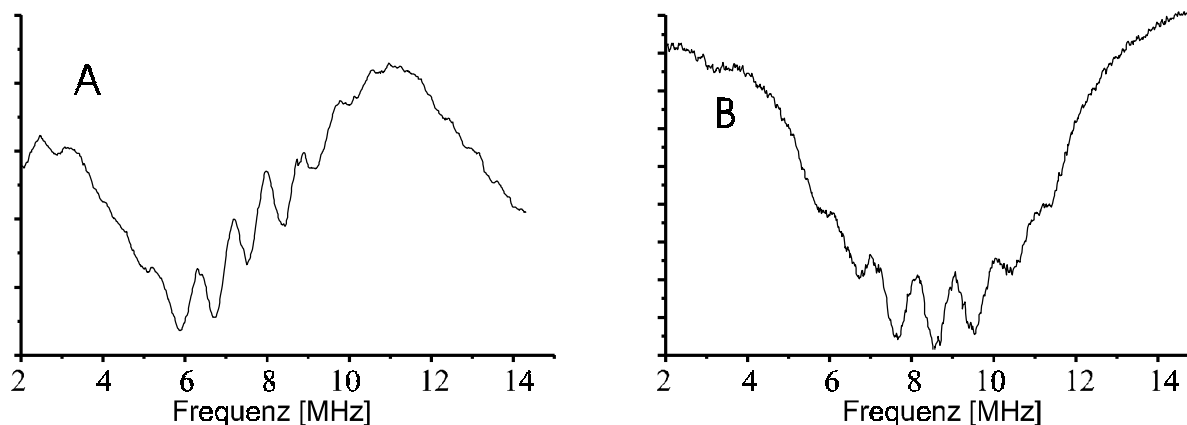


Abbildung 6.10: A: Amplitudenmodulation der Laserstrahlen 2 und 3, B: Laserstrahlen 1 und 2.

Die Besetzungen der benachbarten Hyperfeinkomponenten wurden durch optisches Pumpen entfernt. Die Integrationszeit pro Meßpunkt betrug 2,4 s (8 Scans), bzw. 3,3 s (11 Scans).

möglicherweise auf die unterschiedliche Anregungswahrscheinlichkeit in den Füßen und dem Zentrum der Linien bei der gewählten $\pi/2$ Bedingung zurückzuführen. Flügel der Übergänge des niederfrequenten Teils des Multipletts, die die beobachtete Linie noch erreichen, führen in Anwesenheit von spontaner Emission in der Dunkelzone D in beiden Anordnungen zu unterschiedlichen Besetzungen des angeregten Zustands und könnten den schiefen Untergrund verursachen.

Eine Fehljustage des Interferometers könnte ebenfalls zu unsymmetrischen Linien führen. Da andere Techniken symmetrische Linien ergeben, ist eine Fehljustage als Ursache unwahrscheinlich.

Die Modulation der Laserstrahlen 2 und 3 wurde nicht weiter untersucht, da durch die kleinen Zonenabstände D und die beschränkte räumliche Auflösung der Abbildungsoptik Fluoreszenz aus den beiden letzten Wechselwirkungszonen beobachtet wird. Dadurch entsteht ein modulierter Untergrund, was einen grundsätzlichen Nachteil dieses Verfahrens in diesem Experiment darstellt. Man könnte das Problem durch Proben des komplementären Grundzustandsausgangs des Interferometers in einem anderen Spektralbereich mit einem weiteren Laserfeld oder auf dem gleichen Übergang abwärts im Molekülstrahl umgehen, was aber zu einer weiteren Verkomplizierung des Experiments geführt hätte und deshalb nicht verfolgt wurde.

Die Modulation der Laserstrahlen 1 und 2 führt dagegen zu symmetrischen Linienprofilen (Abbildung 6.10 B). In diesem Fall wird zwischen einfacher Anregung mit zwei parallelen Laserstrahlen und dem Interferenzsignal geschaltet. Als Ausgangssignal des Lock-In-Verstärkers ist demnach der Sättigungsdip mit den Interferenzen zu erwarten.

Da hier die homogene Linienbreite aufgrund der Flugzeitverbreiterung vergleichbar oder größer als die Restdopplerbreite ist, wird durch den Sättigungsaufbau kein ausgeprägter Dip erzeugt. Die Reduktion der Breite der Einhüllenden von Abbildung 6.10 B gegenüber Abbildung 6.9 ist dementsprechend nicht sehr groß, aber erkennbar. In Experimenten mit deutlicher inhomogener Verbreiterung der Übergänge ist mit einer signifikanten Abnahme des Hintergrundsignals durch die Amplitudenmodulation der Laserstrahlen 1 und 2 im Interferometer zu rechnen.

6.4.3 Frequenzmodulation von Laserstrahlen im Interferometer

Die Frequenzmodulation von Laserstrahlen und Detektion mit einem Lock-In-Verstärker auf der Modulationsfrequenz ist in der Spektroskopie eine Standardtechnik, die bei kleinen Modulationshuben verglichen mit der Breite der zu beobachtenden Strukturen die erste Ableitung des direkten Signals liefert.

Die Frequenz der Laserstrahlen des Interferometers wurden mit der $f_{mod} \approx 420$ Hz moduliert, indem die Treiberfrequenz $f \approx 250$ MHz von AOM 1 (Abbildung 4.4) mit dieser moduliert wurde. Ebenfalls aufgeprägte Amplitudenmodulation wird durch die anschließende Injektionskopplung von „slave 1“ unterdrückt. Es wurde eine Modulationsamplitude von ungefähr 450 kHz gewählt, was einem Modulationsindex um 1000 entspricht. Die Optimierung der Modulationsamplitude wurde anhand des Ausgangssignals des Lock-In-Verstärkers durch-

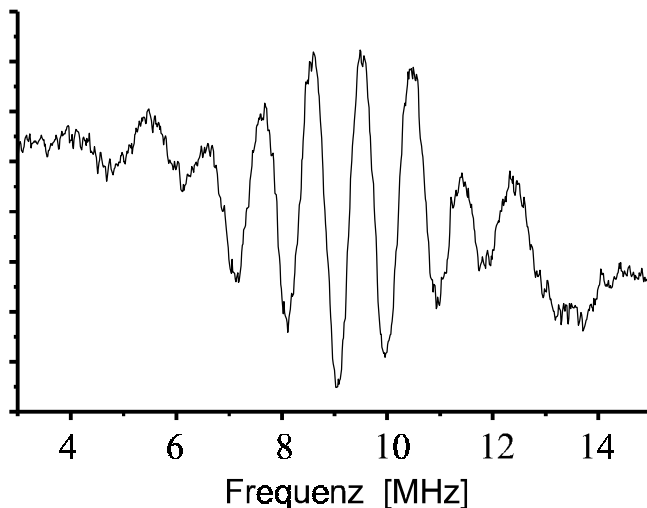


Abbildung 6.11: Erste Ableitung des Interferenzsignals in Abbildung 6.9 A, beobachtet durch FM-Spektroskopie. Die Registrierungszeitkonstante betrug 300 ms, die Integrationszeit pro Meßpunkt 4,5 s.

geführt. Sie entspricht grob der vollen Halbwertsbreite der Interferenzoszillationen bei der gewählten Dunkelzonenlänge D .

Ein so erzeugtes Spektrum ist in Abbildung 6.11 zu sehen. Es wurde zusätzlich optisches Pumpen zur Entvölkerung der benachbarten Niveaus benutzt.

Das Interferenzsignal wurde fast ohne Untergrund aufgezeichnet, der verbleibende Anteil ist auf die erste Ableitung der langsam veränderlichen Einhüllenden in Abbildung 6.9 A zurückzuführen.

Dieser verbleibende Untergrund

kann allerdings in Bereichen des Spektrums wie um 22 MHz in Abbildung 6.4 zu Problemen führen, da er dort vergleichbare Steigungen wie das Interferenzsignal selbst in den Randbereichen des Multipletts aufweist. Weitere Unterdrückung der Einhüllenden wäre mit einem Nachweis mit dem Lock-In-Verstärker auf höheren Harmonischen möglich. Es muß aber jeweils abgewogen werden, ob der Verlust an Signalamplitude durch diesen Nachweis bei dem gegebenen Signal-zu-Rausch-Verhältnis vertretbar ist oder nicht. Im vorliegenden Experiment wird dieser Ansatz durch die schon bei Nachweis auf $1-f$ sehr langen Integrationszeiten verhindert.

Inwieweit die hier vorgestellten Methoden bei Experimenten zur interferometrischen Untersuchung von Stößen zur Anwendung kommen, wird in Kapitel 7.2 diskutiert.

7 Experimente zu Stößen im Molekülstrahl

In diesem Kapitel werden Experimente vorgestellt, die die Möglichkeit der Beobachtung von Stößen zwischen Kalium-Atomen und K_2 -Molekülen mit dem in Kapitel 6 beschriebenen Interferometer untersuchen. Die Stöße finden zwischen Teilchen im Strahl statt. Solche Stöße treten auf, da nur etwa 15% der Teilchen im Strahl Moleküle sind, der Rest dagegen Kalium-Atome.

Die Teilchen im Strahl haben nach der adiabatischen Expansion zwar eine hohe Translationsgeschwindigkeit von über 900 m/s, die Relativgeschwindigkeit der Teilchen im Schwerpunktsystem ist aber durch die Abkühlung während der Expansion klein ([42], Abbildung 4.2). Man beobachtet auch eine gegenüber der Ofentemperatur stark reduzierte Rotationstemperatur der Moleküle von ca. 70 K [44]. Atome und Moleküle im Strahl weisen nahezu identische Geschwindigkeiten auf, die Breite der Geschwindigkeitsverteilung kann zur Bestimmung einer Temperatur benutzt werden.

Eine Breite der Geschwindigkeitsverteilung von 100 m/s entspricht einer Temperatur der K_2 -Moleküle von nur ca. 50 K. Mit einem Trägergas bei höherem Druck sind Breiten von 10 m/s erreichbar, was Temperaturen um 1 K entspricht und zu „kalten Stößen“ führt. Untersuchungen von kalten, dichten Molekülensembles sind so ohne aufwendige Komponenten wie Kryostaten oder den zur Photoassoziation von Atomen benutzten Fallen möglich.

Gegenüber den Experimenten in mit mechanischen Strahlteilern für die Materiewelle [16] hat die hier angewandte Methode den Vorteil, daß durch die Wahl eines Interferometerübergangs der molekulare Stoßpartner in einem eindeutig spezifizierten Quantenzustand ist. Dies war in Experimenten wie [16] nicht der Fall, dort wurde mit dem gesamten thermischen Molekülensemble gearbeitet. Eine Untersuchung der Abhängigkeit der Stöße von den molekularen Freiheitsgraden sollte hier also prinzipiell möglich sein.

Im ersten Unterkapitel werden Abschätzungen für die Größe der zu erwartenden Effekte geben, der Abschnitt 7.2 behandelt dann verschiedene experimentelle Ansätze zur Beobachtungen der Stöße. Ergebnisse werden im Unterkapitel 7.3 vorgestellt.

7.1 Abschätzung der Effekte

Nach den Betrachtungen in Kapitel 3.3 ist durch Stöße grundsätzlich mit einer Beeinflussung der Amplitude, Periode und Phase oder Zentralfrequenz des Interferenzsignals zu rech-

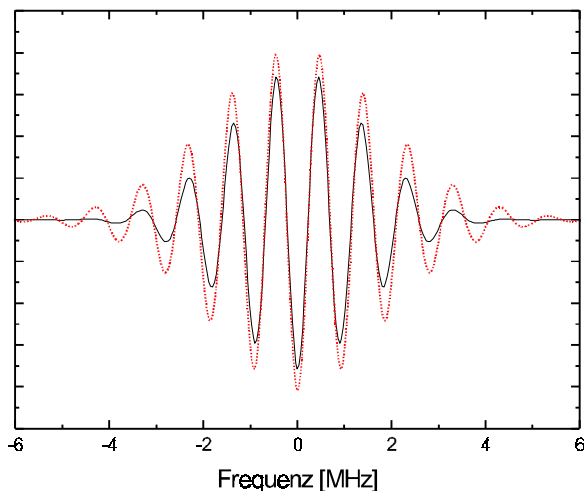


Abbildung 7.1: Simulationsergebnisse für typische experimentelle Bedingungen (durchgezogene Linie, 65 μm Radius der Laserstrahlen, $D = 0,5$ mm) und mit vergrößerter homogener Linienbreite (unterbrochen, 35 μm Radius). Die Frequenzbreite des Interferogramms wird im Experiment durch die homogene Verbreiterung bestimmt.

nen. Mit einer mittleren Größe für den Brechungsindex aus [36] sollen die drei Effekte in ihrer Größe abgeschätzt werden.

Die Periode des Interferenzsignals wird durch die Veränderung der effektiven Länge der Dunkelzone in $n_2 \cdot D$ verändert (Gleichung (3.19)). Mit den in [88] gegebenen Zusammenhängen für Düsenstrahlen lassen sich unter den vorliegenden experimentellen Bedingungen Teilchendichten im Interferometer von 10^{13} cm^{-3} abschätzen.

Typischen Phasenverschiebungen von 4 rad/mtorr nach [36] entsprechen nach den Gleichungen (3.11) und (3.12) Werte für $(n_1 - 1)$ in der Größe von 10^{-10} , Wenn es sich bei allen Teilchen um ideale Gase handelt. Aufgrund der Beziehung (6.3) ergibt sich eine relative Änderung der Periodenlänge in der gleichen Größe, was unter den jetzigen experimentellen Bedingungen nicht beobachtbar ist. Nur bei drastischer Vergrößerung der Streuamplitude (3.11) und relativen Periodenänderungen von 10^{-4} bis 10^{-3} könnten sie beobachtet werden.

Der Einfluß der unterschiedlichen Brechungsindizes für beide Interferometerzustände resultiert in dem vorliegenden Experiment im wesentlichen in einer Phasenänderung der Interferenz, da die Breite des Frequenzintervalls, in dem Oszillationen beobachtet werden, bei Dunkelzonenlängen D von 0,5 mm oder darunter durch die homogene Linienbreite bestimmt wird (Kapitel 3.3). Dies ist am Auftreten einer größeren Zahl von Oszillationen bei Vergrößerung der Zonenabstände (vgl. Abbildung 6.4 oben und Abbildung 6.7 in der Mitte), sowie durch Vergleich von Simulationsrechnungen unter Berücksichtigung der experimentellen Bedingungen und vergrößerter homogener Linienbreite durch Verkürzung der Wechselwirkungszeit mit dem Laserfeld zu erkennen (Abbildung 7.1).

Die Phasenänderung des Interferenzsignals läßt sich für das vorliegende Experiment abschätzen (vgl. (3.12)), wobei aber zu beachten ist, daß nur Unterschiede in den Streuamplituden für die beiden molekularen Zustände zu einer Phasenverschiebung führen. Nimmt man eine Relativgeschwindigkeit der Stoßpartner von 50 m/s und einen Unterschied beider

Streuamplituden von 10% an, sind Phasenverschiebungen um 10 mrad zu erwarten. Eine solche Phasenverschiebung kann bei der Güte der berichteten Interferenzen beobachtbar sein.

Die Amplitudenänderung der Interferenz durch die Anwesenheit der Stoßpartner kann in gleicher Weise grob zu ca. 10% abgeschätzt werden. Diesem verglichen mit den beiden anderen Einflüssen relativ großen Effekt steht aber eine große, schwer abwägbare Unsicherheit in der Bestimmung der Amplitude gegenüber. Die Unsicherheit entsteht dadurch, daß die meisten Störeinflüsse, wie Änderungen der Teilchendichte, Frequenzfluktuationen oder -driften der Laserstrahlung nach dem Mittelungsprozeß ebenfalls zu einer Reduktion der Amplitude des Interferenzsignals führen.

Die Linienverschiebung durch Stöße im Strahlteiler selbst wird genau wie der Einfluß der unterschiedlichen Brechungsindizes im Interferometer nur zu einer sehr kleinen Verschiebung führen. Die Übergangsfrequenz kann bei beliebiger Phase des Interferogramms nur durch die Einhüllende der Oszillationen bestimmt werden, was wegen deren langsamer Veränderung nicht mit hoher Genauigkeit möglich ist. Da zwischen Phase und Zentralfrequenz des Interferogramms eine große Korrelation besteht und in der Auswertung eine nicht zu große Zahl von zudem noch verkoppelten Parametern auftreten sollte, wird die Druckverschiebung ebenfalls als eine Phasenverschiebung interpretiert.

Sicherlich kommt es neben den Atom-Molekül-Stößen auch zu Molekül-Molekül-Stößen, die das Interferenzsignal beeinflussen. Da die Größe der Effekte aber mit der Stoßpartnerdichte N skaliert (vgl. Gleichung (3.12)), kann der Einfluß wegen der geringen Dichten der Moleküle im Vergleich zu den Atomen zunächst als klein betrachtet werden. Ein Einfluß würde außerdem erst durch Veränderung der Stoßbedingungen zwischen zwei Experimenten sichtbar. Wird an dem molekularen Ensemble nicht manipuliert, werden Molekül-Molekül-Stöße folglich auch nicht beobachtet.

7.2 Experimentelle Vorgehensweise

Die Phase der Interferenz ist nach den Betrachtungen des vorherigen Kapitels die vielversprechendste Meßgröße für die Beobachtung von Stößen mit dem Materiewelleninterferometer. Der abgeschätzte Effekt bezieht sich auf den Vergleich von „stoßfreien“ Interferogrammen als Referenz mit der „normalen“ Molekülstrahlsituation.

Zur experimentellen Umsetzung dieser Bedingung müßten die Atome aus dem Molekülstrahl abgelenkt werden, um zu stoßfreien Bedingungen umzuschalten. Eine Realisation einer Ablenkzone für K-Atome mit einem nahresonanten Laserfeld auf der D-Linie im Bereich der differentiellen Pumpstufe (Abbildung 4.1) ist in Vorbereitung.

7.2.1 Manipulation der Atome

Ein anderer Ansatz ist es, den inneren atomaren Zustand durch Anregung in höhere elektronische Zustände zu manipulieren und damit unterschiedliche Wechselwirkungen während der Stöße einzustellen. Die Manipulation der Atome muß aus bereits genannten Gründen in den Dunkelzonen des Interferometers mit unterschiedlichen molekularen Zuständen in den Armen des Interferometers durchgeführt werden (D), wenn man den unterschiedlichen Einfluß der Stöße auf die Interferometerarme als Brechungsindex für die Materiewelle beobachten will. Man vergleicht dann Interferogramme, die mit bzw. ohne manipulierte Atome aufgenommen wurden.

Die quantitative Interpretation der Ergebnisse wird durch dieses Vorgehen erschwert, da z.B. eine Phasendifferenz zwischen beiden Interferogrammen auf die Differenz der Unterschiede der Wechselwirkung von K_2 -Molekülen in beiden Interferometerzuständen mit den verschiedenen atomaren Zuständen zurückzuführen ist. Da es sich aber um Experimente zur Demonstration der Beobachtbarkeit von Stößen mit dem Interferometer handelt, wurde diese Komplikation in Kauf genommen.

Außerdem ergibt sich die Möglichkeit, den Effekt der Stöße durch Anregung von Rydbergzuständen zu vergrößern. Der geometrische Stoßquerschnitt wächst mit der vierten Potenz der effektiven Hauptquantenzahl n^* , die Polarisierbarkeit der Atome sogar mit n^{*7} [27]. Sie ist eine entscheidende Größe für den Stoß, da z.B. der Kopplungsparameter C_6 für van-der-Waals-Wechselwirkungspotentiale von der Polarisierbarkeit der Stoßpartner abhängt.

Da die Dichte der Stoßpartner in die Phasenverschiebung eingeht (Gleichung (3.12)), wurde nach einem möglichst effektiven Anregungsverfahren für höhere Atomzustände gesucht. Beispielsweise können die Zustände $8s\ ^2S_{1/2}$ bis $12s\ ^2S_{1/2}$ im Kalium durch einen Zweistufenprozeß erreicht werden, in dem eine D-Linie gepumpt wird und vom $4p\ ^2P$ -Niveau mit einem zweiten Photon der Wellenlänge von 534 nm (8s) oder 480 nm (12s) das Zielniveau erreicht wird [89]. Die Lebensdauern dieser Zustände sind noch vergleichsweise kurz, sodaß für die Erzeugung einer signifikanten Besetzung im angeregten Zustand ein ständiger Pumpprozeß notwendig ist.

Für den ersten Anregungsschritt wurde die D_2 -Linie gewählt, da hier der geschlossene Übergang von $F'' = 2$ nach $F' = 3$ zur Verfügung steht. Aufgrund der kleinen Hyperfeinaufspaltung des $4p\ ^2P_{3/2}$ -Zustands ($a \approx 6$ MHz [77]), kommt es zu einer nicht vernachlässigbaren Anregungswahrscheinlichkeit der anderen Hyperfeinniveaus F' und zu Verlusten in das nicht angekoppelte Grundzustandsniveau $F'' = 1$. Es wird deshalb ein weiteres Feld zur Entleerung von $F'' = 1$ benötigt („Rückpumper“).

Hierzu wird ein Teil des Lichts eines Diodenlasers in Littrow-Konfiguration für den Übergang $F'' = 2$ nach $F' = 3$ („Pumpstrahl“) mit einem akusto-optischen Modulator, der im doppelten Durchgang betrieben wird, um ca. 440 MHz in seiner Frequenz verschoben, sodaß es resonant zu einem der Übergänge $F'' = 1$ nach $F' = 1$ oder 2 wird. Beide Felder werden überlagert und mit einer single-mode Glasfaser an die Vakuumapparatur geführt. Der Strahlengang ist in Abbildung 7.2 zu sehen, der in der Frequenz nicht verschobene Strahl wird als Pumpstrahl verwendet. Die Leistung des Rückpumpers läßt sich über die Leistung der AOM-Treiberfrequenz f und die damit gekoppelte Beugungseffizienz des AOMs einstellen. Meistens wurde ein Leistungsverhältnis von Pumpstrahl zu Rückpumper von ca. 10:1 bei einer Gesamtleistung beider Felder von bis zu 2,5 mW gewählt. Das Leistungsverhältnis wurde auf maximale Fluoreszenz der Atome auf der D_2 -Linie optimiert. Die Fluoreszenz wurde mit einem Objektiv einer Videokamera auf eine gewöhnliche Photodiode BPW 34 abgebildet, die

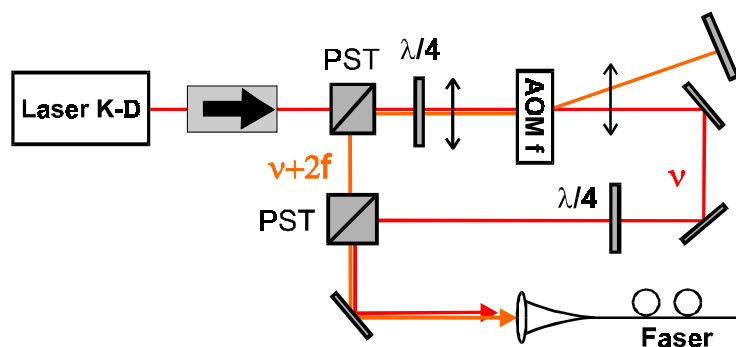


Abbildung 7.2: Strahlengang zur Erzeugung eines Seitenbands als „Rückpumper“ mit einem akusto-optischen Modulator (AOM). PST: Polarisationsstrahlteiler

am Ende der Strahlapparatur montiert war und deren Photostrom mit einem Stromverstärker gemessen wurde.

Dieses Fluoreszenzsignal wurde zunächst zur Stabilisierung des Diodenlasers auf den atomaren Übergang benutzt.

Dazu wurde der Laser in seiner Frequenz moduliert und mit einem Lock-In-Verstärker ein

Fehlersignal erzeugt. Die Stabilisierung sorgt so bei gewählten Parametern für Differenzfrequenz und Leistungen der Felder für eine maximale Besetzung des angeregten Zustands. Dabei ist das obere Niveau des Pumpschritts nicht klar spezifiziert, sondern es können auch Überlagerungen von Hyperfeinzuständen angeregt werden. Bei sonst festen Parametern ist die Fluoreszenz bei Anregung von $F' = 3$ um mehr als einen Faktor 10 stärker als bei Besetzung von $F' = 2$, was auf den nahezu geschlossenen Übergang zurückzuführen sein dürfte.

Während dieser Arbeit wurden Atome im $8s\ ^2S_{1/2}$ -Zustand präpariert, wobei für den zweiten Anregungsschritt Licht aus einem Farbstoff-Ringlaser Coherent CR-699 mit Coumarin 6 als Farbstoff verwendet wurde. Geht man davon aus, daß vorwiegend $F' = 3$ im $4p$ -Zustand besetzt ist, kann nur $F = 2$ im $8s$ -Niveau angeregt werden.

Die Strahlung des Farbstofflasers wurde mit einer single-mode Glasfaser an den Vakuumtopf geführt, es standen dort für die Anregung 30 – 40 mW Leistung zur Verfügung. Der

kollimierte Laserstrahl mit einem Durchmesser von 2 mm in der Wechselwirkungszone wurde mittels eines dichroitischen Strahlteilers mit dem Laserstrahl ($\varnothing = 3,6$ mm) für die Anregung des $4p\ ^2P_{3/2}$ -Zustands überlagert. Der Durchmesser des Farbstofflaserstrahls wurde kleiner als der des Diodenlasers gewählt, um im Überlappbereich beider Strahlen eine möglichst große homogene Besetzung des $4p$ -Zustands zu garantieren.

Beide Laserstrahlen wurden gegenläufig zu den Interferometerstrahlen durch den Aufbau (Abbildung 6.2) geführt. Aufgrund der großen Durchmesser der Laserstrahlen zur Manipulation der Atome ist bei Dunkelzonenlängen von $D \approx 0,5$ mm eine relativ homogene Verteilung angeregter Atome in der ganzen Dunkelzone und auch in den Strahlteilern zu erwarten.

Außer mit $8s$ wurden Experimente mit dem $12s\ ^2S_{1/2}$ -Zustand im Kalium-Atom durchgeführt, zu dessen Besetzung ein kommerzieller frequenzverdoppelter Diodenlaser *SHG 100* der Firma tui-Laseroptik mit Ausgangsleistungen bei 480 nm von über 22 mW verwendet wurde. Der Laser wurde direkt an der Vakuumapparatur betrieben, um Leistungsverluste durch die Faserkopplung zu vermeiden. Die Überlagerung mit dem Laserfeld für die erste Stufe wurde wie oben beschrieben eingestellt, das elliptische Strahlprofil von ca. 1×3 mm wurde mit seiner großen Halbachse senkrecht zur Ebene Atomstrahl-Laserstrahl orientiert, um eine gute Ausleuchtung des Atomstrahls zu garantieren.

Sowohl der Ringlaser als auch der frequenzverdoppelte Diodenlaser wurden in ihrer Frequenz mit einem Aufbau stabilisiert, der Abbildung 4.4 vergleichbar ist. Als Laser zur Fixierung des Modenkamms der Koppelcavity diente ein kommerzieller Jod-stabilisierter He-Ne-Laser der Firma Präzisions-Meß-Technik Dr. U. Hoppe. Die Strahlung des He-Ne-Lasers wurde zum Abstimmen des Modenkamms mit einem akusto-optischen Modulator verschoben. Anstelle der Pound-Drever-Hall-Methode wurde eine niederfrequente Modulation des Fabry-Pérot-Interferometers und Lock-In-Stabilisierung verwendet.

7.2.2 Aufzeichnung der Spektren

Für alle Experimente zur Beobachtung von Stößen wurde die R(25)-Linie der $27 - 0$ Bande ($b(0^+) \leftarrow X$) verwendet. Es wurde die höchstfrequente Hyperfeinkomponente beobachtet. Die benachbarten Übergänge wurden durch optisches Pumpen ausgeblendet (Kapitel 6.4.1 und Abbildung 6.8). Der Fluoreszenznachweis wurde ohne eine der anderen Modulationstechniken aus Kapitel 6.4 durchgeführt, um in möglichst kurzer Zeit Spektren mit gutem Signal-zu-Rausch-Verhältnis aufzeichnen zu können. Auf kurze Registrierungszeiten wurde Wert gelegt, damit stoßinduzierte Phasenverschiebungen nicht durch Driften der Apparatur ausgewaschen werden.

Apparative Driften können außerdem eine Phasenverschiebung zwischen den verschiedenen Interferogrammen vortäuschen. Um eine unterschiedliche Beeinflussung beider Interferogramme durch Driften auszuschließen, ist eine möglichst simultane Aufzeichnung beider Spektren wünschenswert.

Im ersten Ansatz wurden bei jeder zweiten Aufnahme einer Meßreihe die Stoßbedingungen geändert. Das heißt, daß mindestens einer der Laserstrahlen zur Anregung der Atome für die Dauer einer Meßreihe an- bzw. ausgeschaltet wurde. So entstehen zwei Klassen von Spektren, die abwechselnd aufgezeichnet werden. Im allgemeinen wurde der Laser zur Anregung vom Niveau $4p \ ^2P_{3/2}$ in den höher gelegenen S-Zustand geschaltet. Die Registrierungen beider Klassen wurden für sich gemittelt, was aufgrund der meßrechnergestützten Frequenzabstimmung des Lasers für das Interferometer und der eindeutigen Zuordnung von Frequenzen zu einzelnen Meßpunkten einfach durch direkte Mittelung zusammengehöriger Meßpunkte möglich ist.

Ein Scan dauerte bei 1000 Meßpunkten (Schrittweite 10 kHz) und einer Registrierungszeitkonstante von 80 ms folglich 80 s. Damit eine Phasenverschiebung nicht durch Frequenzdriften des Laserspektrometers vorgetäuscht wird, darf diese während der Registrierung zweier aufeinanderfolgender Messungen nur eine scheinbare Phasendifferenz erzeugen, die kleiner als der zu beobachtende Effekt ist. Langsamere Driften beeinflussen beide Klassen von Scans dann in gleicher Weise und sollten keine künstliche Phasenverschiebung erzeugen. Mit der Messungen der R(0)-Linie bei großen Dunkelzonenlängen (Abbildung 6.7) wurde versucht, die Frequenzdrift des Laserspektrometers abzuschätzen.

Die Registrierungen des gesamten Spektrums der R(0)-Linie benötigte ca. 20 min und zeigt Strukturen mit einer vollen Halbwertsbreite von 160 kHz. Der Frequenzabstand einzelner Meßpunkte betrug 10 kHz, jede einzelne Registrierung dauerte etwas über eine Minute. In jeder dieser Registrierungen wurde die Position des Maximums einer bestimmten Oszillation bestimmt, was mit einer Unsicherheit von ± 20 kHz möglich war. Der Nummer des Meßpunkts wurde eine Frequenzverstimmung zugewiesen, die bis auf eine Konstante der Hochfrequenz zur Abstimmung der Laserfrequenz entspricht (vgl. Kapitel 4.3). Driftet das Laserspektrometer in der Frequenz, ändert sich der Wert der Hochfrequenz zu einem festen Punkt im Spektrum. Die bestimmten Frequenzen sind in Abbildung 7.3 dargestellt. Eine lineare Anpassung der Meßpunkte unter Berücksichtigung der Unsicherheiten deutet darauf hin, daß die Frequenzdrift des Spektrometers nur im Bereich von 0,4 kHz pro Minute liegt. Eine genauere Bestimmung der Frequenzstabilität mit anderen Mitteln konnte nicht vorgenommen werden, da keine Referenz zur Verfügung stand.

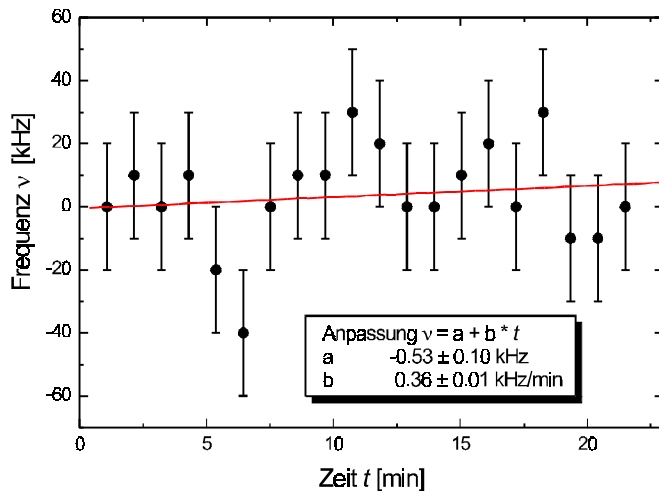


Abbildung 7.3: Frequenz ν des Maximums aufeinanderfolgender Registrierungen der R(0)-Linie (Abbildung 6.7). Die Werte stellen ein Indiz für die Frequenzdrift des Laserspektrometers dar.

Bei den kurzen Zeiten für eine Registrierung für die Stoßuntersuchungen liegt die Frequenzverschiebung aufeinanderfolgender Scans nach dieser Abschätzung wahrscheinlich unter 1 kHz. Interpretiert man diese Drift als Phasenverschiebung bei einer Interferenz mit einer Periodizität von ca. 1 MHz ($D \approx 0,5$ mm), erhält man vorge-täuschte Werte für $\Delta\phi$ von ca. 6 mrad. Größere Phasendifferenzen sollten folglich seitens des Spektrometers meßbar sein.

Bei der zweiten Registrierungsme-thode wurde schneller zwischen beiden

Klassen von Spektren umgeschaltet, indem der Laserstrahl für den zweiten Anregungsschritt mit ca. 900 Hz unterbrochen wurde. Der Einfluß von Frequenzdriften auf die Bestimmung der Phasenverschiebungen sollte bei so schnellem Wechsel der Stoßsituationen völlig zu vernachlässigen sein.

Für den Nachweis wurde das Signal des Photomultipliers mit einem schnellen Verstärker (EG&G Modell 181) verstärkt und mit einem elektronischen Schalter synchron mit der Unterbrecherfrequenz zwischen zwei Kanälen der Meßdatenerfassung umgeschaltet. In jedem Kanal ist eine Zeitkonstante von 300 ms integriert, die zur Glättung der Signale dient. Spektren wurden in diesem Aufbau mit einer Registrierungszeitkonstante von 150 ms aufgenommen.

7.2.3 Auswertung der Interferenzsignale

Zur Bestimmung der Phase des Interferogramms stehen nach der Mittelung von einigen (10 – 16) einzelnen Scans je ein Spektrum wie in Abbildung 6.9 A zur Verfügung. Der inkohärente Untergrund der Interferenz wurde wieder mit einem digitalen Hochpaßfilter entfernt (Kapitel 6.3). An die so separierten Oszillationen wurde zur Bestimmung der Phase ϕ ein analytischer Ausdruck der Form

$$f(\nu) = U + A \cdot \exp\left(-\frac{(\nu - \nu_0)^2}{\nu_w^2}\right) \cdot \sin(2\pi P(\nu - \nu_0) + \phi) \quad (7.1)$$

angepaßt, wozu ein zu dem für die Hyperfeinauswertung in Kapitel 5.4.1 vergleichbares Programm verwendet wurde (*ramseyfringe*). Angepaßt wurden die Parameter für einen konstanten Untergrund U , die Zentralfrequenz der Interferenz ν_0 , die Breite der Einhüllenden der Interferenz ν_w , sowie deren Amplitude A , die Periodizität P der Oszillationen und die Phase ϕ .

In den experimentellen Spektren wird trotz des optischen Pumpens noch ein leicht schräger Untergrund beobachtet, der möglicherweise einen Einfluß auf die aus diesen Spektren bestimmte Phase haben könnte. Deshalb wurde zunächst der Einfluß eines zusätzlichen schiefen, aber geradlinigen Untergrunds anhand simulierter Spektren wie in Abbildung 2.6 auf das Auswertungsverfahren untersucht. Es stellte sich heraus, daß sich bei realistischen Steigungen des Untergrunds Differenzen in der bestimmten Phase ϕ von maximal 5 mrad gegenüber denen in der Simulation vorgegebenen Größen ergaben. Da die zu vergleichenden Spektren aber im wesentlichen die gleiche Form haben, kann eine Fehlerquelle durch mit digitalem Filtern abgezogenen schiefen Untergrund ausgeschlossen werden.

Zur Bestimmung realistischer Unsicherheiten der Fitparameter muß die Fehlerquadratsumme auf die experimentelle Unsicherheit der Meßwerte normiert sein (vgl. Kapitel 5.3). Als Maß für die Unsicherheit der gemessenen Spektren wurde das Rauschen der Messung angenommen. Um dieses zu bestimmen, wird zunächst eine Anpassung mit dem Ausdruck (7.1) durchgeführt. Mit dieser Anpassung werden die Residuen ($\text{obs} - \text{cal}$) bestimmt. War die Anpassung des Spektrums erfolgreich, zeigen die Residuen eine statistische Verteilung. Ihre Standardabweichung wurde als experimentelle Unsicherheit benutzt.

Dieser etwas umständliche Weg zur Normierung der Fehlerquadratsumme wurde beschritten, weil nur Spektren begrenzt auf einzelne Interferenzen aufgenommen wurden, um möglichst kurze Registrierungszeiten zu erreichen. Es tritt im aufgezeichneten Spektrum deshalb kein längerer, flacher Abschnitt auf, der eine direkte Bestimmung des Rauschens zuließe.

Die Zentralfrequenz der Interferenz ν_0 ist nur über die Form der Einhüllenden der Interferenz bestimmt, was keine sehr genaue Festlegung zuläßt. Die Phase ϕ weist als eigentlich interessierende Größe eine hohe Korrelation mit ν_0 auf, was eine genaue Bestimmung von ϕ behindert, da sich durch die Korrelation beider Parameter die Unsicherheit des einen auf den anderen überträgt. Aus den Vorbetrachtungen in Kapitel 3.3 und 7.1 geht aber hervor, daß durch Stöße unter den beschriebenen experimentellen Bedingungen nur die Parameter P , A und ϕ beeinflußt werden. Die übrigen Fitparameter können also als fest betrachtet werden, müssen aber bekannt sein.

Für die Bestimmung von Phasendifferenzen zwischen zwei Interferogrammen wurde deshalb zunächst eine Anpassung von (7.1) mit allen Parametern durchgeführt. Um zu realistischen Fehlerangaben für P , A und ϕ zu kommen, wurde eine zweite Anpassung der gleichen Messung durchgeführt, wobei nur diese drei Parameter freigegeben wurden, die anderen Parameter wurden aus der ersten Anpassung übernommen. Die Anpassung des zweiten Interferogramms wurde mit festen Werten für U , ν_0 und ν_w durchgeführt, während die übrigen Parameter frei waren.

Um auszuschließen, daß die Wahl der Linienform die Ergebnisse des Fits wesentlich bestimmt, wurde auch als Form der Einhüllenden eine Lorentz-Kurve erprobt. Die gemessenen Spektren wurden damit neu ausgewertet. Es konnte gezeigt werden, daß die Ergebnisse der Phasendifferenzen zwischen zwei Messungen innerhalb der Unsicherheiten des Fits sehr gut übereinstimmen. Das Interferenzsignal ließ sich aber mit einer Gauß-Kurve geringfügig besser anpassen, weswegen diese für die Auswertungen verwendet wurde.

7.3 Ergebnisse

7.3.1 Anregung des 8s-Zustands

Mit dem im vorherigen Unterkapitel beschriebenen Anregungsschema wurden Atome im 8s-Zustand präpariert. Die Anregung führt zu einer erheblichen Fluoreszenz in den beiden Dunkelzonen D des Interferometers. Überraschend war allerdings, daß sich diese Fluoreszenz aus dem 8s-Zustand nicht effektiv mit der verwendeten Filterkombination aus einem Farbglas- und Interferenzfilter (Kapitel 4.2) unterdrücken ließ, deren Transmission jeweils über 100 nm langwelliger als die Anregungsfrequenzen ist. Offensichtlich werden durch langwellige Fluoreszenz im Beobachtungsfenster des Photomultipliers andere Niveaus besetzt als die in den Anregungsschritten verwendeten. Eine Reduktion des Untergrunds durch diese Fluoreszenz konnte durch zusätzliche Verwendung eines dielektrischen Kurzpaßfilters mit einer Kante bei ca. 910 nm erreicht werden. Trotzdem verbleibt ein Untergrund von ca. vierfacher Stärke des Fluoreszenzsignals der Moleküle, der wegen Intensitätsschwankungen der Farbstofflaserstrahlung und damit verbundener Fluktuation der Fluoreszenzstärke zu erheblichem zusätzlichem Rauschen in der Registrierung führt.

Um auszuschließen, daß der Untergrund durch die atomare Fluoreszenz eine Phasenverschiebung vortäuscht, wurden auch Messungen durchgeführt, bei denen nur Atome in der ersten der Dunkelzonen des Interferometers angeregt wurden. Es wird dann keine atomare Fluoreszenz in der 1 cm abwärts im Strahl liegenden Detektionszone beobachtet. Messungen

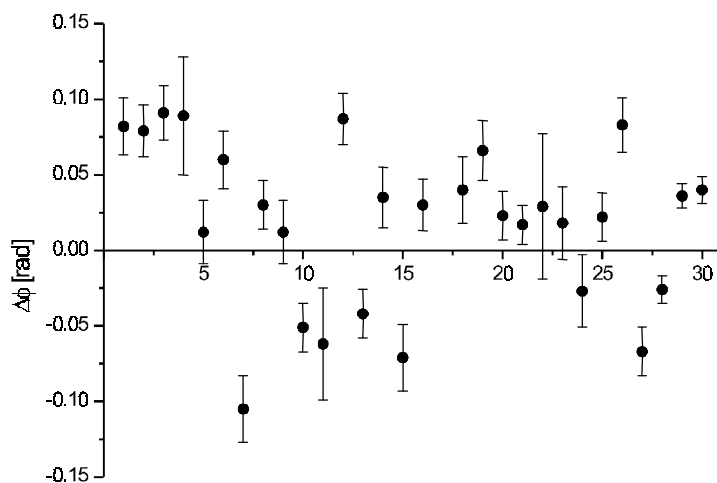


Abbildung 7.4: Gemessene Phasendifferenzen bei Anregung des 8s-Zustands, Details im Text

wurden außerdem mit beiden im vorherigen Unterkapitel beschriebenen Registrierungsmethoden aufgenommen und ausgewertet.

Die Ergebnisse aller so ausgewerteten Phasenverschiebungen $\Delta\phi$ sind in Abbildung 7.4 zusammengestellt. Als Unsicherheit der bestimmten Phasendifferenzen ist die durch das Programm zur numerischen Anpassung bestimmte Unsicherheit angegeben. Unterschiedliche Ergebnisse aufgrund

der verschiedenen Aufzeichnungsmethoden oder Anregungsgeometrien wurden nicht beobachtet, weshalb diese in Abbildung 7.4 nicht getrennt ausgewiesen wurden.

Nach den theoretischen Überlegungen in Kapitel 3 wäre mit einem einheitlichen Vorzeichen der bestimmten Phasendifferenz unter vergleichbaren experimentellen Bedingungen zu rechnen gewesen, wogegen die Werte in Abbildung 7.4 zwar dem Betrag nach ähnlich sind, aber beide Vorzeichen aufweisen.

Eine schnelle Änderung der Stoßbedingungen von Messung zu Messung durch Veränderung der Geschwindigkeitsverteilung im Molekülstrahl ist auszuschließen, da sich diese auch in einer veränderten Periode und Breite des Interferenzsignals bemerkbar gemacht hätte, was aber nicht der Fall war. Kleine Änderungen in den Geschwindigkeiten sollten wegen der Summation über viele Geschwindigkeitsklassen ebenfalls nicht zu einem Vorzeichenwechsel führen (vgl. Abbildung 3.3).

Durch Beschränkungen des erlaubten Parameterbereichs bei der Anpassung der Phase wurde überprüft, ob der Fit überhaupt sensitiv auf das Vorzeichen der Phasenverschiebung ist. Mit dieser Vorgehensweise konnte keine befriedigende Anpassung der Spektren erreicht werden, der Parameter für die Phase lief grundsätzlich an die Grenze des vorgegebenen Bereichs, die zum ursprünglichen Vorzeichen der Phasendifferenz führte.

Exemplarisch wurde an einigen Messungen die bestimmte Phasendifferenz mit einer Auswertung ohne Annahmen über die Form des Signals überprüft. Dazu wurde die Differenz von Originalregistrierungen mit entferntem Untergrund gebildet. Weisen die Spektren eine Phasenverschiebung auf, wird in der Differenz beider Spuren ebenfalls die Oszillationsfrequenz

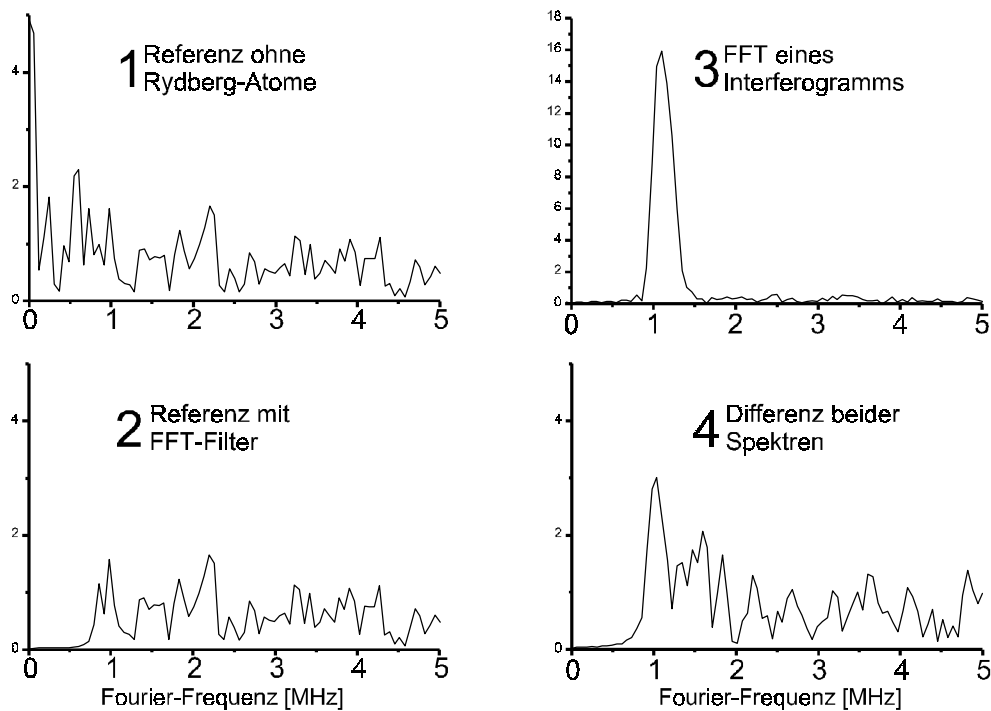


Abbildung 7.5: Fourier-transformierte Differenzen von Interferogrammen, Details im Text

aufzutreten. Zum Auffinden bestimmter Frequenzkomponenten wurde eine Fourier-Transformation durchgeführt.

In Abbildung 7.5 sind vier verschiedene Fourier-transformierte Spektren zu sehen. Teil 1 und 2 dienen der Überprüfung der Aussagekraft dieser Analysemethode. Bei Teil 1 handelt es sich um Fourier-Transformationen von Differenzen zweier Spektren, die aus einer Registrierung mit gleichen Stoßbedingungen gewonnen wurden. Diese sollten keine Phasenverschiebung aufweisen, sondern nur den Rauschuntergrund festlegen. Für Teil 2 wurde zusätzlich der FFT-Hochpaßfilter angewandt, um die Einhüllende der Linie abzuziehen und vergleichbare Bedingungen mit der Differenzbildung zweier Interferogramme zu unterschiedlichen Stoßbedingungen zu erzeugen. Das Frequenzspektrum ist oberhalb der cut-off Frequenz des Filters in beiden Bildern gleich und zeigt keine auffälligen Spitzen, die auf eine Phasenverschiebung zwischen den Referenzspektren hindeuten würde.

Der Teil 3 dient zur Bestimmung der Oszillationsfrequenz des Interferogramms, sowie der Amplitude der Fourier-Transformierten bei dieser Frequenz.

Das Ergebnis der Transformation der Differenz zweier Spektren zu unterschiedlichen Stoßbedingungen ist in Teil 4 abgebildet. Bei der Oszillationsfrequenz des Interferogramms (Teil 3) ist eine größere Amplitude zu erkennen, als aus dem Rauschuntergrund (Teil 2) zu erwarten gewesen wäre. Vergleicht man die Amplituden der Spitzen in 3 und 4, kann eine Phasenverschiebung von 70 bis 115 mrad abgeschätzt werden, was in sehr guter Übereinstimmung mit dem Ergebnis aus dem Linienformfit von 80 ± 20 mrad ist.

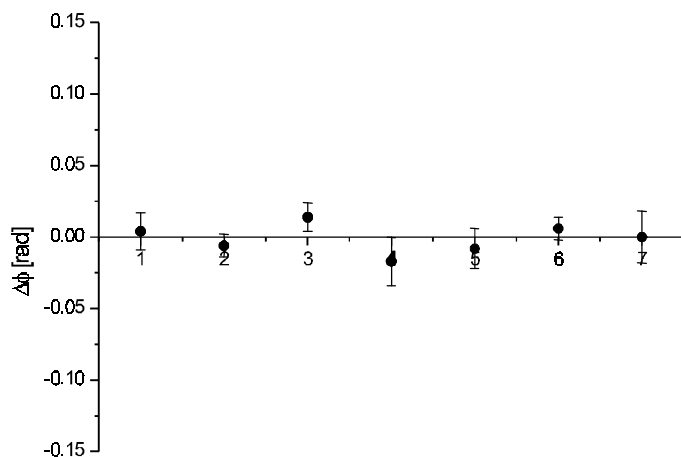


Abbildung 7.6: Gemessene Phasendifferenzen ohne Anregung von Kalium-Atomen

Die Analyse über die Fourier-Transformation ist allerdings nicht sensitiv auf das Vorzeichen der Phasenverschiebung, weswegen sie nur eine grundsätzliche Bestätigung des Effekts liefern konnte. Die Fourier-Transformierten in Abbildung 7.5 Teil 1 und 2 zeigen außerdem, daß Driften der Apparatur die Phasenverschiebungen nicht vortäuschen, da sonst auch in diesen Spektren Frequenzkomponenten bei der Interfe-

renzperiode zu beobachten wären. Allerdings wurden Fourier-transformierte Spektren gefunden, die keine deutliche Spitze bei der Oszillationsfrequenz aufweisen, obwohl der Linienfit eine Phasenverschiebung ergeben hatte. Solche Ergebnisse sind nicht sehr überraschend, da bei den Fits zusätzliche Informationen über das Profil des Spektrums zur Auswertung benutzt wurden, wodurch die Empfindlichkeit der Auswertung steigen sollte.

Um den Einfluß von Driften als Ursache für die Phasenverschiebung auch auf andere Weise auszuschließen, wurden mehrmals Referenzspektren aufgezeichnet. Zur Registrierung dieser Spektren wurde der zeitliche Ablauf der Messung wie üblich gewählt, nur daß die Stoßeinflüsse nicht variiert wurden. Die so gemessenen Phasenverschiebungen sind in Abbildung 7.6 zusammengefaßt. Entweder wurden die Laser zur Anregung der Atome während der Messung völlig abgeschaltet oder der Diodenlaser für den ersten Anregungsschritt weit von der Resonanz verstimmt, um auch eine Phasenverschiebung aufgrund des resonanten Felds des Farbstofflasers (light shift) als Ursache für eine Phasenverschiebung anstelle der Besetzung des $8s$ -Zustands ausschließen zu können. Alle Messungen sind innerhalb der Fehler in guter Übereinstimmung mit einer verschwindenden Phasenverschiebung zwischen beiden Referenzspektren. Die Unsicherheit der Meßwerte ist wegen der nicht vorhandenen atomaren Fluoreszenz und des damit kleineren Rauschens geringer als in Abbildung 7.4.

Die Standardabweichung der Meßpunkte in Abbildung 7.6 beträgt ca. 10 mrad. Ein Vergleich der Fehler der Meßwerte in Abbildung 7.4 und Abbildung 7.6 zeigt, daß sich die Unsicherheit durch das zusätzliche Rauschen aufgrund der atomaren Fluoreszenz ungefähr verdoppelt. Eine verschwindende Phasenverschiebung wäre im statistischen Sinne bei den Messungen mit Besetzung des $8s$ -Zustands mit Phasenverschiebungen von ± 20 mrad (1σ) bei $2/3$

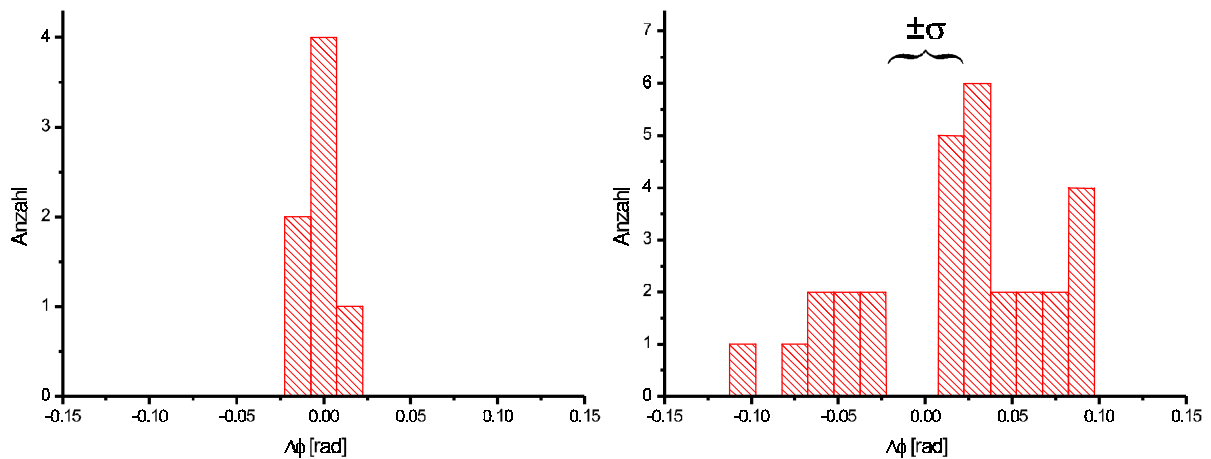


Abbildung 7.7: Histogramme der Meßpunkte ohne (links, aus Abbildung 7.6) und mit Besetzung des 8s-Zustands (rechts, aus Abbildung 7.4). Die Breite der Balken beträgt 15 mrad.

aller Meßwerte verträglich. In einem Intervall von ± 40 mrad (2σ) müßten sich sogar 95% aller Meßwerte befinden.

Tatsächlich befinden sich aber weniger als 14% der Meßpunkte im 1σ -Intervall, ca. 55% der gemessenen Phasendifferenzen liegen noch außerhalb des 2σ -Intervalls. In Abbildung 7.7 veranschaulichen zwei Histogramme die Häufigkeitsverteilung der Meßergebnisse mit und ohne atomare Anregung. Man erkennt auch, daß vorwiegend Phasendifferenzen mit positivem Vorzeichen gemessen wurden (mehr als 72% der Meßpunkte).

In diesem Sinne ist es wahrscheinlich, daß eine stoßinduzierte Phasenverschiebung mit dem Ramsey-Bordé-Interferometer beobachtet wurde, auch wenn die Interpretation der unterschiedlichen Vorzeichen der Phasendifferenzen nicht klar ist.

Möglicherweise wird der Stoßprozeß durch die Anwesenheit des relativ starken Laserfelds zur Anregung des 8s-Zustands und den damit verbundenen dynamischen Stark-Effekt nicht richtig durch die Besetzung ungestörter Atomniveaus beschrieben, wie bisher angenommen wurde. Mit relativen Linienstärken für die Übergänge $4s - 4p$ und $4p - 8s$ aus [90] und der Lebensdauer des 4p-Zustands von ca. 26 ns [91] kann die Rabifrequenz Ω für den oberen Anregungsschritt im Zentrum des Laserstrahls zu über 200 MHz abgeschätzt werden. Rabifrequenzen dieser Größe führen schon zu einer beobachtbaren AC-Stark-Aufspaltung der Niveaus, wie durch Proben eines der Zustände mit einem schwachen Laserfeld beobachtet werden kann (Abbildung 7.8). Durch die Anwesenheit des starken Laserfelds werden also zwei um die Rabifrequenz aufgespaltene Zustände erzeugt, die kohärente Überlagerungen aus 4p- und 8s-Niveau sind. Das inhomogene Intensitätsprofil des Laserstrahls in der Beobachtungszone wäscht die Aufspaltung aus, sodaß keine getrennten AC-Stark-Komponenten beobachtet werden konnten, sondern nur eine Schulter bzw. Verbreiterung. Die Asymmetrie der

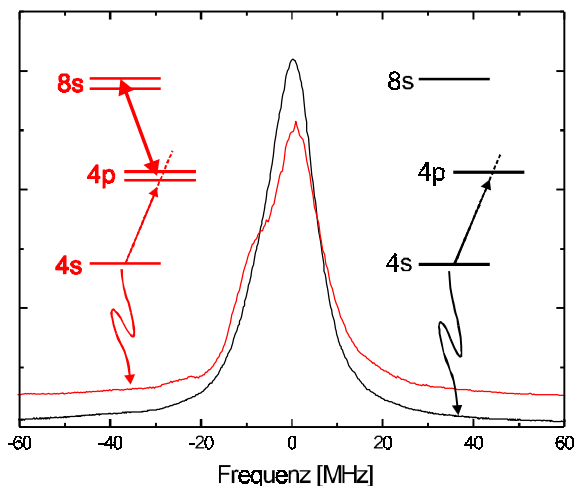


Abbildung 7.8: Übergang $F'' = 2 \rightarrow F' = 3$ der Kalium D_2 -Linie mit und ohne Ankopplung des $8s$ -Zustands durch ein starkes Laserfeld und damit verbundene AC-Stark-Aufspaltung des $4p$ -Niveaus. Die Übergänge in $F' = 1,2$ im niederfrequenten Fuß der Linie sind sehr schwach, da sie nicht geschlossen sind und schnell Verluste in $F'' = 1$ auftreten.

Linie mit Ankopplung des $8s$ -Niveaus in Abbildung 7.8 zeigt, daß die Frequenz des Farbstofflasers nicht resonant zum Übergang $8s - 4p$ eingestellt war.

Stöße finden also nicht zwischen dem K_2 -Molekül und einem K-Atom im $8s$ -Zustand statt, sondern mit einer Überlagerung aus zwei unterschiedlichen elektronischen Atomzuständen. Die Stoßsituation wird des weiteren dadurch verkompliziert, daß mit dem Diodenlaser im ersten Anregungsschritt nicht selektiv eines der AC-Stark-Niveaus besetzt werden kann, sondern durch deren Überlagerung wahrscheinlich beide angeregt werden (Abbildung 7.8). Durch kleine Frequenzdriften des Farbstofflasers gegen die Resonanz des Übergangs $4p - 8s$ oder schlechte Reproduzierbarkeit einer Verstimmung durch die Verbreiterung der Übergänge ändern sich die relativen Amplituden beider Niveaus an den Überlagerungszuständen. Dies kann durch die Stabilisierung des Diodenlasers auf die maximale Fluoreszenz aus dem $4p$ -Zustand zu unterschiedlichen Superpositionen $4p - 8s$ führen, sodaß sich die Stoßbedingungen möglicherweise verändern können. Experimentelle Schritte zur Verbesserung der Reproduzierbarkeit oder Vereinfachung der an den Stoßprozessen beteiligten Zustände werden in Kapitel 8 diskutiert.

7.3.2 Anregung des $12s$ -Zustands

Eine bessere Aussage über die Möglichkeit, Stöße mit dem Interferometer zu beobachten, sollte durch Vergrößerung des Effekts möglich sein. Deshalb wurde die Anregung von Atomen in den $12s$ -Zustand untersucht, der wegen seiner größeren Polarisierbarkeit und des größeren geometrischen Stoßquerschnitts gegenüber dem $8s$ -Niveau stärkere Phasenverschiebungen verspricht.

Die relative Linienstärke des Anregungsübergangs ist nach [90] auf ein Fünftel derjenigen der D -Linie abgefallen. Aus der Linienstärke kann eine obere Grenze der Lebensdauer des Niveaus abgeschätzt werden. Man findet, daß die Lebensdauer nicht ausreichend ist, damit die Atome vor dem Interferometer im $12s$ -Zustand präpariert werden können und eine signi-

fikante Besetzung die Flugstrecke zumindest durch die erste Dunkelzone ohne Zerfall überlebt.

Der Zustand konnte durch die Strahlung des frequenzverdoppelten Diodenlasers besetzt werden, es traten allerdings zwei gravierende Probleme auf, die interferometrische Messungen verhinderten.

Erstens nimmt die Zustandsdichte im Atom mit wachsender Hauptquantenzahl zu und erhöht die Wahrscheinlichkeit für erlaubte Übergänge im nahinfraroten Spektralbereich, der auch zur Beobachtung der Molekülfluoreszenz genutzt wird. Die schon bei Anregung des 8s-Niveaus beobachtete atomare Fluoreszenz stieg bei Besetzung des 12s-Zustands in beiden Dunkelzonen D des Interferometers so stark an, daß keine Moleküllinien mehr auf dem Untergrund beobachtbar waren.

Deshalb wurde die Anregung von Atomen nur in der ersten Dunkelzone des Interferometers erprobt, was bei den Experimenten mit dem 8s-Zustand zu einer effektiven Unterdrückung der atomaren Fluoreszenz geführt hatte. Im Falle der 12s-Niveaus stellte sich als zweites Problem allerdings heraus, daß offensichtlich über Kaskaden relativ langlebige Niveaus besetzt werden, die noch nach ungefähr $10 \mu\text{s}$ Flugzeit in der Beobachtungszone nachgewiesen werden. Die Fluoreszenz dieser Atome ist noch immer 15- bis 20-mal stärker als das molekulare Signal. Daher war es bei dem erreichten Signal-zu-Rausch-Verhältnis nicht mehr möglich, die Interferenz nachzuweisen.

Die Problematik kann in späteren Experimenten durch Nachweis des komplementären Interferometerausgangs im Grundzustand durch Anregung in einem anderen Spektralbereich umgangen werden. Hierzu würde sich beispielsweise der $B^1\Pi_u$ -Zustand eignen, der bei ca. 640 nm angeregt werden kann. Dazu ist ein zusätzlicher Laser mit Frequenzstabilisierung notwendig. Außerdem werden wegen der kleinen Hyperfeinaufspaltung des B-Zustands alle Hyperfeinniveaus des Grundzustands nachgewiesen und nicht nur die zur Interferometrie verwendete Komponente, was zu weiterem Untergrund führt. Das Problem ist aber möglicherweise nicht so gravierend, da aufgrund des für die Detektion günstigeren Wellenlängenbereichs der Fluoreszenz mit einem besseren Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu rechnen ist.

Durch Aufbau einer weiteren Nachweiszone strahlabwärts oder durch Verschieben des Interferometers strahlaufrwärts und Nachweis der Grundzustandsbesetzung auf dem Interferometerübergang könnte der Untergrund durch die übrigen Hyperfeinniveaus vermieden werden.

Beide Ansätze konnten wegen der nötigen Umbauten bzw. Erweiterungen der Apparatur in dieser Arbeit nicht mehr umgesetzt werden.

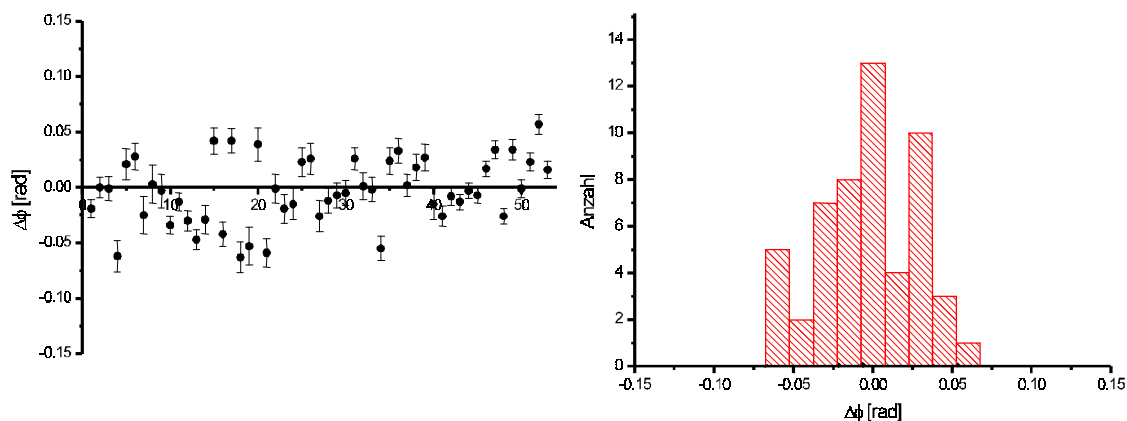


Abbildung 7.9: Gemessene Phasendifferenzen (links) und Häufigkeit einzelner Meßergebnisse (rechts, Säulenbreite 15 mrad) bei Anregung des $4p\ ^2P_{3/2}$ -Zustands.

7.3.3 Anregung des $4p$ -Zustands

Da die Anregung der Kalium-Atome in den $8s$ -Zustand zu einer verhältnismäßig komplizierten Stoßsituation aufgrund der involvierten dressed-states führt, wurde die experimentelle Situation dahingehend vereinfacht, daß nur der $4p\ ^2P_{3/2}$ -Zustand besetzt wurde. Die Rabi-Frequenzen für die Anregung waren mit $\Omega \approx 70$ MHz vergleichsweise niedrig. Der Laser wurde in seiner Frequenz sowohl auf die maximale Fluoreszenz am Strahl stabilisiert, als auch separat auf das Koppel-Fabry-Pérot-Interferometer mit He-Ne-Laser (vgl. Kapitel 7.2.1), um definiert das Niveau $F' = 3$ mit der Pumpstrahlung zu besetzen und den Rückpumper auf einen der Übergänge $F' = 1,2$ abstimmen zu können. Die gemessenen Phasendifferenzen zeigten keine erkennbare Abhängigkeit von den variierten Parametern. Die Werte sowie deren Verteilung sind in Abbildung 7.9 zusammengefaßt.

Zwar streuen die Meßwerte erheblich weiter um die Phasenverschiebung $\Delta\phi = 0$, als es nach den Referenzmessungen für einen verschwindenden Einfluß zu erwarten wäre (vgl. Abbildung 7.7 links), die Verteilung der Meßergebnisse entspricht aber eher einer statistischen Streuung um Null, als es bei den Ergebnissen bei Besetzung des $8s$ -Niveaus der Fall war (Abbildung 7.7 rechts). Die Verteilung der Meßpunkte zeigt auch kein bevorzugtes Vorzeichen, wie es bei Besetzung des $8s$ -Zustands beobachtet wurde.

Sollte sich hinter der breiten Streuung ein realer Einfluß verbergen, ist er mindestens um einen Faktor zwei bis drei kleiner als beim $8s$ -Niveau. Daß der Einfluß kleiner als bei dem höher angeregten Zustand wäre, ist plausibel. Bei den vorliegenden Meßergebnissen kann aber nicht von einer wahrscheinlichen Beobachtung von Phasenverschiebungen durch Stöße mit Atomen im $4p$ -Zustand gesprochen werden.

8 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein Materiewelleninterferometer mit K_2 -Molekülen aufgebaut und charakterisiert. Schritte zur Realisation waren der Aufbau einer geeigneten Molekülstrahlapparatur und eines Diodenlaserspektrometers, sowie die eingehende Analyse der gekoppelten Zustände $A \ ^1\Sigma_u^+$ und $b \ ^3\Pi_u$ im K_2 -Molekül. Abschließend wurden Experimente zur Beobachtung von Stößen zwischen K und K_2 mit dem Interferometer vorgestellt.

Experimenteller Aufbau

Bei der Molekülstrahlapparatur handelt es sich um einen konventionellen Aufbau, der den Einsatz von Trägergasen zur Kühlung der inneren Freiheitsgrade der Moleküle erlaubt. Durch die verwendete differentielle Pumpstufe werden im Bereich des Interferometers auch bei relativ schlechtem Vakuum im Ofenbereich Drücke besser als 10^{-8} mbar erreicht. Der Einfluß von Stößen der Moleküle im Interferometer mit dem Hintergrundgas kann demzufolge vernachlässigt werden.

Für das Lasersystem konnten in der Diplomarbeit von M. Frank [52] entwickelte Diodenlaser in Littrow-Konfiguration mit Pound-Drever-Hall-Stabilisierung auf externe Resonatoren zur Verbesserung der Frequenzstabilität verwendet werden. Diese zeigen eine Linienbreite von 28 kHz auf Zeitskalen von 2 s. Die Langzeitstabilität des Aufbaus wird durch Stabilisierung eines Diodenlasers auf eine atomare Resonanz und Fixierung der Differenzfrequenz zu dem Laser für die Interferometrie mit einem Koppelinterferometer erreicht.

Spektroskopie von A- und b-Zustand

Bei der Materiewelleninterferometrie mit einem Ramsey-Bordé-Aufbau wird die Anregung eines langlebigen, elektronisch angeregten Zustands für den Materiewellenstrahlteiler benutzt. Geeignete Niveaus wurden im $b \ ^3\Pi_u(0^+)$ -Zustand vermutet und spektroskopiert. Die Lebensdauer dieser Komponente wird durch Beimischung aus dem Zustand $A \ ^1\Sigma_u^+$ bestimmt, die den Zerfall in den elektronischen Grundzustand $X \ ^1\Sigma_g^+$ des Moleküls ermöglicht.

Eine Entstörungsanalyse der während dieser Arbeit spektroskopierten Niveaus und Daten anderer Autoren führte neben der Identifikation der Niveaus des $b^3\Pi_u(0^+)$ -Zustands mit Lebensdauern um $1\ \mu\text{s}$ zu einem erweiterten Verständnis von gestörten Zuständen.

Der gängige und zunächst beschränkte Weg der lokalen Entstörung berücksichtigt die Kopplung energetisch dicht benachbarter Niveaus, die Ankopplung an weit entfernte Niveaus wird als klein betrachtet und vernachlässigt. Ein auf diesem Ansatz basierender Fit von Dunham-Parametern führte nicht zu einer befriedigenden Beschreibung der Energien der spektroskopierten Niveaus, sondern zeigte systematische Abweichungen bis zu $0,1\ \text{cm}^{-1}$.

Durch die erstmalige Verwendung der Fourier-Grid-Methode, die in der Arbeitsgruppe von F. Masnou-Seeuws am Laboratoire Aimé Cotton in Orsay entwickelt wurde, in einem numerischen Fitalgorithmus wurde ein neuer Weg beschritten. Diese behandelt die Kopplungen in der Basis der elektronischen Zustände und enthält keine prinzipiellen Beschränkungen in der energetischen Reichweite der Wechselwirkungen. Berechnungen zeigen, daß auch die Ankopplung von $1000\ \text{cm}^{-1}$ entfernten Niveaus zu einer nicht vernachlässigbaren Beeinflussung von Niveaus führen kann, und stellen so die Anwendbarkeit von lokalen Entstörungsverfahren bei sehr präzisen Meßdaten in Frage.

Die Beschreibung mit der Fourier-Grid-Methode eröffnet eine vollständigere Beschreibung gestörter Zustände, als es mit dem bisher üblichen lokalen Ansatz möglich war. Durchgeführte Potentialfits führten zu einer deutlich verbesserten Beschreibung der Meßdaten, die inzwischen nahezu innerhalb der experimentellen Unsicherheiten liegt.

Während der spektroskopischen Untersuchung des $b^3\Pi_u(0^+)$ -Zustands wurde auch dessen Hyperfeinstruktur erstmalig beobachtet und am Beispiel der $27 - 0$ Bande analysiert. Die Ergebnisse wurden bereits vorab veröffentlicht [80].

Materiewelleninterferometrie

Die Realisation eines Materiewelleninterferometers vom Ramsey-Bordé-Typ gelang auf verschiedenen Rotationsübergängen der $27 - 0$ Bande des $b^3\Pi_u(0^+) \leftarrow X^1\Sigma_g^+$ Systems. Die beobachteten Spektren zeigen gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Simulationen, der berechnete Kontrast der Interferogramme ist allerdings ca. zwei- bis dreimal so groß wie der tatsächlich beobachtete. Mit dem Aufbau können mit relativ kurzen Integrationszeiten ($\leq 2\ \text{s}$ pro Meßpunkt) Interferogramme mit gutem Signal-zu-Rausch-Verhältnis (um 30) aufgezeichnet werden. Ergebnisse zu diesen Experimenten wurden bereits veröffentlicht [83].

Der Einfluß der vom Rotationsniveau abhängigen Lebensdauer konnte durch Messungen mit großen Dunkelzonenlängen im Interferometer belegt werden. Es wurden dabei Interfero-

gramme mit hoher Frequenzauflösung aufgezeichnet, bei denen die Strukturen volle Halbwertsbreiten von 160 kHz aufweisen.

Da die Interferogramme auf der Einhüllenden des Hyperfeinmultipletts beobachtet werden, ist die Ausgangssituation für die Bestimmung von Parametern wie der Periodizität, Amplitude oder Phase der Interferogramme nicht günstig. Zur Erzeugung einfacherer Linienformprofile und zur Reduktion des Untergrunds wurden mehrere Modulationstechniken erprobt.

Durch optisches Pumpen mit einem zusätzlichen Laserfeld wurde die Grundzustandsbesetzung derjenigen Hyperfeinniveaus, die zu Überlagerungen mit dem beobachteten Interferometerübergang führten, in nicht beobachtete Niveaus umgepumpt. Auf diese Weise konnten symmetrische und relativ freistehende Linien mit Interferenzen präpariert werden. Die Methode eignet sich besonders für die Beobachtung der Randkomponenten eines Hyperfeinmultipletts mit nicht zu kleiner Aufspaltung, da andernfalls eine große Anzahl von Feldern zur Entleerung mehrerer Niveaus benötigt wird.

Vergleichbare Resultate wurden durch Abstimmen der Frequenz des Entleerungslasers auf den zu beobachtenden Übergang und dessen Amplitudenmodulation, sowie Nachweis des Interferometersignals mit einem Lock-In-Verstärker beobachtet. Diese Technik ist in komplizierten Spektren einfacher realisierbar, da nur eine weitere Frequenz notwendig ist. Im vorliegenden Experiment ergaben sich aber Probleme mit zusätzlichem Rauschen bei Verwendung eines Lock-In-Verstärkers, die den Einsatz dieser Technik behinderten.

Außerdem wurde die Modulation der Intensität der Laserstrahlen des Interferometers oder deren Frequenzmodulation mit Lock-In-Nachweis der molekularen Fluoreszenz zur Reduktion des inkohärenten Untergrunds erprobt. Die Verfahren führten jeweils zu einer Verminderung des Hintergrundsignals, wiesen aber auch die Problematik des schlechteren Signal-zu-Rausch-Verhältnisses auf, als nach den Signalen ohne Modulationstechniken erwartet worden war.

Zur routinemäßigen Aufzeichnung von Interferogrammen wurde deshalb auf die Verwendung von Modulationsverfahren verzichtet und nur optisches Pumpen eingesetzt. Das Abziehen des inkohärenten Untergrunds zur Gewinnung des reinen Interferogramms wurde durch digitale Filterung bewerkstelligt.

Experimente zu Stößen im Strahl

Am Ende dieser Arbeit wurden Experimente vorgestellt, die Aufschluß über die interferometrische Beobachtbarkeit von Stößen zwischen Atomen und Molekülen im Strahl geben sollten. Stöße nehmen auf das Interferogramm in verschiedener Weise Einfluß, wobei die im

vorliegenden Experiment am genauesten bestimmbare Meßgröße die Phase des Interferogramms ist. Veränderungen der Phase sollten durch Veränderung der Stoßbedingungen bei Anregung der Atome induziert werden.

Messungen der Phase konnten an Interferogrammen in Anwesenheit von K-Atomen im $8s\ ^2S_{1/2}$ - und $4p\ ^2P_{3/2}$ -Zustand durchgeführt werden. Eine definitive Aussage über die Beobachtung von Stößen konnte in keinem der Fälle gemacht werden. Dies liegt insbesondere daran, daß Phasenverschiebungen mit unterschiedlichen Vorzeichen beobachtet wurden, was nach einfachen theoretischen Überlegungen nicht offensichtlich verständlich ist.

Der Vergleich der gemessenen Phasenverschiebungen mit Referenzmessungen ohne Manipulation des atomaren Ensembles zeigte allerdings zumindest bei der Anregung des $8s$ -Zustands eine auffällige Verteilung, welche statistisch die Beobachtung stoßinduzierter Phasenverschiebungen wahrscheinlich erscheinen läßt.

Aus den Unsicherheiten und der Streuung von Referenzmessungen wurde abgeschätzt, in welchem Meßintervall mit einem verschwindenden Stoßeinfluß verträgliche Phasenverschiebungen bei Anregung des $8s$ -Zustands zu erwarten wären. Ein Großteil der experimentell bestimmten Phasendifferenzen liegt außerhalb dieses Intervalls. Außerdem wurde festgestellt, daß die Atome nicht in einem ungestörten Zustand präpariert werden, sondern durch die Anwesenheit eines starken resonanten Laserfelds in einer Überlagerung aus $8s$ - und $4p$ -Zustand.

Interferometrische Experimente mit angeregten Atomen im $12s$ -Zustand konnten nicht durchgeführt werden, da durch dessen Besetzung eine starke Fluoreszenz im gleichen Spektralbereich wie zur Beobachtung der Moleküle auftritt und deren Signale überdeckt.

Ausblick

Im Vordergrund nachfolgender Experimente mit dem Ramsey-Bordé-Interferometer werden wahrscheinlich Experimente zur Klärung der Aussagen über die Beobachtung von Stößen stehen. Um zu quantitativen Aussagen zu kommen, sollten die in dieser Arbeit erkannten experimentellen Probleme beseitigt werden und mögliche Fehlerquellen eingehender untersucht werden.

Seitens des Laserspektrometers wäre eine Vermessung der tatsächlich erreichten Langzeitstabilität wünschenswert. Als Referenz könnte ein auf I_2 stabilisierter Diodenlaser nach dem Vorbild von [75] dienen. Die Vermessung von Frequenzdriften von wenigen kHz auf Zeitskalen von einigen Minuten ist keine einfache Aufgabe, wenn Fehlmessungen durch eine falsch eingesetzte oder instabile Referenz vermieden werden sollen. In diesem Zusammenhang kann auch die Ankopplung des Interferometerlasers an den He-Ne-Laser mit Jod-

Stabilisierung in Erwägung gezogen werden, da dieses Gerät eine sehr niedrige spezifizierte relative Unsicherheit von $2,5 \cdot 10^{-11}$ in der Frequenz hat und sich so gut als Frequenzreferenz eignen sollte.

Seitens der Phasenmessungen mit angeregten Atomen sollten Experimente mit dem $12s$ -Zustand zu deutlich größeren und damit leichter nachweisbaren Effekten führen. Um diese Experimente zu ermöglichen, muß der Nachweis der Interferometersignale modifiziert werden, damit der Untergrund durch atomare Fluoreszenz vermieden wird.

Der Aufbau einer zweiten Wechselwirkungszone und Nachweis des Grundzustandsausgangs des Interferometers im $b \leftarrow X$ System strahlabwärts ist aufwendig und teuer. Zu bevorzugen ist zunächst sicherlich, den Nachweis in einen anderen Spektralbereich zu verlegen, z.B. durch Anregung des B -Zustands in $v' = 4$ bei 640 nm. Die Fluoreszenz erstreckt sich bis zu grob 700 nm und sollte sich durch Filter besser von atomaren Fluoreszenz trennen lassen, als es zur Zeit der Fall ist. Durch die kleine Hyperfeinstruktur von X - und B -Zustand verliert man allerdings die Auflösung der Hyperfeinniveaus, was wieder zu zusätzlichem Untergrund führt.

Durch Anregung der Besetzung im b -Zustand am Ausgang des Interferometers in höher gelegene Triplet-Zustände würde die Auflösung der Hyperfeinkomponenten erhalten bleiben und der Nachweis trotzdem in einem günstigeren Spektralbereich stattfinden. Geeignet wären beispielsweise der $4 \ ^3\Sigma_g^+$ - oder $3 \ ^3\Pi_g$ -Zustand. Sie könnten von $v_b = 27$ mit Wellenlängen um 670 nm angeregt werden [56,59]. Sie zerfallen durch Fluoreszenz bei 440 nm in den $a \ ^3\Sigma_u^+$ - Zustand. Ließe sich das Laserstreulicht und die atomare Fluoreszenz auf der Anregungswellenlänge des $12s$ -Niveaus (480 nm) hinreichend unterdrücken, stünde mit diesen Zuständen ein effektiver Nachweisschritt zur Verfügung.

Zur besseren Reproduzierbarkeit der Stoßbedingungen sollten alle Laser für die Anregung der Atome nicht auf Fluoreszenz am Strahl, sondern auf externe Referenzen stabilisiert werden, um bestmögliche Entkopplung und Manipulierbarkeit aller Laserfrequenzen zu erreichen. In diesem Zusammenhang wäre auch die Vereinfachung des präparierten Atomzustands wünschenswert. Da die Erzeugung von dressed-states durch die notwendigen großen Rabi-Frequenzen für den zweiten Anregungsschritt kaum vermeidbar ist, sollte nach einem Weg zur Präparation nur einer Stark-Komponente gesucht werden. Um eine direkte Adressierung einer der Komponenten zu ermöglichen, wären größere Aufspaltungen notwendig, was durch Begrenzungen in der verfügbaren Laserleistung behindert wird.

Durch Verstimmung der Felder von der Resonanz kann die relative Amplitude der atomaren Niveaus an den dressed-states eingestellt werden. Ist eine effektive Anregung des ns -Niveaus über einen nahresonanten Zwei-Photonen-Prozeß mit geeigneter Verstimmung

möglich, sollte die Besetzung eines der Überlagerungszustände gut zu unterdrücken sein. Die Moleküle stoßen dann nur noch mit einem anstelle von zwei besetzten Superpositionszuständen, in dem dazu die Amplitude eines bestimmten atomaren Niveaus dominant ist.

Für die Auswertung der aufgezeichneten Interferogramme wären direktere Methoden ohne numerische Profilanpassungen und digitale Filterung interessant, um einen möglichen nicht erkannten Einfluß dieser Schritte auszuschließen. Beispielsweise könnte bei der in Kapitel 7.2.2 beschriebenen Aufzeichnungsmethode mit schneller Unterbrechung des Laserstrahls zur Anregung der Atome und Schalten der Signale auf zwei Kanäle zusätzlich die Differenz beider Spuren bestimmt und aufgezeichnet werden. Zeigt diese Spur eine Oszillation mit der Periodizität der Interferogramme, wäre ein direkter Nachweis der Stoßeinflüsse gelungen. Diese Registrierungsmethode verfolgt also einen ähnlichen Ansatz, wie die beschriebenen Fourier-Transformationen (Abbildung 7.5), nur daß alle Differenzbildungen bereits elektronisch bei der Registrierung vorgenommen werden. Es gehen keine Modellannahmen ein.

Um Ergebnisse leichter interpretieren zu können, ist der Wechsel zwischen atomstoßfreien Bedingungen und Stößen mit angeregten Atomen wünschenswert. Die begonnenen Arbeiten zur Ablenkung der Atome aus dem Molekülstrahl sollten solche Experimente ermöglichen. Langfristig kann auch die transversale Kühlung des Atomstrahls durch eine zweidimensionale optische Melasse zur Erhöhung der Stoßpartnerdichte im Interferometer in Betracht gezogen werden. Gelingt eine effektive Kollimation des Strahls in der differentiellen Pumpstufe, kann aus rein geometrischen Gründen die Atomdichte um ca. einen Faktor vier steigen und zu einer entsprechenden Vergrößerung der Stoßeinflüsse führen.

Durch die Verwendung eines Strahls mit Trägergas könnten die Stoßbedingungen in anderer Weise verändert werden. Durch die Verringerung der Breiten der Geschwindigkeitsverteilungen würden niedrigere Stoßenergien zugänglich. Wenn über die Art und den Druck des Trägergases die Teilchengeschwindigkeiten variiert wird, könnten auch geschwindigkeitsabhängige Resonanzen in der Streuung beobachtbar werden, die bei breiteren Verteilungen ausgemittelt werden.

Um genauere Aussagen über den Stoßprozeß machen zu können, muß sicherlich die Möglichkeit der Charakterisierung des Teilchenstrahls während des Meßbetriebs möglich sein. Zur Bestimmung der räumlichen Dichteverteilung im Strahl wird bereits ein Langmuir-Taylor-Detektor erprobt, der Bestimmung der Teilchengeschwindigkeiten kommt aber ebenfalls eine große Bedeutung zu. Der Aufbau eines kompakten, fest installierten Doppler-Detektors (wie z.B. in [42] beschrieben) oder die Bestimmung der Geschwindigkeiten durch periodische Manipulation der Teilchen auf optischem oder mechanischem Weg und Analyse der Flugzeit strahlabwärts kämen in Frage.

Unabhängig von Stoßuntersuchungen bietet der Interferometeraufbau auch andere interessante Möglichkeiten. Spektroskopisch ist die Vergrößerung des Auflösungsvermögens von Interesse, um beispielsweise auch die Hyperfeinstruktur des X-Zustands mit Aufspaltungen von wenigen 10 kHz genau vermessen zu können. Um dies erreichen zu können, wären Niveaus mit geringerem Singulettanteil für den Strahlteilerübergang hilfreich. Bei Niveaus des $b(0^+)$ -Zustands wird im Energiebereich des A-Zustands wegen der starken Kopplung beider Zustände kaum mit signifikant größeren Lebensdauern als $1 \mu\text{s}$ zu rechnen sein. Unterhalb des Minimums des A-Zustands fällt der Singulettanteil aber schnell ab, bis Beimischungen von nur 1% der bisher typischen Werte erreicht werden.

Die Lebensdauer könnte dementsprechend bis auf das 100fache steigen, was prinzipiell die Erzeugung von Interferenzen mit Strukturen im kHz-Bereich ermöglichen könnte. Das jetzt vorhandene Lasersystem müßte für Experimente dieser Art sowohl in Hinblick auf die benötigten Wellenlängen, als auch bezüglich der Frequenzstabilität und optischen Leistung überarbeitet werden. Der Aufbau sollte noch Möglichkeiten zur Verbesserung bieten, da nach den Umbauten gegenüber [52] der Regelverstärker noch nicht systematisch optimiert wurde. Die Detektion der Interferogramme wäre wegen der zunehmend langwelligeren Fluoreszenz vorzugsweise durch Abfrage der Besetzung eines der beiden Interferometerzustände mit einem weiteren Laserfeld durchzuführen, wie es bereits im Zusammenhang mit dem Nachweis bei der Anregung des $12s$ -Zustands im Kalium-Atom diskutiert wurde.

Niveaus mit größerer Lebensdauer im gleichen Wellenlängenbereich wie bei den hier betrachteten Experimenten werden in den Zuständen $b(\Omega = 1,2)$ erwartet. Generell ist die Singulettbeimischung dieser Niveaus zu klein, um mit den zur Verfügung stehenden Leistungen ein Interferometer zu betreiben. In beschränkten Bereichen, in denen die Zustände mit dem A-Zustand kreuzen, können aber geeignete Niveaus gefunden werden. Eine solche Kreuzung tritt z.B. in $v_{b1} = 27$ bei $J' = 25$ auf. Es sollte aber beachtet werden, daß die Hyperfeinstruktur der $\Omega = 1$ -Komponente des b-Zustands kleiner ist, als die von $\Omega = 0$ [79]. Ob diese Übergänge gut zur Interferometrie geeignet sind oder zu stark überlagerten Strukturen führen, muß also erst geklärt werden.

Gelingt es, ein Interferometer mit lägeren Dunkelzonen zu bauen, kann dies auch für Stoßuntersuchungen von Vorteil sein. Die Präparation von angeregten Atomen könnte auf den Bereich der Dunkelzone ohne Überlapp mit den Strahlteilern beschränkt werden, wodurch eine Separation der Effekte von Phasen- und Druckverschiebung ermöglicht würde. Gleiches könnte durch die Überlagerung der Laserstrahlen für die Anregung der Kalium-Atome mit den Interferometerstrahlen und gemeinsame Fokussierung auf den Teilchenstrahl erreicht werden, indem Atome nur innerhalb des Strahlteilers angeregt werden. Es können für

beide Verfahren nur atomare Niveaus kurzer Lebensdauer benutzt werden, um ein Verwischen der geometrischen Trennung durch längere Flugstrecken innerhalb der Lebensdauer zu vermeiden.

Durch das dichte molekulare Termschema kann die Erprobung von Interferometern erwogen werden, die Superpositionszustände in den Strahlteilern besetzen oder unterschiedliche Übergänge in den einzelnen Strahlteilerzonen verwenden. Zum Beispiel könnten in der ersten und letzten Wechselwirkungszone des Interferometers $\pi/2$ -Pulse zur Aufspaltung und Rekombination der Materiewelle auf einer Linie $R(J)$ verwendet werden, während in den mittleren Anregungszonen auf dem Übergang $P(J + 2)$ jeweils mit einem π -Puls die Besetzung des angeregten Zustands mit einem anderen Grundzustandsniveau gekoppelt wird. So würde ein Spiegel für das Wellenpaket in einem Arm des Interferometers verwirklicht werden. Ein solches Interferometer hätte idealerweise keine offenen Ausgänge und würde zusätzliche Manipulationsmöglichkeiten durch die getrennte Abstimmbarkeit beider Laserfelder aufweisen. Durch die unterschiedlichen k -Vektoren der verwendeten Strahlung ist das Interferometer nicht mehr ganz geschlossen. Durch die Wahl anderer Linienpaare und damit die Änderung der Differenzfrequenz beider Laserfelder könnte untersucht werden, bis zu welchem geometrischen Versatz die rekombinierten Wellenpakete noch interferieren können. Solche Messungen entsprechen den Untersuchungen der räumlichen Kohärenz optischer Felder mit Mach-Zehnder-Interferometern.

Auch der geplante Aufbau eines Interferometers, daß den STIRAP-Prozeß [45] als Strahlteiler zwischen zwei Vibrationsniveaus des Grundzustands nutzt [46], verspricht ein großes Potential wegen der möglichen großen Frequenzauflösung durch die lange Lebensdauer der verwendeten Zustände. Für Stoßuntersuchungen ist von Interesse, daß sich das Molekül in allen Interferometerarmen im gleichen elektronischen Zustand befindet und sich die Teilwellen nur in Rotation und Vibration unterscheiden. So könne Stöße unter anderen Aspekten untersucht werden, als es mit einem Ramsey-Bordé-Interferometer möglich ist.

Anhang A: Spektroskopische Daten A-Zustand

Alle Energien sind in cm^{-1} gegeben, die Unsicherheit beträgt $0,005 \text{ cm}^{-1}$.

A – X 13 – 0 Bande			
R 0	11986,563		
R 1	11986,614	P 1	11986,371
R 2	11986,634	P 2	11986,228
R 3	11986,623	P 3	11986,055
R 4	11986,582	P 4	11985,851
R 5	11986,512	P 5	11985,616
R 6	11986,410	P 6	11985,351
R 7	11986,278	P 7	11985,056
R 8	11986,116		
R 9	11985,925		
R 10	11985,704		
R 11	11985,454		
R 12	11985,175		

A – X 16 – 0 Bande			
R 0	12183,143		
R 1	12183,189	P 1	12182,952
R 2	12183,203	P 2	12182,807
R 3	12183,182	P 3	12182,628
R 4	12183,129	P 4	12182,417
R 5	12183,043	P 5	12182,172
R 6	12182,923	P 6	12181,894
R 7	12182,771		
R 8	12182,585		
R 9	12182,366		
R 10	12182,115		
R 11	12181,830		

A – X 14 – 0 Bande			
R 0	12050,283		
R 1	12050,342	P 1	12050,085
R 2	12050,374	P 2	12049,946
R 3	12050,377	P 3	12049,780
R 4	12050,354	P 4	12049,587
R 5	12050,303	P 5	12049,367
R 6	12050,222	P 6	12049,119
R 7	12050,111		
R 8	12049,971		
R 9	12049,800		
R 10	12049,599		
R 11	12049,364		
R 12	12049,098		

A – X 17 – 0 Bande			
R 0	12248,244		
R 1	12248,290	P 1	12248,052
R 2	12248,302	P 2	12247,907
R 3	12248,281	P 3	12247,728
R 4	12248,228	P 4	12247,516
R 5	12248,141	P 5	12247,271
R 6	12248,020	P 6	12246,993
R 7	12247,867	P 7	12246,682
R 8	12247,680	P 8	12246,337
R 9	12247,461		
R 10	12247,208		
R 11	12246,922		
R 12	12246,603		
R 13	12246,251		

A – X 15 – 0 Bande			
R 0	12117,541		
R 1	12117,587	P 1	12117,349
R 2	12117,601	P 2	12117,204
R 3	12117,581	P 3	12117,027
R 4	12117,529	P 4	12116,816
R 5	12117,444	P 5	12116,573
R 6	12117,327	P 6	12116,298
R 7	12117,176		
R 8	12116,993		
R 9	12116,777		
R 10	12116,528		

A – X 18 – 0 Bande			
R 0	12312,944		
R 1	12312,990	P 1	12312,754
R 2	12313,001	P 2	12312,608
R 3	12312,980	P 3	12312,429
R 4	12312,925	P 4	12312,217
R 5	12312,836	P 5	12311,970
R 6	12312,714	P 6	12311,692
R 7	12312,559	P 7	12311,379
R 8	12312,370	P 8	12311,033
R 9	12312,149	P 9	12310,655
R 10	12311,893	P 10	12310,243
R 11	12311,605	P 11	12309,798
R 12	12311,285	P 12	12309,318
R 13	12310,931	P 13	12308,803
R 14	12310,544	P 14	12308,257
R 15	12310,125	P 15	12307,678
R 16	12309,672	P 16	12307,067
R 17	12309,186	P 17	12306,424
R 18	12308,666	P 18	12305,747
R 19	12308,118	P 19	12305,038
R 20	12307,538	P 20	12304,298
R 21	12306,927	P 21	12303,526
R 22	12306,287	P 22	12302,722
R 23	12305,618	P 23	12301,889
R 24	12304,922	P 24	12301,027
R 25	12304,203	P 25	12300,135
R 26	12303,464	P 26	12299,216
R 27	12302,710	P 27	12298,271
R 28	12301,954		
R 29	12301,212		
R 30	12300,506		
R 31	12299,871		
R 32	12299,334		

A – X 19 – 0 Bande			
R 0	12377,284		
R 1	12377,331	P 1	12377,091
R 2	12377,344	P 2	12376,946
R 3	12377,324	P 3	12376,768
R 4	12377,271	P 4	12376,558
R 5	12377,184	P 5	12376,313
R 6	12377,060	P 6	12376,036
R 7	12376,905	P 7	12375,725
R 8	12376,715	P 8	12375,380
R 9	12376,491	P 9	12375,001
R 10	12376,234	P 10	12374,587
R 11	12375,941	P 11	12374,138
R 12	12375,615	P 12	12373,657
R 13	12375,254	P 13	12373,139
R 14	12374,858	P 14	12372,589
R 15	12374,429	P 15	12372,004
R 16	12373,964	P 16	12371,384
R 17	12373,465	P 17	12370,730
R 18	12372,933	P 18	12370,044
R 19	12372,367	P 19	12369,322
R 20	12371,767	P 20	12368,566
R 21	12371,131	P 21	12367,774
R 22	12370,464	P 22	12366,950
R 23	12369,761	P 23	12366,093
R 24	12369,025	P 24	12365,198
R 25	12368,255	P 25	12364,272
R 26	12367,448	P 26	12363,312
R 27	12366,609	P 27	12362,318
R 28	12365,738	P 28	12361,290
R 29	12364,829	P 29	12360,229
R 30	12363,889		
R 31	12362,914		
R 32	12361,906		
R 33	12360,864		

A – X 20 – 0 Bande			
R 0	12441,346		
R 1	12441,391	P 1	12441,156
R 2	12441,401	P 2	12441,010
R 3	12441,377	P 3	12440,831
R 4	12441,319	P 4	12440,617
R 5	12441,228	P 5	12440,369
R 6	12441,102	P 6	12440,087
R 7	12440,943	P 7	12439,772
R 8	12440,749	P 8	12439,422
R 9	12440,521	P 9	12439,039
R 10	12440,260	P 10	12438,621
R 11	12439,964	P 11	12438,169
R 12	12439,634	P 12	12437,684
R 13	12439,270	P 13	12437,165
R 14	12438,872	P 14	12436,606
R 15	12438,440	P 15	12436,019
R 16	12437,974	P 16	12435,397
R 17	12437,473	P 17	12434,741
R 18	12436,939	P 18	12434,052
R 19	12436,366	P 19	12433,328
R 20	12435,763		
R 21	12435,126		
R 22	12434,454		
R 23	12433,749		
R 24	12433,010		

A – X 22 – 0 Bande			
R 0	12568,637		
R 1	12568,680	P 1	12568,571
R 2	12568,687		
R 3	12568,660		
R 4	12568,598		

A – X 21 – 0 Bande			
R 0	12505,118		
R 1	12505,162	P 1	12504,929
R 2	12505,171	P 2	12504,782
R 3	12505,145	P 3	12504,601
R 4	12505,085	P 4	12504,386
R 5	12504,991	P 5	12504,136
R 6	12504,862	P 6	12503,852
R 7	12504,699		
R 8	12504,502		
R 9	12504,269		
R 10	12504,003		

Anhang B: Spektroskopische Daten $b(0^+)$ -Zustand

Alle Energien sind in cm^{-1} gegeben, die Unsicherheit beträgt $0,005 \text{ cm}^{-1}$.

b – X 24 – 0 Bande			
R 1	11972,447		
R 2	11972,536	P 2	11972,014
R 3	11972,618	P 3	11971,886
R 4	11972,692		
R 5	11972,758		
R 6	11972,816		
R 7	11972,866		
R 8	11972,908		
R 9	11972,943		
R 10	11972,969		
R 11	11972,983		
R 12	11972,987		
R 13	11972,982		
R 14	11972,966		
R 15	11972,942		
R 16	11972,906		
R 17	11972,856		
R 18	11972,791		
R 19	11972,711		
R 20	11972,624		
R 21	11972,496		
R 22	11972,356		
R 23	11972,191		
R 24	11971,995		

b – X 25 – 0 Bande			
R 1	12056,695	P 1	12056,396
R 2	12056,770	P 2	12056,272
R 3	12056,835	P 3	12056,135
R 4	12056,888	P 4	12055,987
R 5	12056,931	P 5	12055,827
R 6	12056,963	P 6	12055,657
R 7	12056,986		
R 8	12057,000		
R 9	12057,005		
R 10	12057,004		
R 11	12056,995		
R 12	12056,979		
R 13	12056,958		
R 14	12056,931		
R 15	12056,898		
R 16	12056,860		
R 17	12056,817		
R 18	12056,770		
R 19	12056,717		
R 20	12056,661		
R 21	12056,600		
R 22	12056,534		
R 23	12056,464		

b – X 27 – 0 Bande			
R 0	12217,715		
R 1	12217,812	P 1	12217,498
R 2	12217,903	P 2	12217,378
R 3	12217,986	P 3	12217,251
R 4	12218,063	P 4	12217,118
R 5	12218,131	P 5	12216,976
R 6	12218,193	P 6	12216,828
R 7	12218,247	P 7	12216,672
R 8	12218,294	P 8	12216,510
R 9	12218,334		
R 10	12218,367		
R 11	12218,392		
R 12	12218,410		
R 13	12218,420		
R 14	12218,423		
R 15	12218,419		
R 16	12218,406		
R 17	12218,387		
R 18	12218,360		
R 19	12218,325		
R 20	12218,283		
R 21	12218,232		
R 22	12218,174		
R 23	12218,109		
R 24	12218,034		
R 25	12217,952		
R 26	12217,862		
R 27	12217,762		
R 28	12217,655		
R 29	12217,538		
R 30	12217,411		
R 31	12217,275		
R 32	12217,129		
R 33	12216,971		
R 34	12216,802		
R 35	12216,621		
R 36	12216,424		

b – X 28 – 0 Bande			
R 0	12298,5466		
R 1	12298,6436	P 1	12298,330
R 2	12298,7325	P 2	12298,210
R 3	12298,8138	P 3	12298,083
R 4	12298,8889	P 4	12297,947
R 5	12298,9548	P 5	12297,804
R 6	12299,0130		
R 7	12299,0634		
R 8	12299,1059		
R 9	12299,1406		
R 10	12299,1675		
R 11	12299,1860		
R 12	12299,1973		
R 13	12299,1991		
R 14	12299,1936		
R 15	12299,1795		
R 16	12299,1567		
R 17	12299,1253		
R 18	12299,0847		
R 19	12299,0347		
R 20	12298,9747		
R 21	12298,9043		
R 22	12298,821		
R 23	12298,7264		
R 24	12298,6175		
R 25	12298,4912		
R 26	12298,3442		
R 27	12298,1695		
R 28	12297,9569		
R 29	12297,6905		

b – X 29 – 0 Bande			
R 0	12379,029		
R 1	12379,123	P 1	12378,813
R 2	12379,208	P 2	12378,692
R 3	12379,285	P 3	12378,562
R 4	12379,354	P 4	12378,424
R 5	12379,414	P 5	12378,277
R 6	12379,467	P 6	12378,121
R 7	12379,512	P 7	12377,958
R 8	12379,551	P 8	12377,787
R 9	12379,580	P 9	12377,608
R 10	12379,603	P 10	12377,420
R 11	12379,618	P 11	12377,226
R 12	12379,626	P 12	12377,023
R 13	12379,626	P 13	12376,814
R 14	12379,618	P 14	12376,598
R 15	12379,603	P 15	12376,374
R 16	12379,580	P 16	12376,144
R 17	12379,551	P 17	12375,905
R 18	12379,512	P 18	12375,659
R 19	12379,467	P 19	12375,406
R 20	12379,414	P 20	12375,145
R 21	12379,354	P 21	12374,876
R 22	12379,285		
R 23	12379,208		
R 24	12379,123		

b – X 30 – 0 Bande			
R 0	12459,019		
R 1	12459,114		
R 2	12459,201		
R 3	12459,279		
R 4	12459,349		
R 5	12459,411		
R 6	12459,463		
R 7	12459,508		
R 8	12459,544		
R 9	12459,572		
R 10	12459,591		
R 11	12459,600		
R 12	12459,605		
R 13	12459,602		
R 14	12459,586		
R 15	12459,564		
R 16	12459,533		
R 17	12459,495		
R 18	12459,448		
R 19	12459,393		
R 20	12459,330		
R 21	12459,258		
R 22	12459,178		
R 23	12459,090		
R 24	12458,994		
R 25	12458,889		

b - X 31 - 0 Bande			
R 3	12538,757		
R 4	12538,826		
R 5	12538,886		
R 6	12538,938		
R 7	12538,980		
R 8	12539,016		
R 9	12539,042		
R 10	12539,060		
R 11	12539,068		
R 12	12539,068		
R 13	12539,060		
R 14	12539,042		
R 15	12539,016		
R 16	12538,983		
R 17	12538,940		
R 18	12538,888		
R 19	12538,828		
R 20	12538,760		

Literaturverzeichnis

- [1] T. D. Hammond, M. S. Chapman, A. Lenef, J. Schmiedmayer, E. T. Smith, R. A. Rubenstein, D. Kokorowski, D. E. Pritchard: *Matter-wave index of refraction, inertial sensing, and quantum decoherence in an atom interferometer*, Braz. J. Phys. **27**, 193 (1997)
- [2] A. Lenef, T. D. Hammond, E. T. Smith, M. S. Chapman, R. A. Rubenstein, D. E. Pritchard: *Rotation sensing with an atom interferometer*, Phys. Rev. Lett. **78**, 760 (1997)
- [3] E. M. Rasel, M. K. Oberthaler, H. Batelaan, J. Schmiedmayer, A. Zeilinger: *Atom wave interferometry with diffraction gratings of light*, Phys. Rev. Lett. **75**, 2633 (1995)
- [4] M. Arndt, O. Nairz, J. Vos-Andreae, C. Keller, G. van der Zouw, A. Zeilinger: *Wave – particle duality of C₆₀ molecules*, Nature **401**, 680 (1999)
- [5] T. L. Gustavson, P. Bouyer, M. A. Kasevich: *Precision rotation measurements with an interferometer gyroscope*, Phys. Rev. Lett. **78**, 2046 (1997)
- [6] M. Kasevich, S. Chu: *Measurement of the gravitational acceleration of an atom with a light-pulse atom interferometer*, Appl. Phys. B **54**, 321 (1992)
- [7] T. L. Gustavson, A. Landragin, M. A. Kasevich: *Rotation sensing with a dual atom-interferometer Sagnac gyroscope*, Class. Quantum Grav. **17**, 2385 (2000)
- [8] Ch. Bordé, Ch. Salomon, S. Avrillier, A. Van Lerberghe, Ch. Bréant, D. Bassi, G. Scoles: *Optical Ramsey fringes with travelling waves*, Phys. Rev. A **30**, 1836 (1984)
- [9] Ch. Bordé: *Atomic interferometry with internal state labelling*, Phys. Lett. A **140**, 10 (1989)
- [10] J. Helmcke, D. D. Zevgolis, B. Ü. Yen: *Observation of high contrast, ultranarrow Ramsey fringes in saturated absorption utilizing four interaction zones with travelling waves*, Appl. Phys. B **28**, (1982) 83
- [11] F. Riehle, P. Kersten, H. Schnartz, T. Trebst, G. Zinner, J. Helmcke: *Ca optical frequency standard*, Laser Physics **8**, 664 (1998)

- [12] U. Sterr, K. Sengstock, J. H. Müller, D. Bettermann, W. Ertmer: *The Magnesium Ramsey interferometer: Applications and prospects*, Appl. Phys. B **54**, 341 (1992)
- [13] F. Ruschewitz, J. L. Peng, H. Hinderthür, N. Schaffrath, K. Sengstock, W. Ertmer: *Sub-kilohertz optical spectroscopy with a time domain atom interferometer*, Phys. Rev. Lett. **80**, 3173 (1998)
- [14] V. Rieger, K. Sengstock, U. Sterr, J. H. Müller, W. Ertmer: *Atom-interferometric detection of the dc-Stark shift of the Mg-intercombination line*, Opt. Comm. **99**, 172 (1993)
- [15] J. H. Müller, D. Bettermann, V. Rieger, K. Sengstock, U. Sterr, W. Ertmer: *Topological phase shift in a cold-atom interferometer*, Appl. Phys. B **60**, 199 (1995)
- [16] M. S. Chapman, C. S. Ekstrom, T. D. Hammond, R. A. Rubenstein, J. Schmiedmayer, S. Wehinger, D. E. Pritchard: *Optics and interferometry with Na₂ molecules*, Phys. Rev. Lett. **74**, 4783 (1995)
- [17] D. Comparat, C. Drag, A. Fioretti, O. Dulieu, P. Pillet: *Photoassociative spectroscopy and formation of cold molecules in cold Cesium vapor: trap-loss spectrum versus ion spectrum*, J. Mol. Spec. **195**, 229 (1999)
- [18] D. Comparat, C. Drag, B. Laburthe Tolra, A. Fioretti, P. Pillet, A. Crubellier, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws: *Formation of cold Cs₂ ground state molecules through photoassociation in the I_u pure long-range state*, Eur. Phys. J. D **11**, 59 (2000)
- [19] R. deCarvalho, J. M. Doyle, B. Friedrich, T. Guillet, J. Kim, D. Patterson, J. D. Weinstein: *Buffer-gas loaded magnetic traps for atoms and molecules: A primer*, Eur. Phys. J. D **7**, 289 (1999)
- [20] H. L. Bethlem, G. Berden, F. Crompvoels, R. T. Jougma, A. Van Roij, G. Meijer: *Electrostatic trapping of ammonia molecules*, Nature **406**, 491 (2000)
- [21] N. F. Ramsey: *Molecular beams*, Oxford University Press 1956
- [22] H. Hinderthür, F. Ruschewitz, H.-J. Lohe, S. Lechte, K. Sengstock, W. Ertmer: *Time-domain high-finesse atom interferometry*, Phys. Rev. A **59**, 2216 (1999)
- [23] F. Ruschewitz: *Hochauflösende optische Spektroskopie an lasergekühlten Atomen basierend auf der Atominterferometrie im Zeitraum*, Dissertation, Hannover 1998

- [24] Y. V. Baklanov, B. Y. Dubetsky, V. P. Chebotayev: *Non-linear Ramsey resonance in the optical region*, Appl. Phys. **9**, 171 (1976)
- [25] B. W. Shore: *The theory of coherent atomic excitation*, John Wiley & Sons 1989
- [26] Ch. Salomon: *Franges de Ramsey et spectroscopie laser a ultra-haute resolution dans l'infrarouge*, Dissertation, Paris 1984
- [27] W. Demtröder: *Laserspektroskopie*, Springer Verlag 1993
- [28] Hrsg. K. Shimoda: *High-resolution laser spectroscopy*, Springer Verlag 1976
- [29] M.-L. Almazor: *Programm ,b4‘ zur Simulation eines Ramsey-Bordé-Interferometers*, Hannover 1998
- [30] A. R. Edmonds: *Angular momenta in quantum mechanics*, Princeton University Press 1964
- [31] K. Sengstock: *Ramsey Atominterferometrie an lasermanipulierten, kalten Atomen*, Dissertation, Bonn 1993
- [32] S. Nowak, T. Pfau, J. Mlynek: *A matter-wave interferometer based on the dc-Stark effect*, Appl. Phys. B **69**, 269 (1999)
- [33] T. L. Gustavson, P. Bouyer, M. A. Kasevich: *Precision rotation measurements with an atom interferometer gyroscope*, Phys. Rev. Lett. **78**, 1046 (1997)
- [34] D. E. Pritchard, M. S. Chapman, C. R. Ekstrom, T. D. Hammond, D. Kokorowski, A. Lenef, R. A. Rubenstein, J. Schmiedmayer, E. T. Smith: *Interferometry with atoms and molecules: a tutorial*, Proceedings of the SPIE 2995, 22 (1997)
- [35] Hrsg. P. R. Berman: *Atom interferometry*, Academic Press 1997
- [36] J. Schmiedmayer, M. S. Chapman, C. E. Ekstrom, T. D. Hammond, S. Wehinger, D. E. Pritchard: *Index of refraction of various gases for Sodium matter waves*, Phys. Rev. Lett. **74**, 1043 (1995)
- [37] J. Vigué: *Index of refraction of dilute matter waves in atomic interferometry*, Phys. Rev. A **52**, 3973 (1995)

- [38] C. Champenois, E. Audouard, P. Dupl a, J. Vigu e: *Refractive index for atomic waves: Theory and detailed calculations*, J. Phys. II France **7**, 523 (1997)
- [39] R. G. Newton: *Scattering theory of waves and particles*, Springer 1982
- [40] A. Messiah: *Quantum Mechanics*, North-Holland, 1970
- [41] J. M. Blatt: *Practical points concerning the solution of the Schr dinger equation*, J. Comp. Phys. **1**, 382 (1967)
- [42] G. Scoles: *Atomic and molecular beam methods*, Vol. 1, Oxford Univ. Press 1988
- [43] M. Meyer zur Heyde: *Aufbau einer D senstrahlappartur zur Untersuchung von Na₂ und Na₃*, Diplomarbeit, Hannover 1989
- [44] Ch. Lisdat: *Experimente zum koh renten Besetzungstransfer mit zwei Lasern am K₂-Molek lstrahl*, Diplomarbeit, Hannover 1997
- [45] H. Theuer: *Anwendung von STIRAP in der koh renten Teilchenoptik am Beispiel eines laserpr parierten Ne^{*}-Atomstrahls*, Dissertation, Kaiserslautern 2000
- [46] K. Jaspers: *Orientierung und Alignment von K₂-Molek len durch adiabatische Passage unter Einflu  von Hyperfeinstruktur*, Diplomarbeit, Hannover 2000
- [47] Programm *Win-Lens 3.0*, Fa. Spindler & Hoyer
- [48] L. Ricci, L. Weidem ller, T. Esslinger, A. Hemmerich, C. Zimmermann, V. Vuletic, W. K nig, T. W. H nsch: *A compact grating-stabilized diode laser system for atomic physics*, Opt. Comm. **117**, 541 (1995)
- [49] P. McNicholl, H. Metcalf: *Synchronous cavity mode and feedback wavelength scanning in dye-laser oscillators with gratings*, Appl. Opt. **24**, 2757 (1985)
- [50] R. V. Pound: *Electronic frequency stabilization of microwave oscillators*, Rev. Sci. Instr. **17**, 490 (1946)
- [51] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalsky, J. Hough, G. M. Ford, H. Munley, H. Ward: *Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator*, Appl. Phys. B **31**, 97 (1983)

- [52] M. Frank: *Aufbau eines frequenzstabilisierten Diodenlaserpaares mit großer Differenzfrequenz*, Diplomarbeit, Hannover 1999
- [53] B. Bodermann, H. Telle, persönliche Mitteilung
- [54] H. Telle, U. Telle: Programm *fcfrkr* zur Berechnung von Franck-Condon-Faktoren und RKR Potentialen aus Dunham Parametern.
- [55] Ch. Amiot, J. Vergés, C. E. Fellows: *The long-range potential of the $K_2 X \ ^1\Sigma_g^+$ ground electronic state up to 15 Å*, J. Chem. Phys. **103**, 3350 (1995)
- [56] G. Zhao, W. Zemke, J. Kim, B. Ji, H. Wang, J. Bahnes, W. Stwalley, L. Li, A. Lyyra, C. Amiot: *New measurements of the $a \ ^3\Sigma_u^+$ state of K_2 and improved analysis of long-range dispersion and exchange interactions between two K atoms*, J. Chem. Phys. **105**, 7976 (1996)
- [57] G. Jong, L. Li, T.-J. Whang, W. Stwalley, J. Coxon, M. Li, A. Lyyra: *Cw all-optical triple-resonance spectroscopy of K_2 : Deperturbation analysis of the A and b states*, J. Mol. Spec. **155**, 115 (1992)
- [58] A. Ross, P. Crozet, C. Effantin, J. d'Incan, R. Barrow: *Interactions of the $A \ ^1\Sigma_u^+$ and $b \ ^3\Pi_u$ states of K_2* , J. Chem. Phys. B **20**, 6225 (1987)
- [59] J. T. Kim, H. Wang, C. Tsai, J. Bahns, W. Stwalley, G. Jong, A. Lyyra: *Observation of the $4 \ ^3\Sigma_u^+$, $3 \ ^3\Pi_g$, $2 \ ^3\Delta_g$, and $b \ ^3\Pi_u$ states of $^{39}K_2$ by perturbation facilitated optical-optical double resonance spectroscopy*, J. Chem. Phys. **102**, 6646 (1995)
- [60] G. Herzberg: *Molecular spectra and molecular structure, I. Spectra of diatomic molecules*, van Nostrand Reinhold Company, 1950
- [61] Landolt-Börnstein II/6, Springer Verlag 1999
- [62] H. Lefebvre-Brion, R. W. Field: *Perturbations in the spectra of diatomic molecules*, Academic Press, 1986
- [63] H. Haken, H. C. Wolf: *Molekülphysik und Quantenchemie*, Springer Verlag 1997
- [64] A. Ross: private Mitteilung, 1997
- [65] L. Li: private Mitteilung, 1998

- [66] C. Amiot: private Mitteilung, 2000
- [67] S. Gerstenkorn, J. Vergés, J. Chevillard: *Atlas du spectre d'absorption de la molécule d'iode*, Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II, 91405 Orsay (France), 1978
- [68] J. B. Atkinson, J. Becker, W. Demtröder: *Experimental observation of the $a^3\Pi_u$ state of Na_2* , Chem. Phys. Lett. **87**, 92 (1982)
- [69] C. Effantin, O. Babaky, K. Hussein, J. d'Incan, R. F. Barrow: *Interactions between the $A^1\Sigma_u^+$ and $b^3\Pi_u$ states of Na_2* , J Phys. B **18**, 4077 (1985)
- [70] CERN program library writeup D506: *minuit v.92.1*, CERN, Genf Schweiz
- [71] C. Krupp: *Laserspektroskopische Untersuchung zur Kopplung zwischen Singulett- und Triplettssystem im Na_2 -Molekül*, Diplomarbeit, Hannover 1993
- [72] J. M. Hutson: Programm *cdist* zur Berechnung von Zentrifugalkorrekturen nach J. Phys. B **14**, 851 (1981)
- [73] V. Kokoouline, O. Dulieu, R. Koslof, F. Masnou-Seeuws: *Mapped Fourier methods for long-range molecules: Application to perturbations in the $Rb_2(0_u^+)$ photoassociation spectrum*, J. Chem. Phys. **110**, 9865 (1999)
- [74] C. Amiot, O. Dulieu, J. Vergès: *Resolution of the apparent disorder of the $Rb_2 A^1\Sigma_u^+(0^+)$ and $b^3\Pi_u(0^+)$ spectra: A case of fully coupled electronic states*, Phys. Rev. Lett. **83**, 2316 (1999)
- [75] B. Bodermann: *Untersuchungen zur Realisierung eines durchstimmbaren, hochpräzisen Frequenzstandards im NIR und zur Erweiterung des Spektralbereiches mit Hilfe des $^{127}I_2$ -Moleküls*, Dissertation, Hannover 1998
- [76] H. Wang, P. L. Gould W. C. Stwalley: *Long-range interaction of the $^{39}K(4s) + ^{39}K(4p)$ asymptote by photoassociation spectroscopy. I. the 0_g^- pure long-range state and the long-range potential constants*, J. Chem. Phys. **106**, 7899 (1997)
- [77] W. Scherf, O. Khait, H. Jäger, L. Windholz: *Re-measurement of the transition frequencies, fine structure splitting and isotope shift of the resonance lines of lithium, sodium and potassium*, Z. Phys. D **36**, 31 (1996)
- [78] O. Dulieu: private Mitteilung 2000, Dissertation bei W. Meyer, Kaiserslautern

- [79] J. B. Atkinson, J. Becker, W. Demtröder: *Hyperfine structure of the 625 nm band in the $a^3\Pi_u \leftarrow X^1\Sigma_g^+$ transitions of Na_2* , Chem. Phys. Lett. **87**, 128 (1982)
- [80] Ch. Lisdat, H. Knöckel, E. Tiemann: *First observation of hyperfine structure in K_2* , J. Mol. Spec. **199**, 81 (2000)
- [81] M. Broyer, J. Vigué, J. C. Lehmann: *Effective hyperfine hamiltonian in homonuclear diatomic molecules. Application to the B state of molecular Iodine*, J. Phys. (Paris) **39**, 347 (1987)
- [82] A. R. Edmonds: *Angular momentum in quantum mechanics*, Princeton Univ. Press (1964)
- [83] Ch. Lisdat, M. Frank, H. Knöckel, M.-L. Almazor, E. Tiemann: *Realization of a Ramsey-Bordé matter wave interferometer on the K_2 molecule*, Eur. Phys. J. D **12**, 235 (2000)
- [84] Microcal Software: *Origin 5.0*, Northampton USA
- [85] Ch. Lisdat, M. Frank, H. Knöckel, E. Tiemann: *Modulation techniques in a molecular Ramsey-Bordé interferometer*, eingereicht bei Applied Physics B
- [86] M. Elbs: *Experimentelle und theoretische Untersuchungen asymptotischer molekularer Zustände am Beispiel Na_2* , Dissertation, Hannover 1998
- [87] Ch. Bordé, N. Courtier, F. du Burck, A. N. Goncharov, M. Gorlicki: *Molecular interferometry experiments*, Phys. Lett. A **188**, 187 (1994)
- [88] H. Witek: *Hochauflösende Mikrowellenspektroskopie am $CsCl$ -Düsenstrahl*, Inaugural-Dissertation, Berlin 1978
- [89] S. Bashkin, J. O. Stoner: *Atomic energy-level and Grotian diagrams*, North-Holland Publishing Company, (1978)
- [90] NIST Database, http://physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/lines_form, (2001)
- [91] H. Wang, J. Li, X. Wang, C. Williams, P. Gould, W. Stwalley: *Precise determination of the dipole matrix element and radiative lifetime of the ^{39}K 4p state by photoassociative spectroscopy*, Phys. Rev. A **55**, R1569 (1997)

Tabellarischer Lebenslauf

Name	Christian Lisdat
geboren am	5.7.1972 in Hamburg
Eltern	Ingrid Lisdat, geb. Ruge, Dr. Reinhard Lisdat
Familienstand	ledig
Staatsangehörigkeit	deutsch

Schulbildung:

08.1978 – 05.1982	Besuch der Grundschule Igensdorf/Bayern
05.1982 – 09.1986	Besuch des Gymnasiums Sachsenwaldschule Reinbek/Schleswig-Holstein
09.1986 – 06.1991	Besuch des Gymnasiums Humboldtschule, Hannover Abschluß Abitur

Zivildienst:

06.1991 – 10.1992	Zivildienst an der Werner-Dicke-Schule I, Hannover
-------------------	--

Studium:

10.1992 – 02.1998	Grund- und Hauptstudium an der Universität Hannover Studiengang Physik/Diplom
10.1996 – 11.1997	Anfertigung einer Diplomarbeit im Institut für Quantenoptik, Universität Hannover
02.1998	Abschluß des Studiums als Diplomphysiker
seit 02.1998	Promotion in der Arbeitsgruppe von Prof. Tiemann im Institut für Quantenoptik, Universität Hannover
02.1998 – 05.1999	Stipendiat im Graduiertenkolleg Photonen, atomare Teilchen und deren Wechselwirkung
seit 06.1999	Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Quantenoptik

Hannover, im Januar 2001

Danksagung

Viele Personen haben zum Gelingen dieser Arbeit auf unterschiedlichste Weisen beigetragen, wofür ich ihnen sehr dankbar bin. Mein besonderer Dank gilt:

Herrn Prof. Dr. Tiemann, der mir die Möglichkeit gab, diese Arbeit durchzuführen. Nicht nur hilfreiche Diskussionen und wertvolle Ratschläge, sondern auch das Vertrauen in meine Gestaltung der Experimente und die Möglichkeit, „über den Tellerrand zu schauen“, haben mir sehr geholfen.

Herrn Dr. Horst Knöckel für die Aufmunterungen und Hilfestellungen bei den ganz alltäglichen Problemen im Labor und drumrum und besonders dafür, daß er uns den Rücken frei von „mehr technischen“ Problemen gehalten hat.

Herrn Dr. Olivier Dulieu für „sein“ Programm und sehr aufschlußreiche Gespräche mit und ohne Moleküle.

Der Na-Fraktion – Frau Dipl.-Phys. Tanja Laue und Herrn Dipl.-Phys. Christian CMS Samuelis – für grünes Licht und Gelächter in dunklen Laborstunden.

Herrn Dipl.-Phys. Matthias Frank für helfende Hände, den Aufbau der Laser und Unterstützung bei vielen anderen Dingen.

Frau Dipl.-Phys. Kirsten Jaspers. Sie weiß warum, oder sollte es. ☺

Und meiner Freundin Birgit dafür, daß ihr Verständnis so selten an Grenzen gestoßen ist. Den Grenzen danke ich dafür, daß sie ein recht flüchtiges Wesen haben.