

Kapitel 1

Einleitung

Der Ursprung der Physik findet sich in der Beobachtung und Untersuchung unserer Umwelt. Am Anfang stand die Wahrnehmung der sichtbaren Gegenstände, die durch das Licht der Sonne in das Blickfeld der Forschung gelangten. Eine Weiterentwicklung der Untersuchungsmethoden erfolgte durch die Verwendung von Wellenlängen außerhalb des sichtbaren Bereichs, wie z.B. Röntgenstrahlen, infrarotem Licht oder auch Licht des ultravioletten Bereichs der elektromagnetischen Strahlung. Durch die beobachtete Quantelung des Lichts konnten wiederum neue Phänomene der menschlichen Umwelt entdeckt und erforscht werden. Somit wurde die Beschreibung unserer Umwelt immer komplexer und weitläufiger, da die Physik es ermöglichte, in immer kleinere und ebenso größere Maßstäbe vorzudringen. Die Erfindung des Lasers führte zu einem mittlerweile unabdingbaren Werkzeug für die Erforschung unserer Umwelt. Durch sein kohärentes Licht in einem sehr eng eingeschränkten Wellenlängenbereich wurde es möglich, Atome und Moleküle zu untersuchen und ihre charakteristischen Eigenschaften zu erkennen. Nicht nur die Beschränkung der elektromagnetischen Strahlung auf einzelne Wellenlängen, kohärentes Licht und die hohe Intensität der Strahlung erbrachten enorme physikalische Einsichten, sondern auch die Verwendung kurzer Laserpulse. Je kürzer die Laserpulse in ihrer zeitlichen Dauer werden, desto schnellere physikalische und chemische Prozesse können mit ihnen beobachtet und untersucht werden.

Die in dieser Arbeit verwendeten Femtosekunden¹-Laserpulse ermöglichen einen Einblick in die Welt der Moleküle sowie die Beobachtung chemischer Prozesse in Echtzeit. Diese liegen auf der fs-Zeitskala, die durch die Entwicklung der fs-Laserpulse in den achtziger Jahren für die Physik zugänglich wurde. Die geringe zeitliche Länge bedingt durch die Heisenbergsche Unschärferelation ein breites Pulsspektrum, so dass bei der Anregung eines Moleküls mehrere Schwingungsniveaus eines angeregten Zustands kohärent beteiligt sind und durch Superposition ein Wellenpaket erzeugen. Beginnt ein solches Wellenpaket zu propagieren, kann

¹Femtosekunde: $1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$

die Bewegung der Kerne als Bewegung des Wellenpakets im Molekülpotential beschrieben werden - einer periodischen Oszillation entsprechend. Die Ionisation von Molekülen durch fs-Laserpulse ermöglicht unterschiedliche Prozesse der photoinduzierten Anregung durch einzelne nacheinander folgende Photonen. Die Effizienz solch einer Multiphotonenionisation kann durch die Pulsform des anregenden Laserpulses erheblich gesteigert werden. Als Modellsysteme eignen sich hierbei kleine Cluster.

Die Untersuchung von kleinen Clustern ist nicht nur wegen ihrer vom Festkörper abweichenden Eigenschaften, sondern auch wegen ihres interessanten Echtzeitverhaltens von großem Interesse. Daher untersuchte ich während meiner Doktorarbeit Alkalidimere mittels fs-Laserpulsen. Die Elemente der ersten Hauptgruppe sind ideal für die Untersuchung der elementaren Prozesse der Photoionisation. Sie sind ein geeignetes Modellsystem, da verschiedene Reaktionsabläufe klar unterscheidbar sind und die Absorptionsbanden im Wellenlängenbereich kommerziell erwerblicher Lasersysteme liegen. Ihre Ionisationsenergien sind relativ niedrig, so dass sie durch resonante Anregungsprozesse leicht erreicht werden können. Außerdem kann die Schwingungsdynamik der Alkali-Moleküle durch fs-Pulsdauern zeitlich aufgelöst werden.

Um die beobachtbaren photoinduzierten Anregungen zu optimieren, wandte ich optimale Kontrolle durch Formung der anregenden fs-Laserpulse an. Dabei wird die spektrale und zeitliche Form des Laserpulses ergebnisorientiert mit Hilfe einer adaptiven Rückkopplungsschleife moduliert. Diese Modulation geschieht durch einen Pulsformer, der im Zusammenspiel mit einem evolutionären Algorithmus die fs-Laserpulse auf den gewünschten Prozess hin optimiert. Die Interpretation der optimierten Laserpulsform bietet Informationen über die multiphotonische Anregung der Moleküle. Sie ermöglicht weiterhin die Beobachtung nicht vorhergesagter photoinduzierter Wechselwirkungsprozesse, da für diese Art von Experimenten kein detailliertes Vorwissen der untersuchten Moleküle notwendig ist.

Die durch die optimale Pulsform erhaltenen Informationen über die Wellenpaketpropagation und die Ionisationsprozesse in den beteiligten Energiepotentialkurven bieten die Möglichkeit, eine isotopenselektive Anregung von Molekülen zu untersuchen. Die Isotopenseparation ist ein Thema in den unterschiedlichsten wissenschaftlichen Bereichen, wie z.B. der Medizin, Archäologie und Chemie. Bisher wurden mehrere Methoden zur Isotopenseparation verwendet, z.B. die Gasdiffusion und das Zentrifugieren [1], bei denen die kleine Massendifferenz unterschiedlicher Isotope ausgenutzt wurde. Ebenfalls konnte die Isotopenverschiebung der spektralen Linien in der Isotopenseparation durch Anregung mit kontinuierlichen Lasern ausgenutzt werden [2, 3]. Fs-Laserpulse wurden bisher nur verwendet, um die isotopenabhängige Moleküldynamik zu untersuchen [4, 5] und räumlich getrennte lokalisierte Schwingungswellenpakete zu erzeugen, indem die unterschiedliche Wellenpaketevolution der Isotope ohne Berücksichtigung der spektralen Selektivität ausgenutzt wurde [6]. Bei allen Methoden wird ein detail-

liertes Wissen über die zu untersuchenden Moleküle vorausgesetzt.

Im Gegensatz dazu wird in dieser Arbeit die Methode der optimalen Kontrolle auf die isotopenselektive Anregung angewendet. Die effiziente Ionisation eines Isotopomers auf Kosten eines anderen Isotopomers steht dabei im Mittelpunkt. Wie das experimentell umgesetzt werden konnte, wird anhand der isotopenselektiven Anregung des NaK- und KRb-Dimers im Molekularstrahl gezeigt. Von großem Vorteil ist die Möglichkeit einer theoretischen Beschreibung der Experimente, die eine Erklärung des Anregungsprozesses erlaubt.

Als Vorstufe von kohärenten Kontrollexperimenten ist die Untersuchung eines chemischen Systems durch die Pump-Probe-Spektroskopie von großer Bedeutung. Sie ermöglicht die Beobachtung der Bewegungsabläufe angeregter Wellenpakete in molekularen Systemen. Diese Technik wandte ich während meiner Doktorarbeit bei der Untersuchung von Rb₂-Dimeren in einer magneto-optischen Falle (MOT; magneto-optical trap) an.

Die Moleküldynamik in ultrakalten Gasen gewann innerhalb des letzten Jahrzehnts an Interesse, wobei die Verwendung von kontinuierlichem Laserlicht die Erzeugung und Beeinflussung von Molekülen in der MOT ermöglichte. Das erlaubte die Untersuchung von Quantenphänomenen, wie Resonanzen, Interferenzen und Streuungen, mittels hochpräziser Spektroskopie. Die Verwendung von fs-Laserpulsen erweitert diese etablierten Techniken um einen neuartigen Ansatz zur Untersuchung und Steuerung der zugrunde liegenden Moleküldynamik in ultrakalten Gasen. Bei den niedrigen Temperaturen wird die Quantenmechanik sichtbarer, da sie bei der Wechselwirkung der Teilchen sowie bei den externen Freiheitsgraden berücksichtigt werden muss.

Mittlerweile gehört die MOT zum Standardwerkzeug der Atom- und Molekülphysik, seit vor ca. 15 Jahren die ersten erfolgreichen Experimente zur Kühlung von Atomen durch Laserlicht auf Temperaturen unter 1 μ K durchgeführt wurden [7, 8]. Ein Ziel der Forschung ist es, ultrakalte Moleküle herzustellen, deren Untersuchung neue Perspektiven für die Chemie, Metrologie und Quantenphysik eröffnet. Eine mögliche Quelle ist die Photoassoziation von ultrakalten Atomen zu ultrakalten Molekülen. Ein Ansatz hierfür ist die Verwendung von fs-Laserpulsen für die Untersuchung von Molekülen in der MOT. Im zweiten Teil meiner Arbeit berichte ich über die Untersuchung von Rb₂-Dimeren in einer MOT durch fs-Laserpulse mittels Pump-Probe-Spektroskopie. Dies ist die erste Untersuchung von Dimeren in einer MOT mit fs-Laserpulsen.

In den beiden folgenden Kapiteln sollen dem Leser die theoretischen Grundlagen der für diese Arbeit wichtigen Gebiete der Physik aufgezeigt werden. Das Kapitel 2 behandelt die Erzeugung, Charakterisierung und Formung von Femtosekunden-Laserpulsen. Dabei ist die Laserpulsformung für die kohärente Kontrolle primär wichtig. Im anschließenden Kapitel 3 beschreibe ich die Grundlagen der Moleküldynamik und die Wechselwirkung von Laserpulsen mit Molekülen. Diese Wechselwirkung wird experimentell durch die Ergebnisse in Kapitel 4 veran-

schaulich, welches die isotopenselektive Anregung von Alkali-Dimeren im Molekularstrahl behandelt. Zu Beginn des Kapitels wird die verwendete Molekularstrahlapparatur und das Prinzip des evolutionären Algorithmus dem Leser veranschaulicht. Die weitere Zweiteilung des Kapitels entsteht durch die Behandlung der beiden Alkalidimere NaK (Kapitel 4.3.3) und KRb (Kapitel 4.4.3). Die jeweiligen Experimente werden detailliert beschrieben und die gewonnenen Ergebnisse diskutiert. Weiterhin erläutere ich die Untersuchung des Rb₂-Dimers in einer magneto-optischen Falle (MOT). Die Apparatur und die Pump-Probe-Spektroskopie an Rb₂ in der MOT ist Thema des Kapitels 5. Das abschließende Kapitel 6 fasst die gewonnenen Ergebnisse zusammen und gibt einen kurzen Ausblick auf weitere interessante Experimente, die in der Zukunft Erfolg versprechen.