

# Kapitel 5

## Pump-Probe-Spektroskopie an $\text{Rb}_2$ -Molekülen in der MOT

Die Untersuchung von ultrakalten Gasen ist seit dem Vorschlag der Laserkühlung im Jahr 1975 von Nobelpreisträger T. Hänsch [85] ins Blickfeld der Forschung geraten. Mit der Verwirklichung der Laserkühlung von Atomen in einer magneto-optischen Falle von S. Chu und Mitarbeitern 1987 [8], die später mit einem Nobelpreis ausgezeichnet wurde, konnten die erzeugten ultrakalten Gase experimentell untersucht werden. Bis heute ist das komplexe System einer MOT theoretisch nicht vollständig beschreibbar und die experimentellen Untersuchungen bringen permanent unvorhergesehene Ergebnisse hervor.

Die physikalischen Eigenschaften der ultrakalten quantenmechanischen Systeme sind denen unter Zimmertemperatur konträr. Die atomare de Broglie-Wellenlänge wird größer als ein Hundertfaches der charakteristischen Länge, über die die chemische Bindung wirkt. Des Weiteren beträgt die Wechselwirkungszeit bei Stößen<sup>1</sup> ein Vielfaches der Lebensdauer eines angeregten Zustands bevor eine spontane Emission geschieht. Hochaufgelöste spektroskopische Messungen in ungebundenen Zuständen bieten sich in ultrakalten Gasen an, da die Dopplerverbreiterung klein im Gegensatz zur natürlichen Linienbreite ist.

Dieses Kapitel diskutiert die gewonnenen Ergebnisse von Pump-Probe-Spektroskopie an  $\text{Rb}_2$ -Molekülen in der MOT. Die Experimente fanden im Rahmen einer Kooperation der Freien Universität Berlin mit der Universität Freiburg statt. Die apparativen Gegebenheiten einer MOT sind auf der Freiburger Seite vorhanden, während von der Seite der Arbeitsgruppe von Prof. Wöste das Lasersystem für die Pump-Probe-Spektroskopie zur Verfügung steht. Die Freiburger MOT ist ein sehr kompakter Aufbau, der im Hinblick auf deren Transportfähigkeit konstruiert wurde. Die ersten gemeinsamen Messungen fanden im ersten Halbjahr 2005 statt [86], während die zweite Messzeit, aus der die diskutierten Ergebnisse stammen, seit Januar 2006 bis zur Abgabe dieser Arbeit und weiter hinaus

---

<sup>1</sup>Die Dauer des Stoßes.

stattfindet.

Das folgende Unterkapitel befasst sich mit der Funktionsweise einer MOT und beinhaltet die grundlegenden Erkenntnisse über das Rb<sub>2</sub>-Molekül. Im Anschluss daran stelle ich das verwendete Verstärkersystem vor, welches teilweise als Pump-laser für einen Non-collinear Optical Parametric Amplifier (NOPA) dient. Der Laseroutput des NOPAs und des 100 kHz-Verstärkersystems bilden den Pump-Probe-Aufbau, der anschließend daran beschrieben wird.

Das Ziel unserer durchgeführten Experimente, die Ergebnisse an sich und deren Diskussion werden in den darauf folgenden Kapiteln erläutert.

## 5.1 Die magneto-optische Falle (MOT)

Für die Funktionsweise einer magneto-optischen Falle (MOT) ist das Verständnis der Kühlung von Atomen durch Laser von großer Bedeutung. Die sog. Doppler-Kühlung geschieht durch eine optische Melasse, die in einer MOT auf den drei-dimensionalen Raum erweitert wird. Das vorliegende Kapitel wird diese Begriffe detailliert beschreiben und einen Überblick über die Stoßprozesse der Rb-Atome in der MOT und dem Erzeugen von ultrakalten Rb<sub>2</sub>-Molekülen durch Photoassoziation geben. Außerdem wird das Rb<sub>2</sub>-Molekül näher betrachtet, seine EPS vorgestellt und die Feinstruktur- und Hyperfeinstrukturaufspaltung besprochen.

### 5.1.1 Laserkühlung

Die Kühlung von Atomen durch Laser geschieht durch den Impulsübertrag der Photonen auf die beleuchteten Atome. Bei der Emission oder Absorption eines Photons wird sein Impuls auf das Atom übertragen und eine effektive Abbremsung - d.h. translatorische Kühlung - des Atoms kann unter Ausnutzung des Doppler-Effekts geschehen: Die *Doppler-Kühlung*. Bei einer Rotverschiebung des Laserlichts gegenüber der atomaren Resonanzfrequenz ist die Übergangswahrscheinlichkeit des Atoms größer, wenn es sich entgegen dem Laserstrahl bewegt, als wenn es ruht oder die gleiche Richtung besitzt. Bei der Betrachtung der Doppler-Kühlung muss beachtet werden, dass die spontanen Emissionen von Photonen isotrop über den Raumwinkel geschehen und sich der resultierende Impulsübertrag über eine Vielzahl von Zyklen der Absorption bzw. Emission wegmittelt. Somit ist ein effektiver Impulsübertrag in Richtung der Ausbreitungsrichtung des Laserlichts gewährleistet und die Atome werden abgebremst. Die auf die Atome wirkende Kraft [87] ergibt sich zu

$$F_{\text{Streuung}} = \underbrace{\hbar k}_{\text{Photonenimpuls}} \cdot \underbrace{\frac{1}{2\tau} \left( \frac{2I/I_S}{1 + 2I/I_S + 4(\omega_L - \omega_0 + kv)^2 \tau^2} \right)}_{\text{Streurate}} \quad (5.1)$$

Hierbei ist die Lebensdauer als  $\tau$  bezeichnet und befindet sich in der Größenordnung von  $10^{-8}$  s, welches eine erhebliche Beschleunigung von bis zu  $10^5$  mal der Gravitationsbeschleunigung verursacht. Die Sättigungsintensität  $I_S$  ist erreicht, wenn aufgrund der Lebensdauer des angeregten Zustands keine Photonen mehr absorbiert werden können. Der Laserstrahl ist definiert durch seine Intensität  $I$  und Frequenz  $\omega_L$ . Seine Verstimmung  $\delta = \omega_L - \omega_0$  gegenüber der Resonanzfrequenz der Atome  $\omega_0$  wird als rotverstimmt bezeichnet, wenn  $\delta < 0$ . Die Kraft hat die Form einer Lorentz-Verteilung um  $\omega_L - \omega_0 = 0$  (s. Abb. 5.1) und die effektive Verstimmung unter Berücksichtigung der Doppler-Verschiebung ist durch  $\omega_L - \omega_0 + kv$  gegeben.

Die Doppler-Kühlung kann bei Molekülen nicht verwendet werden, da kein geschlossenes 2-Niveau-System, wie bei Atomen, vorhanden ist. Bei Molekülen ist der angeregte Zustand nach Absorption eines Photons nicht nur durch die Auswahlregeln bestimmt, sondern auch durch die Franck-Condon-Faktoren (s. Kapitel 3.2). Emittiert ein Molekül ein Photon, werden verschiedene Impulsüberträge in mehrere Vibrationsniveaus verteilt. Diese werden Dunkelzustände genannt, da sie durch die Laserfrequenz nicht mehr anzuregen sind. Weiterhin findet in Molekülen eine interne Umverteilung der Energie auf nebenliegende Schwingungszustände statt, die sog. IVR (Intramolecular Vibrational Energy Redistribution) [88, 89]. Das System ist nicht geschlossen und der Prozess der Doppler-Kühlung kann nicht zyklisch wiederholt werden. Die Kühlung von Molekülen ist durch die Doppler-Kühlung nicht realisierbar, während die unten diskutierte Photoassoziation einen Weg zur Erzeugung von ultrakalten Molekülen bietet.

### Optische Melasse

Eine sog. optische Melasse kann im eindimensionalen Fall durch zwei identische ( $\delta_+ = \delta_-$ ;  $I_+ = I_-$ ) gegenläufige Laser erzeugt werden, die zur Resonanzfrequenz der beleuchteten Atome rotverstimmt sind. Alle Atome befinden sich nun in Resonanz mit einem der beiden Laser, so dass sie stets eine abbremsende Kraft erfahren, die sich aus der Summe der jeweiligen Kräfte beider Laser  $F = F_+ + F_-$  zusammensetzt, wobei für die Kräfte der Ausdruck in Glg. (5.1) gilt. Die Entwicklung dieses Ausdrucks für kleine Geschwindigkeiten ergibt für die resultierende Kraft

$$\begin{aligned} F &= -\frac{8\hbar k^2 \tau \delta I / I_S}{(1 + 2I/I_S + (2\tau\delta)^2)^2} v \\ &= -\alpha v \end{aligned} \quad (5.2)$$

Diese Form ist der typische Ausdruck für eine Reibungskraft, weswegen die geschwindigkeitsabhängige Kraft, hervorgerufen durch die gegenläufigen Laser, *optische Melasse* genannt wird. In Abb. 5.1 wird die Kraft  $F = F_+ + F_-$  bildlich dargestellt.

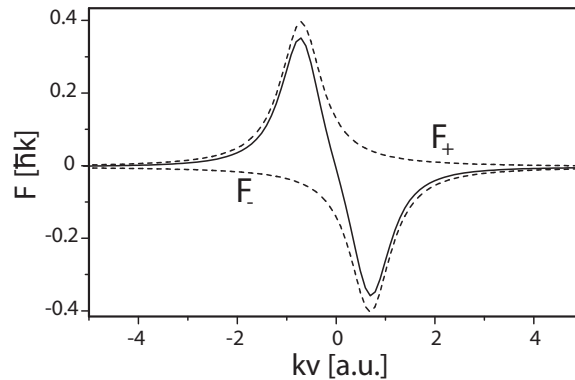


Abbildung 5.1: Die Spontankraft als Funktion der Geschwindigkeit. Die gestrichelt gezeichneten Kurven sind die Streukräfte  $F_+$  und  $F_-$  aus den einzelnen Laserstrahlen, die die Form einer Lorentz-Verteilung besitzen. Die Gesamtkraft  $F$  (durchgezogene Kurve) setzt sich aus den beiden Streukräften (s. Glg. (5.2)) zusammen. Für kleine Geschwindigkeiten lässt sich  $F$  sehr gut linear nähern.

Die Atome in der optischen Melasse werden durch ständige Absorption und Emission fortwährend beschleunigt und abgebremst. Ihre Bewegung ähnelt der Brownschen Molekularbewegung und wird 'Random Walk' genannt [90].

Die Grenze des Kühlprozesses, das sog. *Doppler-Limit*, ist erreicht, wenn das Kühlen durch Aufheizprozesse aus den vielen stochastischen, spontanen Emissionen kompensiert wird. Das Doppler-Limit gibt die erwartete tiefste Temperatur mit

$$k_B T = \frac{\hbar}{2\tau} \tag{5.3}$$

an, die für Rubidium bei  $143 \mu\text{K}$  liegt.

Durch Sub-Doppler-Kühlung kann jedoch eine noch tiefere Temperatur erreicht werden, indem die Entartung der Grundzustände ausgenutzt wird, wie es bei etablierten Techniken wie der Polarisationsgradientenmethode, der Sisyphuskühlung und der Verdampfungskühlung verwendet wird [90].

### 5.1.2 Die experimentelle Verwirklichung einer MOT

In einer MOT wird die optische Melasse auf den dreidimensionalen Raum erweitert, indem sechs paarweise gegenläufige Laserstrahlen verwendet werden. Atome in jeder Raumrichtung unterliegen somit dem Abbremsen und Beschleunigen durch ein identisches Laserstrahlpaar. Die gekühlten Atome erfahren durch die Lichtstrahlen nur eine geschwindigkeitsabhängige aber keine ortsabhängige Kraft, für die ein inhomogenes Magnetfeld notwendig wird. Ein solches wird durch das Quadrupol-Magnetfeld eines Anti-Helmholtzspulenpaares erzeugt, welches in sei-

ner Mitte verschwindet und die Atomwolke gefangen hält. Die Abb. 5.2 zeigt den schematischen Aufbau einer MOT mit dem Anti-Helmholtzspulenpaar und den sechs paarweise gegenläufigen Laserstrahlen.

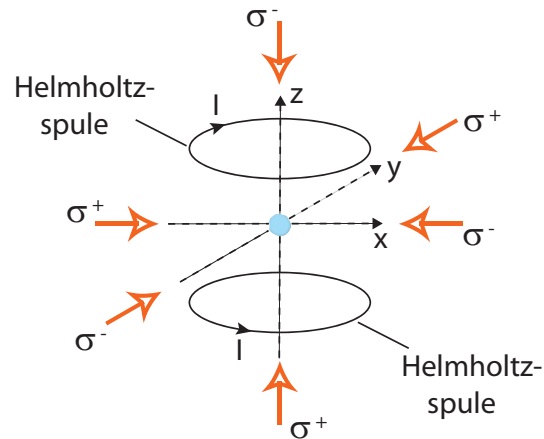


Abbildung 5.2: Die beiden Anti-Helmholtzspulen erzeugen ein inhomogenes Magnetfeld, welches in der Mitte Null ist, um eine lokalisierte Anhäufung der Atome zu erreichen. Die Atome werden durch die sechs paarweise gegenläufigen Laserstrahlen entgegengesetzter Helizität  $\sigma$  gekühlt.

Für die Fallenlaser wird zirkular polarisiertes Licht benötigt, da ansonsten aufgrund der Auswahlregeln des Zeemann-Effekts keine Wechselwirkung mit den Atomzuständen möglich wäre. Die Zeemann-Aufspaltung erzeugt für zirkular polarisiertes Licht ein Zwei-Niveau-System, indem die Resonanzfrequenzen verschoben und innerhalb der Falle ortsabhängig werden. Die zirkular polarisierten Laserstrahlen entgegengesetzter Helizität  $\sigma$  üben eine zentrierende Kraft unter dem Einfluss des Magnetfelds auf die Atome aus. Diese Kraft ist abhängig von der Geschwindigkeit und dem Ort, womit die resultierende Bewegung der Atome mit einem überdämpften harmonischen Oszillator verglichen werden kann. Die linear zum Magnetfeld stattfindende Aufspaltung der Niveaus durch den Zeemann-Effekt verdeutlicht die Abb. 5.3.

Die resultierende Kraft, die auf die Atome in der MOT wirkt, ist also eine zum Mittelpunkt der MOT weisende Kraft. Durch das Magnetfeld, dessen Gradient längs der Achse abnimmt, lässt sich auch die Resonanzbedingung aufrechterhalten. Dazu wird die kleiner werdende Dopplerverschiebung mit der sich im Magnetfeld synchron ändernden Zeemann-Aufspaltung kompensiert.

Die maximale Dichte der Atomwolke, die mit einer MOT erreicht werden kann, liegt um  $10^{11}$  Atome/cm<sup>3</sup> mit einer Atomanzahl von ca.  $10^7$  -  $10^8$ . Die Fallenfluoreszenz, bzw. die abgestrahlte Leistung  $I_{Falle}$ , ergibt sich dabei zu

$$I_{Falle} = N \cdot n \cdot h\nu \quad , \quad (5.4)$$

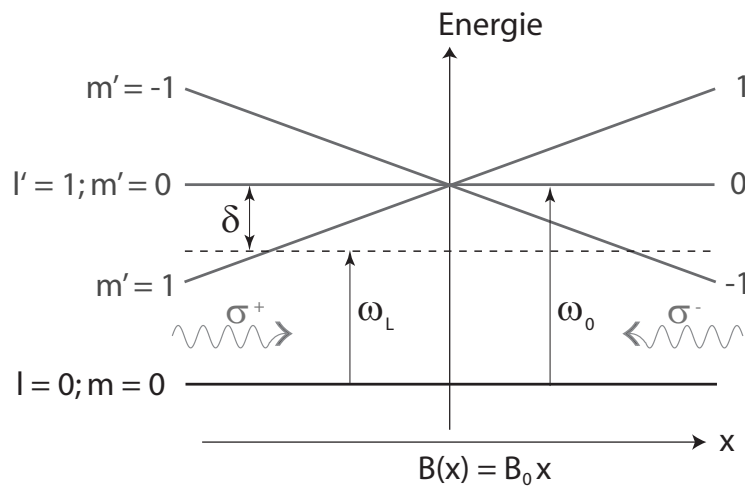


Abbildung 5.3: Das eindimensionale Schema zeigt die Zeemann-Aufspaltung des angeregten Zustands ( $l' = 1; m' = 0; \pm 1$ ) im Magnetfeld der Anti-Helmholtzspulen in der MOT. Die Fallenlaser mit der Anregungsfrequenz  $\omega_L$  sind um  $\delta = \omega_0 - \omega_L$  zur Resonanzfrequenz  $\omega_0$  der Atome rotverschoben und regen diese vom Grundzustand ( $l = 0; m = 0$ ) in den angeregten Zustand ( $l' = 1; m' = 0; \pm 1$ ) an. Die Entartung des angeregten Zustands wird im Magnetfeld in drei polarisationsabhängige Niveaus mit den magnetischen Quantenzahlen  $m = -1, 0, 1$  aufgespalten (Zeemann-Effekt). Die Aufspaltung verläuft linear zum angelegten Magnetfeld und erwirkt für positive Magnetfeldstärken (Abzisse) eine Verschiebung des  $m = 1$ -Niveaus zu höheren Energien (Ordinate) und für negative Feldstärken zu niedrigeren Energien.

Befindet sich ein Atom rechts vom Nullpunkt, erfährt das angeregte  $m = -1$ -Niveau eine Zeemann-Verschiebung in den Resonanzbereich der Laserstrahlen und das Atom ist in der Lage, ein von rechts kommendes  $\sigma^-$ -Photon zu absorbieren, welches eine rücktreibende Kraft zu  $x = 0$  verursacht. Links vom Nullpunkt ist der Prozess analog für  $m = 1$ . Die auf die Atome wirkende resultierende Kraft drängt diese ins Zentrum der MOT zu  $x = 0$ .

wobei  $N$  die Anzahl der Atome in der MOT,  $h\nu$  die Frequenz der Fluoreszenzphotonen und  $n$  die Streurrate ist. Eine Übersicht über die Funktionsweise einer MOT bieten [90, 91, 92].

Eine höhere Dichte der Atome kann durch eine sog. dark SPOT (dark-spot MOT) erreicht werden, die der folgende Abschnitt beschreibt.

### Die dark SPOT

Bei einer dark SPOT kann das Dichtelimit von  $10^{11}$  Atomen/ $\text{cm}^3$  gebrochen werden, indem der Strahlungsdruck im Zentrum verringert wird. Hierdurch wird der

Verlust in der MOT verkleinert, welches eine höhere Dichte zur Folge hat. Ein schwarzer Punkt<sup>2</sup> verhindert, dass Atome im durch den Fallenlaser nicht sichtbaren Grundzustandsniveau durch den sog. Rückpump laser wieder in - durch die Resonanzfrequenz - erreichbare Zustände gepumpt werden. Somit können sich die Atome in diesem 'nicht-sichtbaren' Grundzustandsniveau sammeln und höhere Atomwolkendichten erzielen. Sollten sich die dort gesammelten Atome aufheizen, laufen sie aus dem nicht-sichtbaren Bereich heraus und fließen in den üblichen Prozess ein, bis sie wieder in ihren Ursprung zurückfinden. Ein detaillierter Überblick der dark SPOT ist in [93, 94, 95] zu finden.

Die hier vorgestellten Messungen sind mit einer dark SPOT durchgeführt worden, deren genaue Spezifikationen ich in Kapitel 5.1.4 ausführe.

Die Stoßprozesse, die in einer MOT vorkommen, können in drei Arten unterteilt werden. Zum einen treten Stöße zwischen Atomen im Grundzustand auf, die der Van-der-Waals-Wechselwirkung unterliegen, die mit einem Potential proportional zu  $1/R^6$  beschrieben werden kann. Die Wechselwirkung bei einem Stoß eines angeregten Atoms mit einem Grundzustandsatom wird durch die resonanten Dipol-Kräfte bestimmt. Stoßen zwei angeregte Atome miteinander, so tritt die Quadrupol-Quadrupol-Wechselwirkung in Kraft. Genauere Beschreibungen von kalten Stoßprozessen bieten [96, 97, 98].

### Photoassoziation

Die Photoassoziation ist eine Methode, um ultrakalte Moleküle aus ultrakalten Atomen herzustellen. Bisherige Methoden sind die Stark-Abbremsung [99] und Puffergaskühlung [100], die Moleküle bis in den mK-Bereich kühlen können. Dabei ist jedoch die Temperatur der kalten molekularen Ensembles um Größenordnungen höher als bei Atomen und die Anzahl der gekühlten Moleküle deutlich geringer. Eine weitere Methode ist die Bildung von Molekülen in ultrakalten Gasen durch Änderung des Magnetfelds unter Ausnutzung der Feshbachresonanzen [101].

Die Photoassoziation wurde 1987 von Thorsheim vorhergesagt [102] und im Jahre 1993 zum ersten Mal an Na-Molekülen beobachtet [103]. Die Methode, schmalbandiges Laserlicht zur Photoassoziation zu verwenden, erzeugte ebenso ultrakalte Moleküle im Grundzustand von Cäsium [104] und Rubidium [105]. Die Theorie gibt die Photoassoziation als Weg zur Molekülbildung an [106], die mit einer anschließenden Photostabilisierung mittels optimaler Kontrolle die Erzeugung ultrakalter Moleküle im untersten Vibrationsniveau ermöglicht [107]. Die Photoassoziation und -stabilisierung kann bei  $\text{Rb}_2$  durch einen ca. 12 ps langen und energetisch extrem breiten Puls verwirklicht werden [107]. Aufgrund der angestrebten Prozesse beinhaltet der optimierte Puls ein breites Frequenzspektrum

<sup>2</sup>Wegen des schwarzen Punktes im Rückpumperstrahl wird dieser Aufbau dark SPOT genannt.

von ca. 6000 cm<sup>-1</sup>, welches eine experimentelle Umsetzung stark verkompliziert. Als ein erster Ansatz kann die experimentelle Verwirklichung der Photoassoziation durch fs-Laserpulse verstanden werden.

Das Prinzip der Photoassoziation ist ein ungebunden-gebundener Übergang, der in Abb. 5.4 veranschaulicht wird. Ein Pump-Puls überführt ungebundene Atome in einen angeregten gebundenen Zustand, während ein Dump-Puls Population in den Grundzustand transferiert. Durch 'chirpen' (s. Kapitel 2.1.2) des Pump-Pulses können effizientere Übergangsraten zum angeregten Zustand erhalten werden und das Wellenpaket kann am inneren Umkehrpunkt zu maximaler Dichte interferieren, welches die Effizienz des Dump-Pulses erhöht.

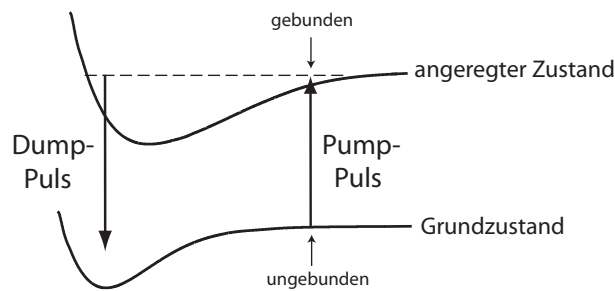


Abbildung 5.4: Der Pump-Puls führt einen ungebunden-gebundenen Übergang durch und der Dump-Puls transferiert Population in den Grundzustand.

Die Referenzen [96, 97, 98] geben eine Übersicht über die Photoassoziation von Molekülen.

### 5.1.3 Das Rb<sub>2</sub>-Molekül

Da die Experimente an einer MOT mit Rubidium durchgeführt wurden, soll dieses Unterkapitel einen Überblick über die EPS von Rb<sub>2</sub> und der Feinstruktur- und Hyperfeinstrukturaufspaltung geben.

Die Energiepotentialkurven des Rubidium-Dimers haben eine große Ähnlichkeit mit den Molekülzuständen des H<sub>2</sub>-Dimers<sup>3</sup>. Die Rb(5s)-Valenzelektronen verhalten sich für die Bindung analog den 1s-Funktionen des H-Atoms, so wie auch das Rb(5p)-Valenzelektron seinem Verhalten nach dem H(2p)-Elektron sehr ähnelt.

Der Grundzustand des Rb<sub>2</sub>-Dimers, der <sup>1</sup>Σ<sub>g</sub><sup>+</sup>-Zustand, besitzt eine kleinere Bindungsenergie  $D_e = 0.49$  eV als H<sub>2</sub>, da nur 5s-Elektronen signifikant zur Bindungsenergie beitragen. Ansonsten ähnelt er jedoch dem H<sub>2</sub>-Grundzustand sehr und sein Gleichgewichtsabstand befindet sich bei  $R_e \approx 7.9$  bohr [108]. Das <sup>3</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>-Potential entsteht ebenfalls aus Atomen im Grundzustand, besitzt eine Bindungsenergie von  $D_e = 0.04$  eV und einen Gleichgewichtsabstand von  $R_e \approx 12$  bohr

<sup>3</sup>Alle Alkalis verhalten sich Wasserstoff sehr ähnlich.



[109].

### Die angeregten Zustände

Bei einer Wechselwirkung von einem angeregten und einem Grundzustandsatom Rb(5p)+Rb(5s) entstehen acht Born-Oppenheimer-Potentialkurven. Im Hundschen Fall (a) tragen sie die Bezeichnungen:  $^{1,3}\Pi_{g,u}$ ,  $^{1,3}\Sigma_{g,u}$ . Aufgelistet nach sinkender Bindungsenergie heißen die Zustände:  $^3\Pi_u$ ,  $^1\Sigma_u$ ,  $^3\Sigma_g$ ,  $^1\Sigma_g$ ,  $^1\Pi_u$  und  $^1\Pi_g$ , während  $^3\Sigma_u$  und  $^3\Pi_g$  dissoziative Zustände sind. Die Potentialkurven mit der Bezeichnung nach dem Hundschen Fall (a) sind in Abb. 5.5 zu sehen und deren Molekülkonstanten in [92] zu finden.

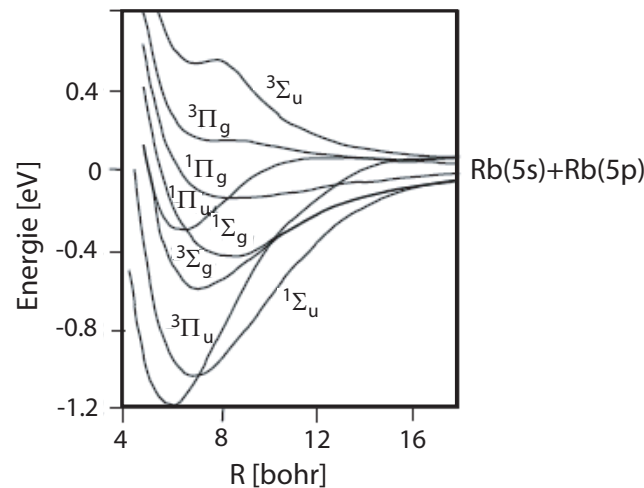


Abbildung 5.5: Die EPS aus der Wechselwirkung eines Atoms aus dem Grundzustand und einem angeregten Atom Rb(5p)+Rb(5s) mit den Bezeichnungen nach dem Hundschen Fall (a).

Im Hundschen Fall (c) wird die Feinstrukturaufspaltung mitbetrachtet und die Tabelle 5.1 zeigt die Korrelationen zwischen den Bezeichnungen der Molekülzustände im Hundschen Fall (a) und (c) auf.

Die *Hyperfeinstruktur* der Zustände koppelt den Elektronenspin  $\vec{s}$  zum Kernspin  $\vec{i}$ . Der Gesamtdrehimpuls  $F$  ist die Summe von Bahndrehimpuls, Elektronenspin und Kernspin. D.h.  $F$  setzt sich zusammen aus  $\vec{l}_a$ ,  $\vec{s}_a$  und  $\vec{i}_a$  des angeregten  $^2P$ -Atoms und  $\vec{s}_b$  und  $\vec{i}_b$  des  $^2S$ -Grundzustandsatoms, bei dem der Bahndrehimpuls  $\vec{l}_b = 0$  ist. Die Zustände mit  $F > 0$  sind doppelt entartet mit den Symmetrien + und -. Insgesamt entstehen 384 adiabatische Potentialkurven aus dem angeregten Dissoziationslimit Rb(5p)+Rb(5s) die in Abb. 5.6 gezeigt sind.

Die beiden Isotope des Rubidium-Dimers ( $^{85}\text{Rb}_2$  und  $^{87}\text{Rb}_2$ ) sind Bosonen und ihr natürlicher Isotopenanteil beträgt 72.17 % für das  $^{85}\text{Rb}_2$ -Isotopomer und 27.83

<sup>2</sup> P + <sup>2</sup> S Hundscher Fall (a)	<sup>2</sup> P <sub>1/2</sub> + <sup>2</sup> S <sub>1/2</sub> Hundscher Fall (c)	<sup>2</sup> P <sub>3/2</sub> + <sup>2</sup> S <sub>3/2</sub> Hundscher Fall (c)
<sup>1</sup> Σ <sub>g</sub>	–	0 <sub>g</sub> <sup>+</sup>
<sup>1</sup> Σ <sub>u</sub>	0 <sub>u</sub> <sup>+</sup>	–
<sup>3</sup> Σ <sub>g</sub>	0 <sub>g</sub> <sup>–</sup> , 1 <sub>g</sub>	–
<sup>3</sup> Σ <sub>u</sub>	–	0 <sub>u</sub> <sup>–</sup> , 1 <sub>u</sub>
<sup>1</sup> Π <sub>g</sub>	–	1 <sub>g</sub>
<sup>1</sup> Π <sub>u</sub>	–	1 <sub>u</sub>
<sup>3</sup> Π <sub>g</sub>	0 <sub>g</sub> <sup>+</sup>	0 <sub>g</sub> <sup>–</sup> , 1 <sub>g</sub> , 2 <sub>g</sub>
<sup>3</sup> Π <sub>u</sub>	0 <sub>u</sub> <sup>–</sup> , 1 <sub>u</sub>	0 <sub>u</sub> <sup>+</sup> , 2 <sub>u</sub>

Tabelle 5.1: Die Tabelle gibt die Korrelationen der Molekülzustandsbezeichnungen im Hundschen Fall (a) und (c) an.

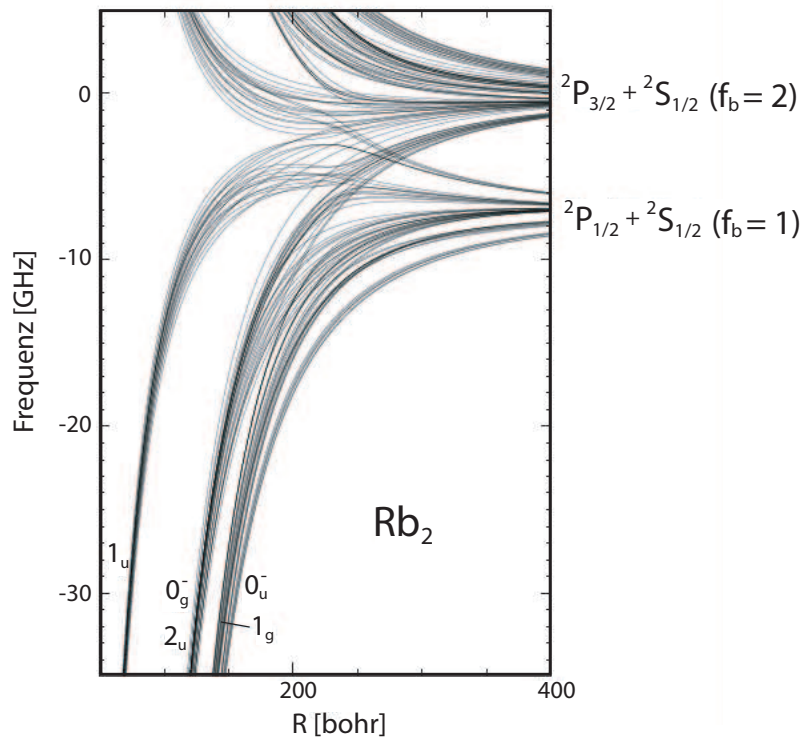


Abbildung 5.6: Die 384 Rb(5p)+Rb(5s) Zustände resultierend aus der Hyperfein-  
 strukturaufspaltung mit den Bezeichnungen nach dem Hundschen Fall (c). Das  
 Bild ist entnommen aus [92].

% für  $^{87}\text{Rb}_2$ . Der Kernspin ergibt sich zu  $5/2$  für das leichtere Isotopomer und zu  $3/2$  für das schwerere  $^{87}\text{Rb}_2$ -Isotopomer. Die  $^2S_{1/2} \rightarrow ^2P_{3/2}$ -Übergangsfrequenz beträgt bei beiden Isotopomeren 780.2 nm.

### 5.1.4 Aufbau der magneto-optischen Falle (dark SPOT)

Die transportable Freiburger MOT ist eine dark SPOT mit  $^{85}\text{Rb}$ -Atomen. An dieser Stelle gebe ich nur eine Übersicht über die Funktionsweise der Freiburger MOT, während eine detaillierte Beschreibung in der Dissertation von Wenzel Salzmann [110] zu finden ist, der diese Apparatur im Rahmen seiner Doktorarbeit aufbaute.

Das in der MOT herrschende Ultrahochvakuum erzeugt einen Druck von  $10^{-9}$  mbar, und die Rb-Atomwolke wird mit Hintergrundgas aus einem Dispenser<sup>4</sup> angereichert. Zur Erzeugung des inhomogenen Magnetfelds wird ein Anti-Helmholtzspulenpaar verwendet, und zur Kompensation des Erdmagnetfelds sind drei weitere Spulenpaare an der Apparatur vorhanden. Die  $\text{Rb}_2^+$ -Moleküle werden durch ein angelegtes konstantes elektrisches Feld von 40 V/cm aus der Falle extrahiert und über ein Quadrupolmassenspektrometer massenselektiert, bevor sie mittels einer Ein-Ionen-Detektion nachgewiesen werden.

Die Fallenlaser werden über polarisationserhaltende Monomodenzfasern vom Lasertisch im Nebenraum zur MOT-Apparatur geleitet, dort mittels einer Linse auf 2.5 cm Durchmesser aufgeweitet, in die MOT geführt und hinter der Apparatur mit Spiegeln in sich zurückreflektiert. Bei der Rückreflexion wird die Polarisation durch zweimaliges Durchlaufen einer  $\frac{\lambda}{4}$ -Platte von  $\sigma^+$  auf  $\sigma^-$  gedreht.

#### Das Lasersystem der MOT

Das Lasersystem besteht aus zwei gitterstabilisierten Diodenlasern in Littrowstellung, dem Fallen- und dem Rückpumplaser. Der Rückpumplaser bringt Atome in Dunkelzuständen wieder in durch den Fallenlaser anregbare Zustände und führt sie in den Kühlzyklus zurück. Beide Laser sind durch frequenzmodulierte dopplerfreie Sättigungsspektroskopie an einer Rb-Gaszelle auf die jeweiligen Frequenzen stabilisiert. Der Fallenlaser besitzt die Frequenz des  $F = 3 \rightarrow F' = 4$ -Übergangs mit einer Verschiebung von 17 MHz. Der Rückpumplaser pumpt die durch spontane Emission auf den  $F = 2$  Grundzustand gefallenen Atome in den Kühlzyklus zurück, indem er auf die  $F = 2 \rightarrow F' = 3$ -Übergangsfrequenz gestimmt ist. Die angeregten Atome des  $F' = 3$  Zustands zerfallen mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit nicht nur in den  $F = 3$  Grundzustand, der resonant mit dem Fallenlaser ist, sondern ebenso in den  $F = 2$  Grundzustand. Die Atome in diesem Grundzustand würden aus dem Kühlzyklus hinausfallen, welches der Rückpumplaser mit der Anregung dieser Atome in den angeregten  $F' = 3$

<sup>4</sup>Die Apparatur enthält vier austauschbare Dispenser.

Zustand verhindert, da von dort aus der Zerfall in den  $F = 3$  Grundzustand wieder möglich wird. Die Abb. 5.7 gibt das Schema der  $^{85}\text{Rb}_2$ -Energieniveaus mit Hyperfeinstrukturaufspaltung und den Laserfrequenzen in der MOT wieder.

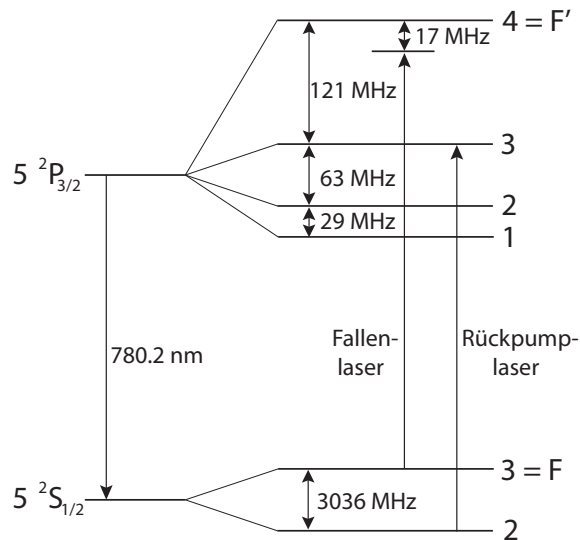


Abbildung 5.7: Das Schema zeigt die  $^{85}\text{Rb}_2$ -Energieniveaus mit Hyperfeinstrukturaufspaltung sowie die Laserfrequenzen des Fallen- und Rückpumpasers der MOT. Der Fallenlaser ist um 17 MHz gegenüber der Übergangsfrequenz  $F = 3 \rightarrow F' = 4$  verstimmt, während der Rückpumplaser die Frequenz des  $F = 2 \rightarrow F' = 3$ -Übergangs besitzt.

Die Linienbreite der verwendeten Diodenlaser beträgt  $\approx 5$  MHz und die maximale Leistung von 20 mW wird beim Rückpumplaser abgeschwächt, da dieser Übergang weniger relevant ist.

Der Aufbau des MOT-Lasersystems und der zugehörigen Schaltelektronik sind ausführlich in [110] und ebenso in [111] enthalten und werden an dieser Stelle nicht ausgeführt. Nur kurz möchte ich anmerken, dass die Intensität beider Laser in 3 Strahlen aufgeteilt wird, die über die Fasern zur MOT geführt werden, wo sie die optische Melasse in den drei Raumrichtungen erzeugen.

Die Realisierung der dark SPOT (s. Kapitel 5.1.2) geschieht durch schwarze Punkte in den Laserstrahlen des Rückpumplasers. Damit können  $10^8$  Rb-Atome bei einer Temperatur von 100  $\mu\text{K}$  in der MOT gefangen und Dichten von  $10^{11}$  Atomen/ $\text{cm}^3$  erreicht werden. Dabei werden 90 % der Atome im  $F = 2$  (s. Kapitel 5.1.3) Hyperfein-Grundzustand gehalten, indem der Rückpumplaser um 30 MHz zum Hyperfein-Übergang  $F = 2 \rightarrow F' = 3$  verstimmt wird. Die angegebenen Daten der Dichte und Atomanzahl wurden durch Absorptionsmessungen bestimmt.

## 5.2 Lasersystem und Pump-Probe-Aufbau

Die für die Pump-Probe-Experimente verwendeten fs-Laserpulse werden durch ein 100 kHz-Verstärkersystem, welches im anschließenden Unterkapitel nähergebracht wird, und einen nicht-linearen parametrischen Verstärker, dem NOPA, dessen Aufbau und Funktionsweise im Anschluss daran erläutert wird, erzeugt. Das dritte Unterkapitel beschreibt den für die Pump-Probe-Spektroskopie verwendeten Aufbau.

### 5.2.1 Das 100 kHz-Verstärkersystem

Die Grundlagen der Verstärkung von fs-Laserpulsen wurden schon in Kapitel 2.1.2 diskutiert, während hier die Details des verwendeten Lasersystems aufgeführt werden. Als *Seed*-Laser des Verstärkers<sup>5</sup> wurde der fs-Oszillator Mira [14], der in Kapitel 4.4.1.2 näher beschrieben wurde, verwendet. Zur Erzeugung der hohen Besetzungsinversion des Ti:Saphir-Verstärkerkristalls wurde der cw-Laser Millennia X [60] mit 10 W Leistung bei einer Wellenlänge von 532 nm, bekannt aus dem Kapitel 4.3.1.2, benutzt. Wie in Kapitel 2.1.2 beschrieben, werden die fs-Pulse des Miras vor der Verstärkung durch den RegA im Stretcher gestreckt, erfahren dann im RegA ihre Verstärkung und werden anschliessend im Kompressor zu ihrer vorherigen zeitlichen Länge rückkomprimiert.

Die Repetitionsrate des regenerativen Verstärkers RegA [17] ist im Bereich von 10 bis 300 kHz veränderbar. Bei den hier vorgestellten Experimenten wurde mit einer Repetitionsrate von 100 kHz gemessen und die Energie der verstärkten Pulse beträgt  $3.5 \mu\text{J}/\text{Puls}$ . Das Verstärkersystem ist in der Lage, fs-Pulse in einem Wellenlängenbereich von 780 bis 840 nm zu verstärken, die dann eine FWHM von ca. 25 nm bei einer Länge von 50-80 fs besitzen.

Bei den Pump-Probe-Experimenten wurden 10 % des RegA-Signals für den Pump-Puls verwendet und die restlichen 90 % pumpten den NOPA, der in dem folgenden Kapitel beschrieben wird.

### 5.2.2 Der NOPA

Die Abkürzung NOPA leitet sich aus der Bezeichnung Non-collinear Optical Parametric Amplifier her. NOPAs, die durch blaues frequenzverdoppeltes Ti:Saphir-Licht eines Verstärkers (hier vom RegA) gepumpt werden, sind eine bequeme Quelle von kontinuierlich durchstimmbaren ultrakurzen Pulsen im Sichtbaren und nahen Infrarot für spektroskopische Experimente.

Im Aufbau eines NOPAs wird der verstärkte Ti:Saphir-Puls in zwei unterschiedlich starke Teile aufgespaltet. Der stärkere Teil wird in einem BBO-Kristall

---

<sup>5</sup>RegA Model 9000 Laser; Coherent Laser Group [17]

frequenzverdoppelt, und ein geringer Prozentsatz des ursprünglichen Ti:Saphir-Lichts wird zur Weißlichterzeugung [112, 113] verwendet, wobei der Laserpuls in einem Saphir-Kristall fokussiert wird.

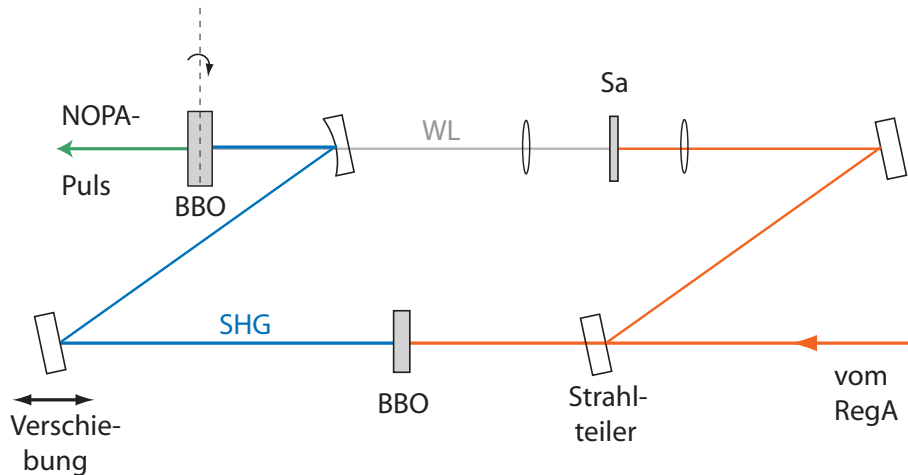


Abbildung 5.8: Der RegA-Puls wird zur Erzeugung des Weißlichts (WL) im Saphir-Kristall und der Frequenzverdoppelten (SHG) im BBO-Kristall aufgespaltet. Die Pulse werden dann in einem BBO-Kristall zeitlich und räumlich überlagert und erzeugen den NOPA-Puls. Durch eine Verschiebung des frequenzverdoppelten Pulses gegenüber dem Weißlicht-Puls kann die resultierende NOPA-Wellenlänge durchgeführt werden.

Der Weißlicht-Puls und der frequenzverdoppelte blaue Puls werden unter einem kleinen Winkel in einem BBO-Kristall zum zeitlichen und räumlichen Überlapp gebracht. Der entstehende NOPA-Puls kann durch Verzögerung des frequenzverdoppelten Laserpulses in seiner Wellenlänge verändert werden. Die Abb. 5.8 zeigt einen schematischen Aufbau des verwendeten NOPAs. Eine detaillierte Beschreibung des von Mateusz Plewicki gebauten NOPAs liefert seine Dissertation [114]. Weitere Übersichten geben Veröffentlichungen der Arbeitsgruppe Riedle [115, 116]. Dort wird gezeigt, dass mit einer durchaus üblichen Kompressionsstrecke nach dem NOPA-Aufbau Pulse mit einer Länge unter 20 fs erzeugt werden können. In diesen Experimenten ist eine solche zeitliche Kürze jedoch nicht notwendig.

### 5.2.3 Aufbau des Pump-Probe-Experiments

Das Prinzip der Pump-Probe-Spektroskopie erläuterte ich in Kapitel 3.3. Dieses Kapitel soll nun den Aufbau des Pump-Probe-Experiments an der MOT erklären. Der verwendete Aufbau dient zur Durchführung von Zwei-Farben-Pump-Probe-

Spektroskopie, d.h. der Pump- und der Probe-Puls besitzen unterschiedliche Laserfrequenzen zur Anregung des untersuchten Moleküls.

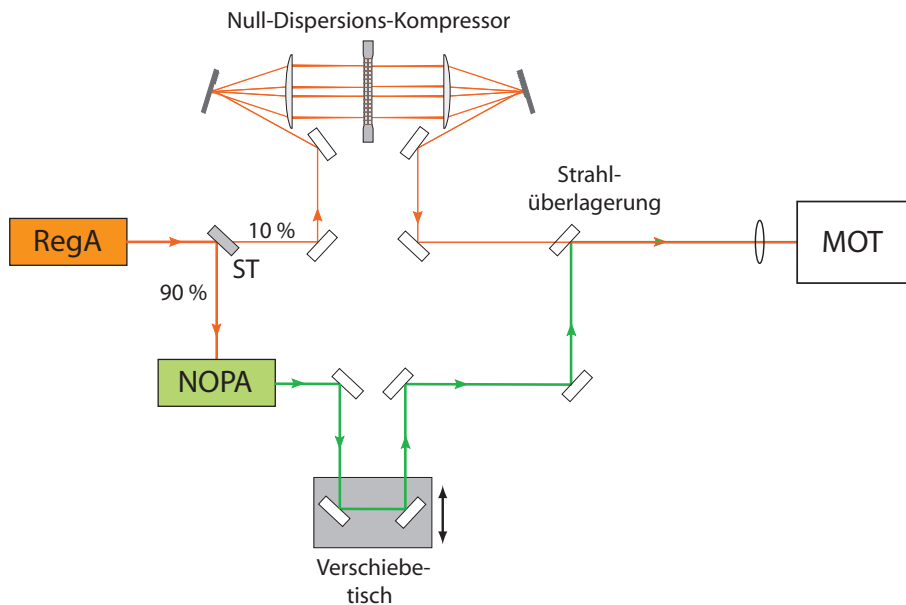


Abbildung 5.9: Der verstärkte fs-Puls des RegAs wird durch einen Strahlteiler (ST) aufgespalten. 10 % des Strahls durchlaufen den Null-Dispersions-Kompressor zum Verändern seines Pulsspektrums und werden dann kollinear mit dem NOPA-Puls überlagert. Der NOPA wird durch 90 % der Intensität des RegA-Pulses gepumpt und der entstehende Puls kann mit Hilfe des Verschiebetisches zeitlich mit dem Pump-Puls überlagert werden. Anschließend werden Pump- und Probe (NOPA)-Puls in die MOT fokussiert.

Im experimentellen Aufbau wird der ursprüngliche verstärkte fs-Laserpuls aus dem RegA mit einem Strahlteiler aufgespalten. 10 % des RegA-Pulses wird als Pump-Puls verwendet, während der andere Strahlteil den NOPA pumpt. Der NOPA-Output steht als Probe-Puls zur Verfügung und kann gegenüber dem Pump-Puls zeitlich mittels einer Verzögerungsstrecke verschoben werden (s. Abb. 5.9). Der verstärkte fs-Puls durchläuft den Aufbau des in Kapitel 4.4.1.2 beschriebenen Pulsformers und wird anschließend mit dem Probe-Puls zeitlich und räumlich kollinear überlagert, bevor die Laserpulse in die MOT-Apparatur mit Hilfe einer Linse der Brennweite  $f = 300$  mm fokussiert werden. Die Abb. 5.9 veranschaulicht die experimentelle Verwirklichung des Pump-Probe-Aufbaus.

Das Durchlaufen des Null-Dispersions-Kompressor-Aufbaus des Pulsformers vom Pump-Puls ermöglicht, diesen in seinen spektralen Komponenten zu manipulieren. In der Fourier-Ebene des Pulsformers ist das Pulsspektrum räumlich

auf mehrere Zentimeter aufgeweitet, welches das Abschneiden von Frequenzkomponenten des Pulses durch einen physikalischen Blocker in der Fourier-Ebene ermöglicht. Der Blocker - realisiert durch eine Rasierklinge - kann im blauen oder roten Bereich des Spektrums eingesetzt werden und besitzt beim Abschneiden des Spektrums eine spektrale Auflösung von mehr als  $1 \text{ cm}^{-1}$ . In Abb. 5.10 ist diese Vorgehensweise visualisiert und ein auf der blauen Seite abgeschnittenes Spektrum gezeigt. Die Positionierung des Blockers in der Fourierebene erfolgt über eine Mikrometerschraube. Zur Positionsbestimmung der atomaren Übergangsfrequenzen in der Fourierebene wurde das Spektrum vor jeder Messung durch die Aufnahme der MOT-Fluoreszenz in Abhängigkeit von der Blockerposition bestimmt.

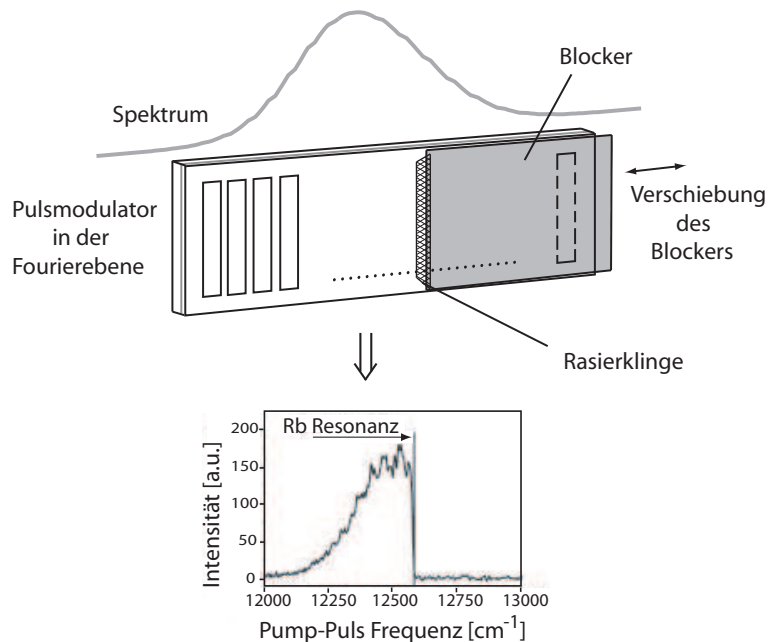


Abbildung 5.10: Das Gauß-förmige Spektrum des Pump-Pulses wird in der Fourierebene des Null-Dispersions-Kompressors auf einer Seite durch eine Rasierklinge an einem Blocker abgeschnitten. Das resultierende Spektrum zeigt die untere Bildhälfte.

Die Wellenlängen des Pump- und Probe-Pulses werden jeweils bei den gezeigten experimentellen Ergebnissen angegeben und liegen beim Probe-Puls um die 780 bis 800 nm mit einer FWHM von ca. 30 nm. Der Probe-Puls befindet sich mit seiner Zentralwellenlänge im Bereich von 496 bis 505 nm bei einer FWHM von ca. 25 nm und die Leistung der NOPA-Pulse beträgt 50 nJ/Puls. Die gemessenen Autokorrelationen beider Pulse bestimmten die zeitliche Länge des Pump-Pulses zu 180 fs und des Probe-Pulses zu 600 fs. Nach dem Passieren einer fokussierenden Linse beträgt die Peakintensität des Pump-Pulses  $2.5 \cdot 10^4 \text{ MW/cm}^2$  und des



Probe-Pulses  $1.4 \cdot 10^3$  MW/cm<sup>2</sup>, wobei die geringsten Strahldurchmesser 100 und 120  $\mu$ m sind.

### 5.3 Ziel der Experimente

Das Ziel der Kooperation der Arbeitsgruppe von Prof. Weidemüller aus Freiburg und der Arbeitsgruppe von Prof. Wöste in Berlin ist, in einer MOT Rb-Atome zu Dimeren zu photoassoziiieren - induziert durch einen ungebunden-gebundenen Übergang mit fs-Pulsen. Die entstandenen Moleküle sollen anschließend so weit wie möglich in niedrige Vibrationsniveaus des Grundzustands hinuntergekühlt werden. Als Etappenziel dient die Untersuchung von Rb<sub>2</sub>-Molekülen in Abhängigkeit der anregenden fs-Laserpulse. Welche Unterschiede ergeben Experimente an der D<sub>1</sub>- und D<sub>2</sub>-Linie, und welche Wellenlänge ist optimal für die Anregung? Was bewirkt ein Chirp der fs-Pulse, und wie ist überhaupt die Struktur der Wellenpaketoszillationen? In wieweit die bisherigen Ergebnisse das Hauptziel verfolgen und welche Erkenntnisse gewonnen werden können, wird die Diskussion der Ergebnisse im folgenden Kapitel zeigen.

## 5.4 Fs-Pump-Probe-Spektroskopie an Rb<sub>2</sub> in der MOT

Die durchgeführten Zweifarben-Pump-Probe-Messungen an Rb<sub>2</sub> in der MOT ergaben eine Vielzahl von Messergebnissen, die ich zunächst vorstellen möchte. Im Vergleich zur ersten Meßperiode im ersten Halbjahr des Jahres 2005 [86] sind die Pump-Probe-Messungen ein großer Fortschritt, da Wellenpaketoszillationen des Rb<sub>2</sub>-Dimers beobachtet werden konnten.

Das Prinzip des Experiments wurde bereits in Kapitel 5.2.3 aufgezeigt und die detaillierteren Beschreibungen werde ich bei der jeweiligen Vorstellung der Ergebnisse geben. Diese werden in Messungen an der D<sub>1</sub>- und D<sub>2</sub>-Linie des Rb<sub>2</sub>-Moleküls unterteilt. Dabei wurde die Zentralfrequenz des Pump-Pulses um 5 nm zu den jeweiligen Übergangsfrequenzen der Linien rot verstimmt. Der Übergang  $^2S_{1/2} \rightarrow ^2P_{1/2}$  führt den atomaren Grundzustand in einen angeregten Zustand zur D<sub>1</sub>-Linie über und bedarf einer Wellenlänge von 795.0 nm. Der Übergang zur D<sub>2</sub>-Linie bei einer Wellenlänge von 780.2 nm endet im angeregten  $^2P_{3/2}$ -Zustand. Das Spektrum des Pump-Pulses wurde bei den Messungen manipuliert, so dass entweder der blaue oder rote Teil zusätzlich zur jeweiligen D-Linie - wie in Kapitel 5.2.3 erläutert - durch einen physikalischen Blocker in der Fourierebene des Pulsformers abgeschnitten wurde.

Das folgende Unterkapitel stellt die gewonnenen Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie zunächst ohne Interpretation vor. Im nachfolgenden Kapitel werde ich das beobachtete Verhalten der Wellenpaketoszillationen in zwei unterschiedliche Erklärungsschemata einordnen und diese kritisch diskutieren.

### 5.4.1 Darstellung der Ergebnisse

Bei den vorgestellten Pump-Probe-Experimenten wurde mit einer dark SPOT gemessen, die in Kapitel 5.1.4 vorgestellt wurde.

Das Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Molekülsignal wird bei den Pump-Probe-Messungen in Abhängigkeit von der zeitlichen Verzögerung des Pump- und Probe-Pulses zueinander detektiert. Der Nachweis der Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Moleküle geschieht dabei wie in Kapitel 5.1.4 beschrieben.

#### 5.4.1.1 Messungen an der D<sub>1</sub>-Linie

Die Experimente an der D<sub>1</sub>-Linie wurden mit einem Pump-Puls bei einer Zentralwellenlänge von  $\lambda \approx 800$  nm mit einer FWHM von  $\Delta\lambda \approx 22$  nm durchgeführt. Der Puls besaß eine Leistung von 55 mW nach einer fokussierenden Linse hinter der Laserpulsauskopplung, die vor der MOT-Appratur nur noch in etwa 11 mW betrug<sup>6</sup>. Eine Untersuchung der Abhängigkeit des Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Molekülsignals von der

---

<sup>6</sup>Der Pump-Puls besteht aus 10 % der Leistung des 100 kHz-RegA-Laserpulses.

NOPA-Wellenlänge zeigte ein eindeutiges Schwellenverhalten<sup>7</sup>, wobei eine Wellenlänge von  $\lambda_{NOPA} = 496$  nm die höchste  $\text{Rb}_2^+$ -Signalstärke erbrachte. Bei den folgenden Messungen wurden NOPA-Pulse mit einer FWHM von  $\Delta\lambda \approx 22$  nm und einer Leistung von  $P \approx 40$  mW nach einer fokussierenden Linse verwendet. Vor der MOT-Apparatur betrug die Leistung ca. 8 mW. Die Leistung und die FWHM der Pulse schwankte dabei innerhalb eines kleinen Bereichs, welches auf die Experimente keinen großen Einfluss nahm.

Das Spektrum des RegA-Pulses wurde bei den Pump-Probe-Messungen so manipuliert, dass entweder die blaue oder die rote Seite des Spektrums mit der atomaren Resonanz bei der  $D_1$ -Linie von 795 nm blockiert wurde. Die Zentralwellenlänge des RegA-Pulses wurde bewusst 5 nm zur  $D_1$ -Linie rot verschoben gewählt, so dass sich die höchsten spektralen Intensitäten auf der roten Seite der  $D_1$ -Linie befinden.

In den gezeigten Messungen werden die Kantenpositionen<sup>8</sup> des physikalischen Blockers in der Fourierebene des Pulsformers (s. Kapitel 5.2.3), der vom RegA-Puls durchlaufen wird, angegeben, die sich immer auf die  $D_1$ -Linie bezieht. Befindet sie sich beispielsweise  $8\text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $D_1$ -Linie, wird das gesamte Spektrum des Pulses blau verschoben von der  $D_1$ -Linie, die  $D_1$ -Linie und  $8\text{ cm}^{-1}$  darüber hinaus blockiert. Dies wird durch das Pulsspektrum in Abb. 5.11 veranschaulicht, bei dem die Kante sich  $8\text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $D_1$ -Linie befindet.

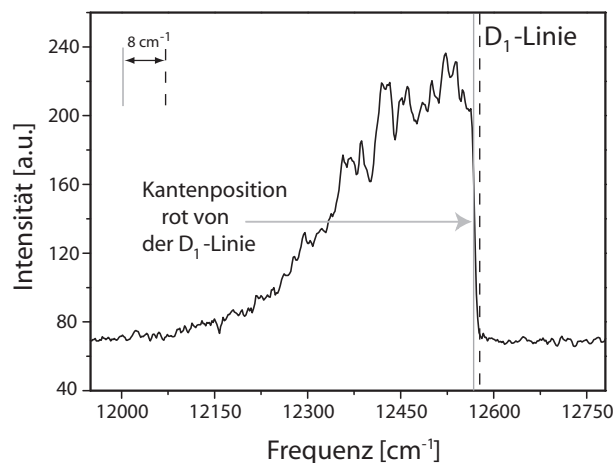


Abbildung 5.11: Das Spektrum des Pump-Pulses wird in der Fourierebene des Pulsformers so manipuliert, dass entweder der rote oder blaue Teil, bezogen auf die  $D_1$ -Linie, mit der atomaren Resonanz blockiert wird. Die Kantenposition des Blockers ist in diesem Fall  $8\text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $D_1$ -Linie.

<sup>7</sup>Das Schwellenverhalten wird bei der  $D_2$ -Linie näher besprochen.

<sup>8</sup>Als Kantenposition wird die Position der äußeren Kante der Rasierklinge am Blocker in der Fourierebene bezeichnet (s. Abb. 5.10).

Bei einer Kantenposition blau verschoben von der  $D_1$ -Linie wird die andere Seite des Pulsspektrums mit der  $D_1$ -Linie bis zu der Angabe der Kantenposition blockiert. Für eine genaue Bestimmung der Kantenposition wurde vor jeder Messung die exakte Position der  $D_1$ -Linie durch die Abhängigkeit der MOT-Fluoreszenz von der Kantenposition bestimmt. Hierbei ist immer eine kleine Meßungenauigkeit durch eine mögliche Positionsänderung des Lasers zu erwarten. Durch das Blockieren der atomaren Resonanz im Pulsspektrum wird gewährleistet, dass die Atome in der MOT nicht ionisiert oder durch den Photonenimpulsübertrag aus der Atomwolke hinausgedrängt werden.

### Untersuchung des $\text{Rb}_2^+$ -Signals in Abhängigkeit von der Kantenposition

Zur Untersuchung des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals wurden Pump-Probe-Messungen bei Kantenpositionen rot und blau verschoben von der  $D_1$ -Linie durchgeführt. Zuerst stelle ich die Ergebnisse rot verschoben von der  $D_1$ -Linie dar.

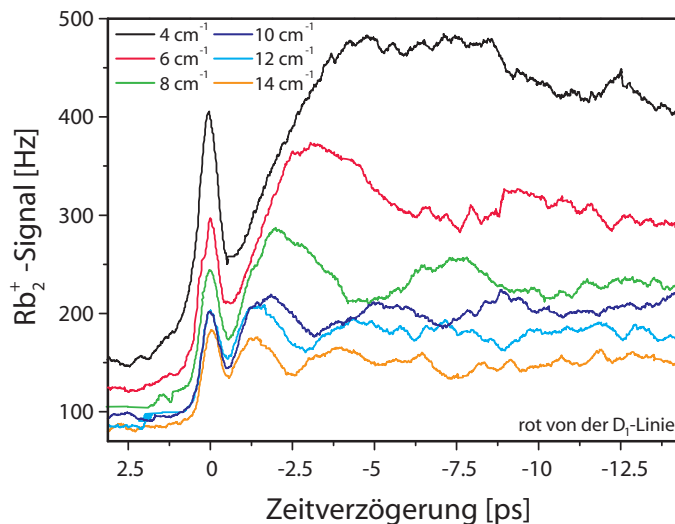


Abbildung 5.12: Die Pump-Probe-Spektroskopie zeigt eine oszillatorische Struktur des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals in Abhängigkeit von der zeitlichen Verzögerung des Pump- und Probe-Pulses zueinander. Die Oszillationen sind am stärksten ausgeprägt bei den Kantenpositionen 8 und  $10 \text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $D_1$ -Linie. Mit zunehmendem Abstand der Kantenposition von der  $D_1$ -Linie nimmt die Oszillationsperiode ab. Der erste Peak in den Messungen rührt von der zeitlichen Überlagerung von Pump- und Probe-Puls her und zeigt deren Kreuzkorrelation.

Die Abb. 5.12 zeigt das  $\text{Rb}_2^+$ -Signal in Hz in Abhängigkeit von der zeitlichen Verzögerung des Pump- und Probe-Pulses zueinander in Pikosekunden (ps). Es ist zu beobachten, dass für positive Verzögerungszeiten das  $\text{Rb}_2^+$ -Signal ein kon-

stantes Level, abhängig von der Kantenverstimmung, besitzt<sup>9</sup>. Eine positive Zeitverzögerung des Pump- und Probe-Pulses bedeutet, dass sich der Probe (NOPA)-Puls zeitlich vor dem roten Pump-Puls des RegAs befindet. Diese zeitliche Anordnung der Pulse bewirkt keine resonante Anregung der Rb<sub>2</sub>-Moleküle und ergibt nur eine geringe Signalthöhe. Zum Zeitpunkt Null wird ein relativ hoher Peak im Pump-Probe-Signal bewirkt. An dieser Stelle der Messung werden Pump- und Probe-Puls zeitlich und räumlich überlagert in die MOT geführt und bewirken eine resonante Anregung der Rb<sub>2</sub>-Moleküle. Der Peak zeigt die Struktur einer Kreuzkorrelation des Pump- und Probe-Pulses. Im Bereich der negativen Zeitskala der Verzögerungsachse in Abb. 5.12 wird der Pump-Puls zeitlich vor dem Probe-Puls in die MOT fokussiert. Das Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signal zeigt in diesem Bereich eine oszillatorische Struktur in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung. Die Struktur des Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signals lässt auf eine Wellenpaketoszillation des Rb<sub>2</sub>-Dimers schließen. Neben dem Kreuzkorrelationspeak bei 0 ps sind abhängig von der Kantenposition bis zu drei Oszillationsmaxima zu erkennen (s. Abb. 5.12), wobei bei den Kantenpositionen 8 und 10 cm<sup>-1</sup> rot verschoben von der D<sub>1</sub>-Linie die Oszillationen am stärksten ausgeprägt sind. Auffällig ist, dass sich das Intensitätsverhältnis vom Kreuzkorrelationspeak und erstem Maximum der Signaloszillation mit der Verstimmung der Kante zur D<sub>1</sub>-Linie ändert. Zu bemerken ist ebenso, dass die Oszillationsperioden für von der D<sub>1</sub>-Linie entferntere Kantenpositionen abnehmen. In Tabelle 5.2 sind die Oszillationsperioden<sup>10</sup> und der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Peak der Kreuzkorrelation von Pump- und Probe-Puls aufgelistet. Es ist eine Abnahme der Oszillationsperioden mit zunehmender Kantenposition zu erkennen: Je weiter die Kante von der D<sub>1</sub>-Linie entfernt ist, desto schneller oszilliert das Wellenpaket des Rb<sub>2</sub>-Dimers.

Die letzte Spalte, die das Verhältnis des Abstands in der fünften Spalte<sup>11</sup> zur Oszillationsperiode angibt, zeigt, dass bei allen Kantenpositionen 6, 8, 10, 12 und 14 cm<sup>-1</sup> der Abstand (erstes Oszillationsmaximum - Kreuzkorrelationspeak) in etwa einer halben Oszillationsperiode entspricht. Bei der Kantenposition 4 cm<sup>-1</sup> rot verschoben von der D<sub>1</sub>-Linie kann leider keine Angabe zur Oszillationsperiode gemacht werden, da die Oszillation so langsam ist und im weiteren - nicht gezeigten - Verlauf der Pump-Probe-Messung so stark dephasiert, dass das zweite Oszillationsmaximum nicht zu erkennen ist.

Um zu untersuchen, ob Kantenpositionen blau verschoben von der D<sub>1</sub>-Linie auch Oszillationen im Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signal zeigen, wurden ebenfalls auf dieser Seite Pump-Probe-Messungen durchgeführt. Wird der rote Teil des Spektrums blockiert, welches bei Kantenpositionen blau verschoben von der D<sub>1</sub>-Linie der Fall ist, durchläuft nur ein kleiner Teil des Pump-Puls-Spektrums den Pulsformer und

<sup>9</sup>Im Bild ist nur der interessante Bereich der Messung dargestellt. Das Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signal wurde ab einer Zeitverzögerung von 10 ps aufgenommen und zeigt im positiven Bereich keine Änderung. Ebenso bei einer Verzögerung zwischen -15 und -20 ps.

<sup>10</sup>Die Oszillationsperioden wurden aus dem Abstand der Oszillationsmaxima bestimmt.

<sup>11</sup>Hier ist der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak gemeint.

Kantenposition	1. Schwingungsperiode	2. Schwingungsperiode	∅ Schwingungsperiode	Abstand 1. Max. zur Kreuzkorrelation	Verhältnis Abstand zur Schwingungsperiode
4 cm <sup>-1</sup>	–	–	–	6.500	–
6 cm <sup>-1</sup>	6.745	–	6.745	3.166	0.47
8 cm <sup>-1</sup>	5.463	5.440	5.452	1.962	0.36
10 cm <sup>-1</sup>	3.519	3.606	3.563	1.858	0.53
12 cm <sup>-1</sup>	3.013	–	3.013	1.435	0.48
14 cm <sup>-1</sup>	2.516	–	2.516	1.308	0.52

Tabelle 5.2: Die Tabelle gibt die Schwingungsperioden (Abstände der Oszillationsmaxima) für die einzelnen Kantenpositionen rot verschoben von der D<sub>1</sub>-Linie (s. Abb. 5.12) in ps an. Ebenso sind für die unterschiedlichen Kantenpositionen der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak in den Pump-Probe-Messungen angegeben. Dieser Wert wird in der letzten Spalte zur jeweiligen gemittelten Schwingungsperiode ins Verhältnis gesetzt.

Kantenposition	1. Schwingungsperiode	Abstand 1. Max. zur Kreuzkorrelation	Verhältnis Abstand zur Schwingungsperiode
2 cm <sup>-1</sup>	–	4.127	–
4 cm <sup>-1</sup>	–	2.510	–
6 cm <sup>-1</sup>	3.96	2.136	0.54
8 cm <sup>-1</sup>	–	1.698	–

Tabelle 5.3: Die Tabelle gibt, soweit vorhanden, die Schwingungsperioden für die einzelnen Kantenpositionen blau verschoben von der D<sub>1</sub>-Linie (s. Abb. 5.13) in ps an. Ebenso sind für die unterschiedlichen Kantenpositionen der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak in den Pump-Probe-Messungen angegeben. Dieser Wert wird in der letzten Spalte zur jeweiligen Schwingungsperiode ins Verhältnis gesetzt.

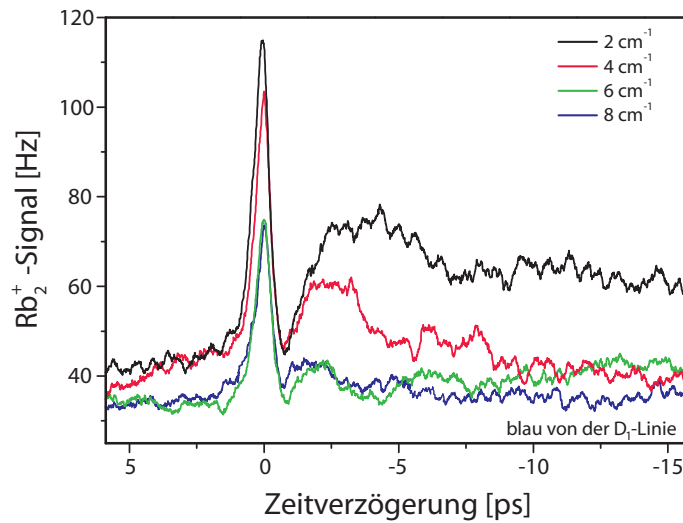


Abbildung 5.13: Die Pump-Probe-Messungen mit Kantenpositionen blau verschoben von der  $D_1$ -Linie zeigen eine oszillatorische Struktur des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung des Pump- und Probe-Pulses.  $6 \text{ cm}^{-1}$  blau verschoben von der  $D_1$ -Linie sind zwei Oszillationsmaxima zu erkennen, obwohl die Signalstärke im Allgemeinen viel geringer ist als bei den Messungen rot verschoben von der  $D_1$ -Linie (s. Abb. 5.12).

wird mit dem NOPA-Puls zum Überlapp gebracht. Wie die Abb. 5.13 zeigt, sind trotz des stark eingeschränkten Pump-Puls-Spektrums für Kantenpositionen blau verschoben von der  $D_1$ -Linie Oszillationen des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals zu sehen. Dort werden die Pump-Probe-Messungen bei den Kantenpositionen 2, 4, 6 und  $8 \text{ cm}^{-1}$  blau verschoben von der  $D_1$ -Linie veranschaulicht. Die  $\text{Rb}_2^+$ -Signalstärken sind deutlich geringer als bei den Messungen rot verschoben von der  $D_1$ -Linie, jedoch zeigen alle Messungen Oszillationen des Molekülsignals. Maximal sind neben dem Kreuzkorrelationspeak nur zwei Oszillationsmaxima zu erkennen, die bei der Kantenposition  $6 \text{ cm}^{-1}$  blau verschoben von der  $D_1$ -Linie am stärksten ausgeprägt sind. Die Tabelle 5.3 gibt, soweit möglich, die Oszillationsperioden und den Abstand des ersten Oszillationsmaximums zur Position des Kreuzkorrelationspeaks für alle Kantenpositionen an.

Aus einem Vergleich der Oszillationsperioden für Kantenpositionen auf der blauen und roten Seite der  $D_1$ -Linie wird deutlich, dass diese in der gleichen Größenordnung liegen. Ein ausführlicher Vergleich ist leider nicht möglich, da nur für die Kantenposition  $6 \text{ cm}^{-1}$  blau verschoben von der  $D_1$ -Linie eine Bestimmung der Oszillationsperiode möglich war. Das Verhältnis von Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak und Oszillationsperiode ergibt ebenfalls - wie bei Kantenpositionen rot verschoben von der  $D_1$ -Linie - die halbe Oszillationsperiode. Ebenso ist zu beobachten, dass sich das Intensitätsverhältnis

von Kreuzkorrelationssignal und erstem Oszillationsmaximum mit der Verstimmung der Kante zur  $D_1$ -Linie verändert.

### Untersuchung des $\text{Rb}_2^+$ -Signals bei einer spektralen Einschränkung des Pump-Pulses

Die Beobachtung von unterschiedlich hohen  $\text{Rb}_2^+$ -Signalen in Abhängigkeit von der Kantenposition rot und blau verschoben von der  $D_1$ -Linie macht eine Untersuchung der für den Prozess wichtigen Frequenzanteile des Pump-Pulses sinnvoll. Hierzu wurden Pump-Probe-Messungen durchgeführt, bei denen der RegA-Puls auf eine spektrale Mini-Gauß-Form mit der FWHM von  $6 \text{ cm}^{-1}$  reduziert wurde. Diese spektrale Einschränkung wurde durch Amplitudenmodulation mit Hilfe

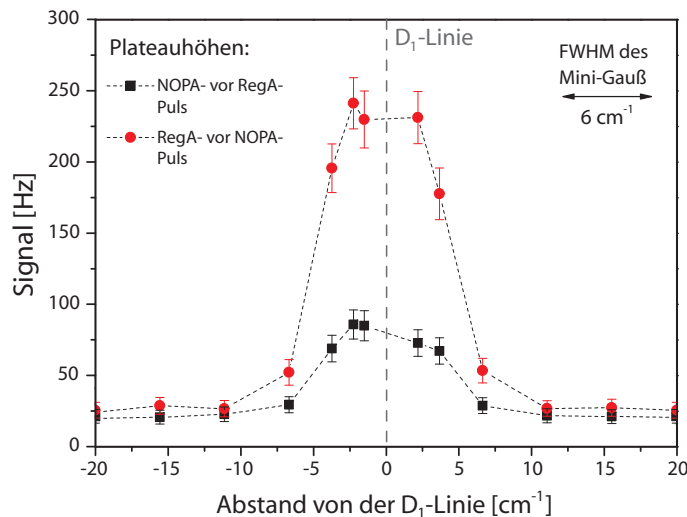


Abbildung 5.14: Bei einer spektralen Einschränkung des Pump-Pulses auf einen  $6 \text{ cm}^{-1}$  breiten Gauß-Puls wurde das  $\text{Rb}_2^+$ -Signal durch Pump-Probe-Messungen aufgenommen. Dabei wurde der Gauß-Puls bzgl. der  $D_1$ -Linie spektral verschoben und die  $\text{Rb}_2^+$ -Signalhöhen der entstehenden Plateaus für die unterschiedlichen Verzögerungszeiten, d.h. für einen zeitlich früheren NOPA-Puls als RegA-Puls und umgekehrt, in Abhängigkeit von der Position des Gauß-Pulses, aufgetragen.

des Pulsmodulators realisiert, wobei die Position des Gauß-Pulses von  $-60$  bis  $60 \text{ cm}^{-1}$  spektral um die  $D_1$ -Linie verschoben wurde. Bei den jeweiligen Positionen wurden Pump-Probe-Messungen des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals durchgeführt, wobei in den einzelnen Messungen keine Oszillationen des Molekülsignals beobachtet werden konnten. Die Abb. 5.14 zeigt den Vergleich der gemittelten Signalhöhen bei den gebildeten Plateaus für die negativen und positiven Verzögerungszeiten neben



dem Kreuzkorrelationspeak, bei denen der NOPA-Puls zeitlich vor dem RegA-Puls in die MOT fokussiert wird und umgekehrt. Zum Zeitpunkt Null, an dem beide Pulse zeitgleich in die MOT geführt werden, ist wie bei den vorherigen Messungen ein Anstieg des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals zu sehen, das sich aus der resonanten Anregung des  $\text{Rb}_2$ -Moleküls ergibt.

Die Abb. 5.14 zeigt die schon in den vorherigen Messungen beobachteten deutlich geringeren Signalthöhen bei einem zeitlich vor dem RegA-Puls eingestrahlten NOPA-Puls als bei umgekehrter zeitlicher Reihenfolge. Die Auftragung der Signalthöhen in Abhängigkeit von der Position des Gauß-Pulses zur  $D_1$ -Linie veranschaulicht eine zur  $D_1$ -Linie symmetrische Struktur für beide Verzögerungszeiten. Daraus kann geschlussfolgert werden, dass bei einem spektral auf einen  $6 \text{ cm}^{-1}$  breiten Gauß-Puls eingeschränkten Pump-Puls die für den Anregungsprozess wichtigen Frequenzanteile auf der roten und blauen Seite der  $D_1$ -Linie gleich weit von ihr entfernt liegen. Diese Aussage kann jedoch nicht für die vorherigen Pump-Probe-Messungen mit Kantenpositionen rot oder blau verschoben von der  $D_1$ -Linie übernommen werden, da das Spektrum des RegA-Pulses entscheidend für den jeweils sichtbaren Anregungsprozess ist. Die Abb. 5.14 legt eine Faltung des Mini-Gauß-Pulses mit der  $D_1$ -Linie nahe.

### Untersuchung des $\text{Rb}_2^+$ -Signals in Abhängigkeit von einem linearen Chirp des Pump-Pulses

Zur Untersuchung einer möglichen Beeinflussung der Oszillationsstruktur des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals folgen nun die Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie mit unterschiedlich stark gechirptem Pump-Puls. Der verstärkte fs-Laserpuls wird dabei in einem Bereich von  $-90 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$  bis  $90 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$  durch den Pulsformer (s. Kapitel 2.2.2) linear gechirpt. Bei einem positiven Chirp des Pump-Pulses werden seine Frequenzanteile so verschoben, dass die roten Anteile zeitlich vor den blauen Anteilen des Pulsspektrums liegen. Ein negativer Chirp verursacht eine Verschiebung der Frequenzanteile in die andere Richtung, so dass die roten Anteile den blauen folgen. Welchen Einfluss der Chirp des Pump-Pulses auf die Wellenpaketoszillation des  $\text{Rb}_2$ -Dimers hat, zeigen die folgenden Experimente bei Kantenpositionen rot und blau verschoben von der  $D_1$ -Linie.

Die Abb. 5.15 zeigt im Teilbild (a) die Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie an  $\text{Rb}_2$  bei einer Kantenposition  $8 \text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $D_1$ -Linie. Für das Experiment wurde diese Kantenposition gewählt, da dort die ausgeprägtesten Oszillationen des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals beobachtet wurden (s. Abb. 5.12). Das Molekülsignal wurde bei Chirps des Pump-Pulses in einem Bereich von  $0 \text{ fs}^2$  bis  $90 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$  alle  $10 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$  in Abhängigkeit der Zeitverzögerung des Pump- und Probe-Pulses aufgenommen. In Teilbild (b) sind die Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie für negative Chirps des Pump-Pulses gezeigt<sup>12</sup>.

<sup>12</sup>Bei den Messungen wurde darauf geachtet, dass ein positiver Chirp die gleiche zeitliche

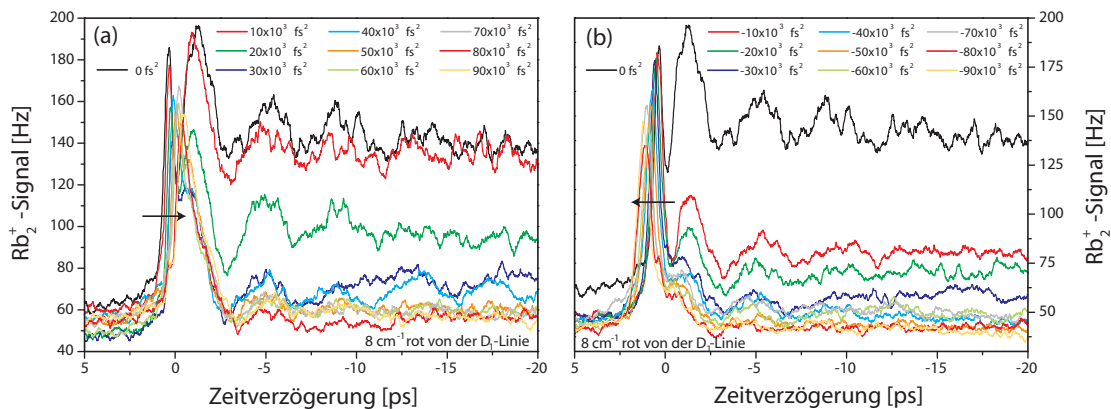


Abbildung 5.15: In Teilbild (a) sind die Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie an  $\text{Rb}_2$  für positiv gechirpte Pump-Pulse aufgetragen. Das Teilbild (b) zeigt das Molekülsignal in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung des Probe-Pulses zu dem negativ gechirpten Pump-Puls. Die Messungen wurden  $8 \text{ cm}^{-1}$  rot von der  $D_1$ -Linie durchgeführt.

Wie die Abb. 5.15 zeigt, werden bei einem positiv gechirpten Pump-Puls die Peaks der Kreuzkorrelation in den Molekülsignalen zu kleineren Verzögerungszeiten verschoben. Bei negativen Chirps des Pump-Pulses (s. Abb. 5.15 (b)) wird der Kreuzkorrelationspeak mit zunehmendem Chirp hingegen zu positiven Verzögerungszeiten verschoben. Diese Verschiebungen resultieren aus dem unterschiedlich starken linearen Chirp des Pump-Pulses, der die Intensitätsmaxima zeitlich verschiebt.

Wie schon in Abb. 5.15 zu erkennen, nimmt die  $\text{Rb}_2^+$ -Signalstärke mit zunehmendem positiven und negativen Chirp ab. Weiterhin verändert sich die Position des ersten Oszillationsmaximums relativ zum Kreuzkorrelationspeak. Um dies genauer untersuchen zu können, werden in Abb. 5.16 die Pump-Probe-Ergebnisse mit auf die Verzögerungszeit Null geschobenen Kreuzkorrelationspeaks gezeigt. Dies gewährleistet ein deutlicheres Bild von der Beeinflussung der Oszillationen durch den Chirp. In Teilbild (a) werden analog zur Abb. 5.15 die Pump-Probe-Messungen für positive Chirps des Pump-Pulses gezeigt und in Teilbild (b) die für negative Chirps. Die Farbcodierung entspricht der in Abb. 5.15.

Auf den ersten Blick ist in Abb. 5.16 zu erkennen, dass bei zunehmendem positiven Chirp des Pump-Pulses sich das erste Oszillationsmaximum des Molekülsignals dem Kreuzkorrelationspeak nähert. Es 'wandert' sozusagen in die Kreuzkorrelation hinein. Gleichzeitig verringert sich die  $\text{Rb}_2^+$ -Signalstärke. Beide Beobachtungen werden in der Abbildung durch den schwarzen Pfeil veranschaulicht. Bei einem negativ gechirpten Pump-Puls (s. Abb. 5.16 (b)) wird bei

Länge des Pump-Pulses verursacht, wie ein negativer Chirp der gleichen Größe. Dies konnte durch die Justage des Pulsformers erreicht werden.

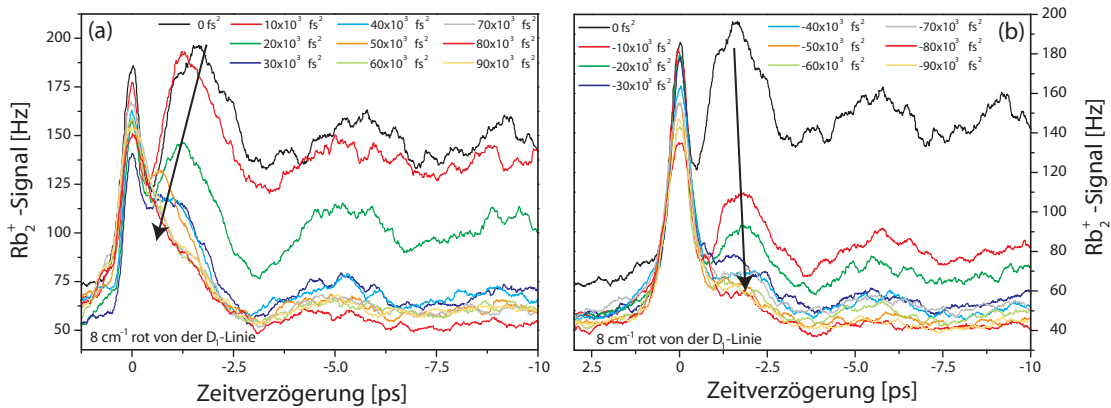


Abbildung 5.16: Das Bild zeigt die Pump-Probe-Ergebnisse aus Abb. 5.15 mit - zur Veranschaulichung der Prozesse - auf Null gesetzten Kreuzkorrelationspeaks. Bei positiven Chirps des Pump-Pulses (a) ist ein 'Hineinwandern' des ersten Oszillationsmaximums in den Kreuzkorrelationspeak zu beobachten. Weiterhin nimmt die  $\text{Rb}_2^+$ -Signalstärke mit zunehmendem Chirp ab. Dies ist auch bei negativen Chirps (b) neben einer Tendenz des 'Hinauswanderns' des ersten Oszillationsmaximums bzgl. des Kreuzkorrelationspeaks sichtbar, wie durch die schwarzen Pfeile angedeutet wird.

zunehmend starken Chirps die  $\text{Rb}_2^+$ -Signalstärke verringert. Außerdem ist eine Tendenz des 'Hinauswanderns' des ersten Oszillationsmaximums vom Kreuzkorrelationspeak zu beobachten. Zu bemerken ist, dass die Breite des Kreuzkorrelationspeaks bei einem Chirp des Pump-Pulses nahezu konstant bleibt.

Die Tabelle 5.4 gibt die Oszillationsperioden und die Abstände des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak für alle negativen und positiven Chirps des Pump-Pulses an. Zu beobachten ist, dass die Oszillationsperiode und die Form der Oszillationsmaxima durch den Chirp des Pump-Pulses nicht verändert werden.

Zu bemerken ist, dass die Oszillationsperiode des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals für positiv und negativ gechirpte Pump-Pulse konstant bleibt<sup>13</sup>. Jedoch verringert sich für zunehmend positive Chirps der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak in den Pump-Probe-Messungen. Dies konnte schon in Abb. 5.16 beobachtet werden und kann in der Tabelle durch das gebildete Verhältnis vom Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak und Oszillationsperiode verdeutlicht werden. Bei Chirps ab  $70 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$  ist das erste Maximum so weit in den Kreuzkorrelationspeak 'hingewandert', dass kein Abstand mehr angegeben werden kann (s. Abb. 5.16). Bei negativen Chirps des Pump-Pulses können bei Werten von  $-50 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$  und  $-80 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$  keine Oszilla-

<sup>13</sup>Unter Berücksichtigung der Fehler durch das Ablesen der Oszillationsperiode und durch die experimentellen Schwankungen.

Chirp [10 <sup>3</sup> fs <sup>2</sup> ]	$\varnothing$ Schwingsungs- periode	Abstand 1. Maximum zur Kreuzkorrelation	Verhältnis Abstand zur Schwingsungs- periode
-90	4.018	1.602	0.40
-80	–	–	–
-70	3.838	1.751	0.46
-60	3.990	1.491	0.37
-50	–	1.509	–
-40	4.087	1.814	0.44
-30	4.085	1.503	0.37
-20	3.979	1.800	0.47
-10	3.999	1.713	0.43
0	4.118	1.596	0.39
10	4.050	1.287	0.32
20	4.036	1.185	0.29
30	4.143	0.892	0.22
40	4.202	0.913	0.22
50	4.137	0.713	0.17
60	4.425	0.571	0.13
70	–	–	–
80	–	–	–
90	–	–	–

Tabelle 5.4: Die Tabelle gibt den Durchschnitt der Schwingungsperioden (Abstände der Oszillationsmaxima) für die unterschiedlichen linearen Chirps des Pump-Pulses (s. Abb. 5.15) in ps an. Ebenso sind für die Messungen mit den unterschiedlich stark gechirpten Pump-Pulsen der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak angegeben. Dieser Wert wird in der letzten Spalte zur jeweiligen Oszillationsperiode ins Verhältnis gesetzt.

tionsperioden abgelesen werden, aber durch die Angabe des Abstands vom ersten Oszillationsmaximum zum Kreuzkorrelationspeak ist zu erkennen, dass die Oszillationen nicht eindeutig verschoben werden. Die Periodendauer bleibt vom Chirp des Pump-Pulses unbeeinträchtigt, während die  $\text{Rb}_2^+$ -Signalstärke mit zunehmend größeren Chirps abnimmt.

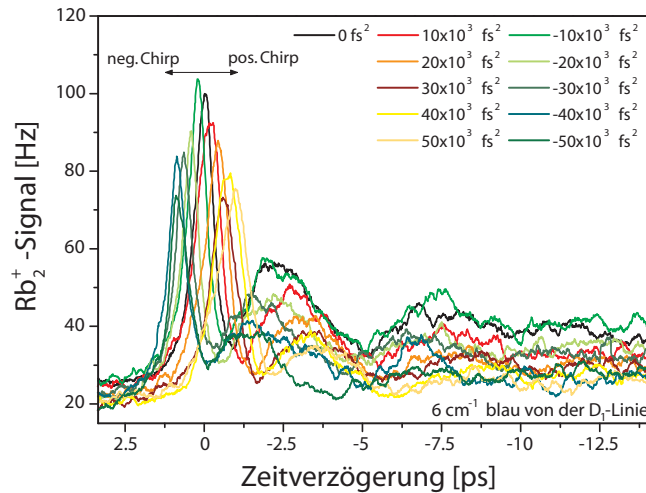


Abbildung 5.17: Es sind die Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie an  $\text{Rb}_2^+$  für positiv und negativ gechirpte Pump-Pulse aufgetragen. Die Messungen wurden mit einer Kantenposition  $6 \text{ cm}^{-1}$  blau verschoben von der  $D_1$ -Linie durchgeführt und zeigen bei positiv gechirpten Pump-Pulsen eine Verschiebung der Oszillationsstruktur zu negativen Verzögerungszeiten und bei negativen Chirps des Pump-Pulses eine Verschiebung zu positiven Verzögerungszeiten.

Zur Untersuchung der Chirpabhängigkeit des Pump-Probe-Signals bei Kantenpositionen blau verschoben von der  $D_1$ -Linie wurden Experimente bei unterschiedlich starken Chirps des Pump-Pulses durchgeführt. Die Kantenposition  $6 \text{ cm}^{-1}$  blau verschoben von der  $D_1$ -Linie bietet sich für diese Experimente an, da bei dieser Kantenposition in den oben gezeigten Messungen die ausgeprägtesten Oszillationen des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals beobachtet werden konnten (s. Abb. 5.13). Die Abb. 5.17 zeigt die Ergebnisse der Pump-Probe-Messungen für Chirps des Pump-Pulses in einem Bereich von  $-50 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$  bis  $50 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$ .

Zu erkennen ist eine Verschiebung des Kreuzkorrelationspeaks zu positiven Verzögerungszeiten bei einem negativen Chirp des Pump-Pulses und zu negativen Verzögerungszeiten bei einem positiv gechirpten Pump-Puls. Diese Beobachtung ist analog zu den Ergebnissen rot verschoben von der  $D_1$ -Linie. Um weitere Erkenntnisse aus den Messungen blau verschoben von der  $D_1$ -Linie zu ziehen, sind in Abb. 5.18 die Pump-Probe-Signale mit einem auf Null verschobenem Kreuzkorrelationspeak aufgetragen. Das Teilbild (a) zeigt die Ergebnisse bei einem positiv

Chirp [10 <sup>3</sup> fs <sup>2</sup> ]	Ø Schwingungs- periode	Abstand 1. Maximum zur Kreuzkorrelation	Verhältnis Abstand zur Schwingungs- periode
-50	–	2.190	–
-40	5.229	2.380	0.46
-30	5.149	2.198	0.43
-20	5.208	2.607	0.50
-10	5.338	2.327	0.44
0	5.259	2.195	0.42
10	4.997	2.452	0.49
20	4.772	2.638	0.55
30	5.212	2.697	0.52
40	5.325	2.495	0.47
50	–	2.663	–

Tabelle 5.5: Die Tabelle gibt den Durchschnitt der Schwingungsperioden für die unterschiedlich starken linearen Chirps des Pump-Pulses (s. Abb. 5.17) in ps an. Ebenso sind für die Messungen mit den unterschiedlich stark gechirpten Pump-Pulsen der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak angegeben. Dieser Wert wird in der letzten Spalte zur jeweiligen Oszillationsperiode ins Verhältnis gesetzt.

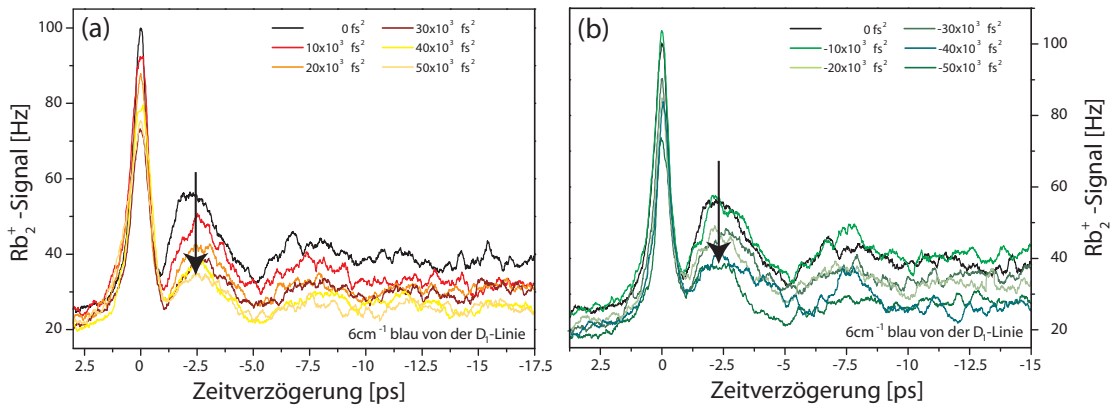


Abbildung 5.18: Das Bild zeigt die Ergebnisse aus Abb. 5.17 mit - zur Veranschaulichung der Prozesse - auf Null gesetzten Kreuzkorrelationspeaks. Bei positiven Chirps des Pump-Pulses (a) ist, wie bei negativen Chirps (b), eine Abnahme des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals zu beobachten, wie es durch die schwarzen Pfeile angedeutet wird.

gechirpten Pump-Puls und (b) bei einem negativ gechirpten Puls.

Wie auch bei den Messungen rot verschoben von der  $D_1$ -Linie ist mit zunehmendem Chirp des Pump-Pulses eine Verringerung der  $\text{Rb}_2^+$ -Signalstärke zu beobachten. Die Position des ersten Oszillationsmaximums bleibt jedoch bei allen Messungen gleich. Es ist kein 'Hinein-' bzw. 'Hinauswandern' der Oszillationen bzgl. des Kreuzkorrelationspeaks zu erkennen, wie es bei Chirps des Pump-Pulses bei einer Kantenposition rot verschoben von der  $D_1$ -Linie zu beobachten war (s. Abb. 5.16).

Die Tab. 5.5 gibt die Oszillationsperioden und Abstände des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak für die Messungen mit unterschiedlich stark gechirptem Pump-Puls wieder, wobei sich die Kantenposition blau verschoben von der  $D_1$ -Linie befindet. Die Werte zeigen ein in etwa konstantes Verhältnis von Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak und Oszillationsperiode bei den Messungen mit unterschiedlich starken Chirps des Pump-Pulses. Weiterhin bleibt die Oszillationsperiode vom Chirp des Pump-Pulses unbeeinflusst.

#### 5.4.1.2 Messungen an der $D_2$ -Linie

Die Messungen an der  $D_2$ -Linie von Rubidium wurden bei einer Wellenlänge des Pump-Pulses von  $\lambda \approx 785$  nm durchgeführt. Die Zentralwellenlänge liegt, wie bei den Experimenten an der  $D_1$ -Linie, 5 nm von der atomaren Resonanz rot verschoben. Damit ist gewährleistet, dass bei einem teilweisen Blockieren des Pulsspektrums noch genügend Intensität vorhanden ist, um die  $\text{Rb}_2$ -Moleküle anzuregen. Nach einer fokussierenden Linse besitzen die RegA-Pulse eine Lei-

stung von  $P \approx 45 \text{ mW}$ <sup>14</sup>. Die FWHM der RegA-Pulse beträgt  $\Delta\lambda \approx 35 \text{ nm}$  und beinhaltet somit in seinem Pulsspektrum beide atomare Resonanzen, die D<sub>1</sub>-Linie bei 795.0 nm und die D<sub>2</sub>-Linie bei 780.2 nm. Bei dem Blockieren des Spektrums auf der blauen Seite der D<sub>2</sub>-Linie, d.h. bei Kantenpositionen rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie<sup>15</sup>, ist demnach die D<sub>1</sub>-Linie noch im Spektrum des Pump-Pulses enthalten. Diese wird durch einen weiteren physikalischen Blocker in der Fourierebene des Null-Dispersions-Kompressors unterdrückt, damit die Atome in der MOT gehalten und nicht durch Ionisation oder den Photonenimpulsübertrag aus der Atomwolke herausgedrängt werden.

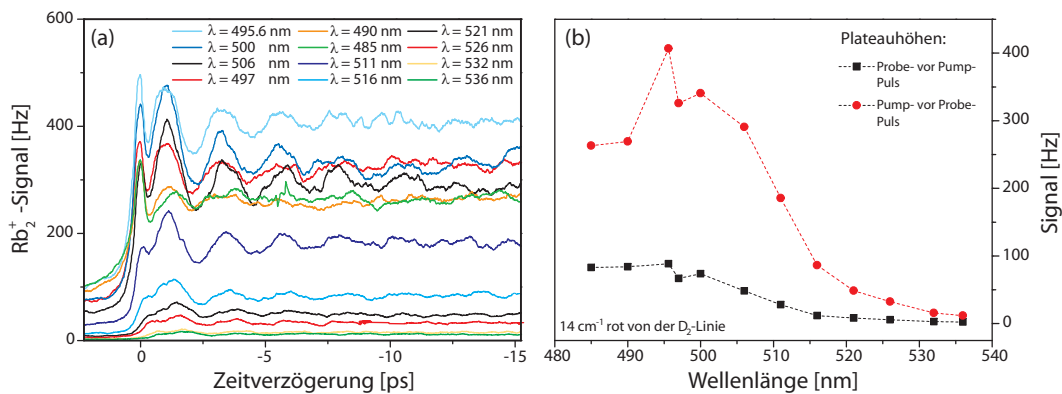


Abbildung 5.19: Die Pump-Probe-Experimente an Rb<sub>2</sub> zeigen eine starke Abhängigkeit von der verwendeten NOPA-Wellenlänge. Diese ist im Bereich von 485 bis 536 nm verändert worden, wobei ca. alle 5 nm eine Pump-Probe-Messung mit einer Kantenposition 14 cm<sup>-1</sup> rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie durchgeführt wurde. Bei Wellenlängen größer als 505 nm ist ein deutlicher Signalabfall zu bemerken. Das ist in Teilbild (a), welches die Pump-Probe-Messungen zeigt, ebenso zu erkennen, wie auch in Teilbild (b), welches die Abhängigkeit der Signallhöhen von der NOPA-Wellenlänge wiedergibt (s. Text).

Zunächst musste die für die Experimente an der D<sub>2</sub>-Linie am besten geeignete NOPA-Wellenlänge bestimmt werden. Dafür wurden Pump-Probe-Messungen bei unterschiedlichen NOPA-Wellenlängen durchgeführt, wobei die Kantenposition bei 14 cm<sup>-1</sup> rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie gehalten wurde. Die Zentralwellenlänge des NOPAs wurde dabei in einem Bereich von 485 bis 536 nm verändert

<sup>14</sup>Hierbei ist nur die Leistung des 10 %igen Strahlteils des RegA-Pulses genannt, der als Pump-Puls verwendet wird.

<sup>15</sup>Bei einem Blockieren der blauen Seite des Spektrums spreche ich von Kantenpositionen rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie, da sich die Kante bei höheren Wellenlängen als die der D<sub>2</sub>-Linie befindet und der Blocker den blauen Teil des Spektrums mit der D<sub>2</sub>-Linie und dem Frequenzanteil des Spektrums, wo sich die Kante des Blockers befindet, abschneidet.



NOPA-Wellenlänge [nm]	Leistung [mW]	NOPA-Wellenlänge [nm]	Leistung [mW]
485	24	511	33
490	30	516	31
495.6	33	521	30
497	34	526	29
500	34	532	26
506	33	536	26

Tabelle 5.6: Die Tabelle gibt die Leistungen der NOPA-Pulse der Pump-Probe-Messungen, die in Abb. 5.19 gezeigt werden, an.

und das  $\text{Rb}_2^+$ -Signal ca. alle 5 nm mittels Pump-Probe-Spektroskopie aufgenommen. Bei den Messungen wurde versucht, die Leistung der NOPA-Pulse so weit wie möglich konstant zu halten. Dies wurde nicht ganz erreicht, wie die Tabelle 5.6 zeigt. Die Leistungsschwankungen sind jedoch, ausgenommen von den Wellenlängen beider Extrema, vernachlässigbar. Die für den nun diskutierten Bereich interessanten Wellenlängen befinden sich in dem Bereich fast konstanter Leistung.

In Abb. 5.19 werden die Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie für die einzelnen NOPA-Wellenlängen dargestellt. Das Teilbild (a) zeigt die Pump-Probe-Messungen des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals für die angegebenen NOPA-Wellenlängen. Um ein tieferes Verständnis für die Messungen zu erhalten, zeigt das Teilbild (b) den Verlauf der Signalthöhen für einen zeitlich früheren Probe-Puls als Pump-Puls (schwarze Punkte) und umgekehrt (rote Punkte) in Abhängigkeit von der NOPA-Wellenlänge. Zur Bestimmung der Signalthöhen wurde für einen zeitlich früheren Probe-Puls der Mittelwert des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals im Verzögerungsbereich von 10 bis 3 ps berechnet und für den Fall, dass der Probe-Puls dem Pump-Puls folgt, wurde die Signalthöhe als Mittelwert des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals im Bereich von -5 bis -20 ps ermittelt. Diese Auftragung ist von dem Experiment mit einem auf ein Mini-Gauß-Spektrum von  $6 \text{ cm}^{-1}$  FWHM eingeschränkten Pump-Pulses neben der  $\text{D}_1$ -Linie bekannt.

Die Pump-Probe-Messungen zeigen einen deutlichen Signalabfall bei Wellenlängen größer als 505 nm, welches im Teilbild (b) als deutlicher Abfall bei der Signalthöhen für größere Wellenlängen zu beobachten ist. Kleinere NOPA-Wellenlängen erzeugen ein höheres  $\text{Rb}_2^+$ -Signal, zeigen aber eine verwaschener Oszillationsstruktur (s. Abb. 5.19). Aus diesem Grund wurden die folgenden Messungen an der  $\text{D}_2$ -Linie mit einer NOPA-Wellenlänge von  $\lambda = 505 \text{ nm}$  bei einer FWHM von  $\Delta\lambda \approx 35 \text{ nm}$  durchgeführt. Die Leistung betrug dabei nach einer fokussierenden Linse  $P \approx 32 \text{ mW}$ . Die optimale NOPA-Wellenlänge für die Experimente an der  $\text{D}_2$ -Linie liegt folglich ca. 10 nm höher als bei den Experimenten an der  $\text{D}_1$ -Linie.

### Untersuchung des $\text{Rb}_2^+$ -Signals in Abhängigkeit von der Kantenposition

Die Untersuchung der NOPA-Wellenlänge in Abb. 5.19 zeigte eine erstaunlich starke Ausprägung der Oszillationsstruktur des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals. Zu bemerken ist ebenso eine starke Abhängigkeit des Intensitätsverhältnisses des Kreuzkorrelationspeaks und des ersten Oszillationsmaximums von der NOPA-Wellenlänge. Um dies genauer untersuchen zu können, führten wir Pump-Probe-Messungen in Abhängigkeit von der Kantenposition bzgl. der  $D_2$ -Linie durch. Wie auch bei der  $D_1$ -Linie werden die Kantenpositionen rot und blau verschoben von der atomaren Resonanz untersucht. Die Abb. 5.20 zeigt die Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie an  $\text{Rb}_2^+$  bei Kantenpositionen rot verschoben von der  $D_2$ -Linie. Die Kante befand sich bei den Messungen in einem Bereich von 4 bis  $26 \text{ cm}^{-1}$  von der  $D_2$ -Linie entfernt.

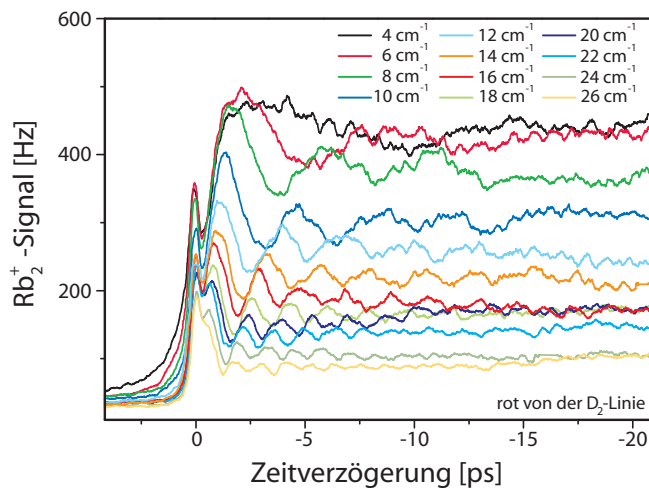


Abbildung 5.20: Die Pump-Probe-Messungen zeigen eine oszillatorische Struktur des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals. Die Oszillationsperiode ist abhängig von der Kantenposition, die sich in einem Bereich von 4 bis  $26 \text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $D_2$ -Linie befindet.

Das  $\text{Rb}_2^+$ -Signal vollführt in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung des Pump- und Probe-Pulses Oszillationen. Diese sind deutlich stärker ausgeprägt als bei der  $D_1$ -Linie und sind noch bei größeren Abständen der Kante von der  $D_2$ -Linie zu sehen. Wie auch bei den Experimenten an der  $D_1$ -Linie ist eine Änderung des Intensitätsverhältnisses vom Kreuzkorrelationspeak und des ersten Oszillationsmaximums in Abhängigkeit von der Kantenposition zu beobachten.

In Abb. 5.20 können bis zu sieben Oszillationsmaxima beobachtet werden. Mit zunehmendem Abstand von der  $D_2$ -Linie verringert sich der Abstand der

Kantenposition	$\varnothing$ Schwingungsperiode	Abstand 1. Max. zur Kreuzkorrelation	Verhältnis Abstand zur Schwingungsperiode
6 cm <sup>-1</sup>	6.713	2.143	0.32
8 cm <sup>-1</sup>	4.663	1.662	0.36
10 cm <sup>-1</sup>	3.516	1.349	0.38
12 cm <sup>-1</sup>	2.817	1.108	0.39
14 cm <sup>-1</sup>	2.351	1.053	0.45
16 cm <sup>-1</sup>	1.977	0.804	0.41
18 cm <sup>-1</sup>	1.756	0.778	0.44
20 cm <sup>-1</sup>	1.560	0.697	0.45
22 cm <sup>-1</sup>	1.434	0.598	0.42
24 cm <sup>-1</sup>	1.280	0.567	0.44
26 cm <sup>-1</sup>	1.154	0.505	0.44

Tabelle 5.7: Die Tabelle gibt den Durchschnitt der Schwingungsperioden (Abstände der Oszillationsmaxima) für die einzelnen Kantenpositionen rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie (s. Abb. 5.20) in ps an. Ebenso sind für die unterschiedlichen Kantenpositionen der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak in den Pump-Probe-Messungen angegeben. Dieser Wert wird in der letzten Spalte zur jeweiligen Oszillationsperiode ins Verhältnis gesetzt.

Oszillationsmaxima merklich, jedoch bleibt die Oszillationsstruktur trotz starker Signalabnahme deutlich vorhanden. In Tabelle 5.7 sind die durchschnittlichen Oszillationsperioden bei allen Kantenpositionen sowie der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Peak der Kreuzkorrelation angegeben. Dieser wird in der vierten Spalte der Tabelle ins Verhältnis zur Oszillationsperiode gesetzt.

Ein Vergleich der Oszillationsperioden mit den Messungen rot verschoben von der D<sub>1</sub>-Linie zeigt eine eindeutige Übereinstimmung bei gleichen Kantenpositionen. Bei der D<sub>2</sub>-Linie ist das Verhältnis zwischen Abstand des ersten Maximums zur Kreuzkorrelation und Oszillationsperiode deutlich geringer als bei der D<sub>1</sub>-Linie. Hier beträgt das Verhältnis zwischen einem Drittel bis knapp der Hälfte einer Oszillationsperiode, wobei es bei der D<sub>1</sub>-Linie fast immer genau die Hälfte war.

Ein großer Unterschied zu den Messungen an der D<sub>1</sub>-Linie ist die Vielzahl der sichtbaren Oszillationen im Pump-Probe-Signal. Bei Kantenpositionen rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie sind bis zu sieben Oszillationsmaxima anstatt von maximal drei bei der D<sub>1</sub>-Linie zu erkennen. Weiterhin können die Oszillationen des Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signals für - von der D<sub>2</sub>-Linie - viel entferntere Kantenpositionen beobachtet werden. Bis zu einer Kantenposition von 26 cm<sup>-1</sup> rot verschoben von der

$D_2$ -Linie sind die Oszillationen gut zu erkennen, während bei der  $D_1$ -Linie schon bei einem Abstand von  $14 \text{ cm}^{-1}$  die Grenze der sichtbaren Oszillationen nahezu erreicht war.

Die Abb. 5.21 zeigt Oszillationen im  $\text{Rb}_2^+$ -Signal bei Kantenpositionen blau verschoben von der  $D_2$ -Linie. Es sind die Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie bei den Kantenpositionen 2 bis  $16 \text{ cm}^{-1}$  blau verschoben von der  $D_2$ -Linie zu sehen. Da hier der rote Teil des Pulsspektrums blockiert wird, muss nicht noch zusätzlich die  $D_1$ -Linie aus dem Spektrum geschnitten werden, da sie bei dieser Konstellation schon durch den Blocker unterdrückt wird.

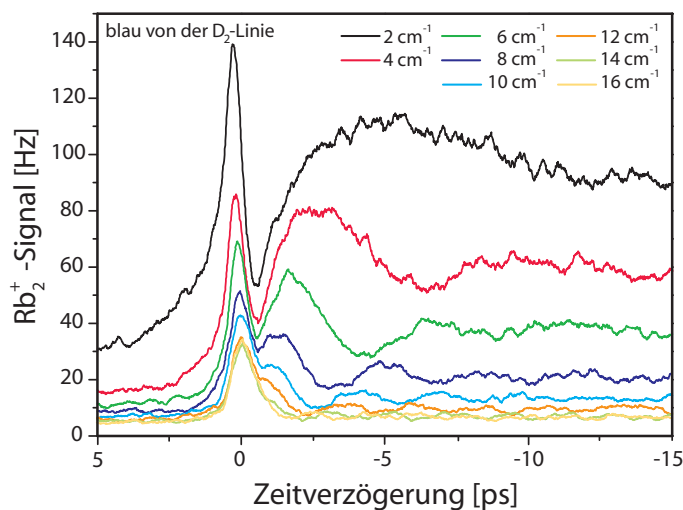


Abbildung 5.21: Für Kantenpositionen blau verschoben von der  $D_2$ -Linie ist im  $\text{Rb}_2^+$ -Signal die bekannte Oszillationsstruktur zu sehen. Die Messungen wurden bei den Kantenpositionen 2, 4, 6, 8, 10, 12, 14 und  $16 \text{ cm}^{-1}$  blau verschoben von der  $D_2$ -Linie durchgeführt, wobei mit zunehmendem Abstand der Kante von der  $D_2$ -Linie die Oszillationsperiode kleiner wird, und das Signal abnimmt.

Bei den Pump-Probe-Messungen des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals sind bis zu drei Oszillationsmaxima zu erkennen (s. Abb. 5.21). Die Signalthöhe ist verglichen mit den Messungen rot verschoben von der  $D_2$ -Linie deutlich geringer, welches auch schon an der  $D_1$ -Linie beobachtet wurde. Die Änderung des Intensitätsverhältnisses von Kreuzkorrelationspeak und erstem Oszillationsmaximum ist ebenfalls vorhanden. Die deutlichsten Oszillationen des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals sind bei den Kantenpositionen 8 und  $10 \text{ cm}^{-1}$  blau verschoben von der  $D_2$ -Linie zu beobachten. Die Oszillationsperioden und der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zur Kreuzkorrelation sind in Tab. 5.8 angegeben.

Bei einem Abstand der Kante  $16 \text{ cm}^{-1}$  blau verschoben von der  $D_2$ -Linie kann keine Angabe zum Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak gemacht werden, da mit größer werdendem Abstand das erste

Kantenposition	$\varnothing$ Schwings- periode	Abstand 1. Max. zur Kreuz- korrelation	Verhältnis Abstand zur Schwings- periode
2 cm <sup>-1</sup>	–	4.810	–
4 cm <sup>-1</sup>	7.444	2.732	0.37
6 cm <sup>-1</sup>	5.080	1.806	0.36
8 cm <sup>-1</sup>	3.488	1.314	0.38
10 cm <sup>-1</sup>	2.902	1.093	0.38
12 cm <sup>-1</sup>	2.529	0.810	0.32
14 cm <sup>-1</sup>	2.114	0.926	0.44
16 cm <sup>-1</sup>	1.795	–	–

Tabelle 5.8: Die Tabelle gibt den Durchschnitt der Schwingungsperioden für die einzelnen Kantenpositionen blau verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie (s. Abb. 5.21) in ps an. Zusätzlich ist für die unterschiedlichen Kantenpositionen der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak in den Pump-Probe-Messungen angegeben. Dieser Wert wird in der letzten Spalte zur jeweiligen Oszillationsperiode ins Verhältnis gesetzt.

Oszillationsmaximum so stark unterdrückt wird, dass es in der Flanke des Kreuzkorrelationspeaks verschwindet. Hervorzuheben ist, dass die Oszillationsperioden für Kantenpositionen blau verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie kürzer sind, als bei gleichem Abstand rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie. Diese Tendenz war bereits bei den Messungen an der D<sub>1</sub>-Linie zu beobachten. Dort konnte aber keine klare Aussage getroffen werden, da zu wenig Daten für die Oszillationsperioden blau verschoben von der D<sub>1</sub>-Linie gewonnen werden konnten. Deswegen ist ein Vergleich der Daten für Kantenpositionen blau verschoben von der D<sub>1</sub>-Linie und von der D<sub>2</sub>-Linie nicht möglich.

### Untersuchung des Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signals bei einer spektralen Einschränkung des Pump-Pulses

Wie bei der D<sub>1</sub>-Linie ist es an der D<sub>2</sub>-Linie interessant, welche Frequenzanteile des Pump-Pulses eine wichtige Rolle für den Anregungsprozess spielen. Hierzu wurde die von der D<sub>1</sub>-Linie bekannte Messung durchgeführt, bei der der Pump-Puls durch den Pulsmodulator auf einen 6 cm<sup>-1</sup> breiten Gauß-Puls eingeschränkt wird. Dabei wird die Position dieses Mini-Gauß-Pulses bzgl. der D<sub>2</sub>-Linie spektral verschoben und für die jeweiligen Positionen eine Pump-Probe-Messung des Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signal durchgeführt.

Die Abb. 5.22 zeigt analog zur D<sub>1</sub>-Linie die Auftragung der Signalhöhen bei

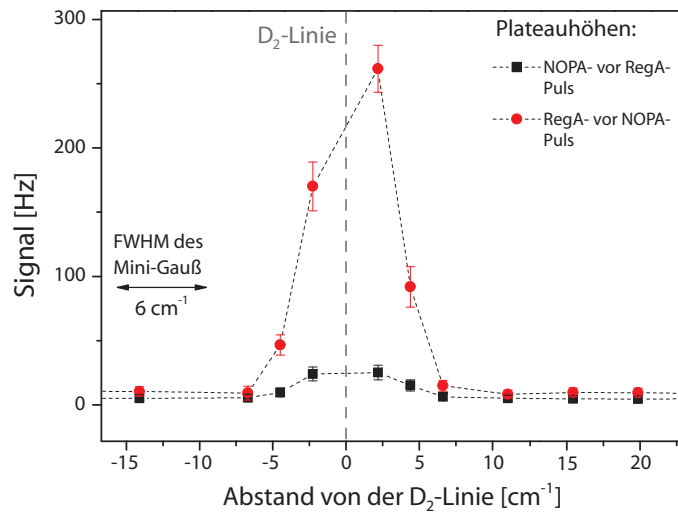


Abbildung 5.22: Bei einer spektralen Einschränkung des Pump-Pulses auf einen  $6 \text{ cm}^{-1}$  breiten Gauß-Puls wurde das  $\text{Rb}_2^+$ -Signal durch Pump-Probe-Messungen aufgenommen. Dabei wurde der Gauß-Puls bzgl. der  $D_2$ -Linie spektral verschoben und die  $\text{Rb}_2^+$ -Signalhöhen der entstehenden Plateaus für die unterschiedlichen Verzögerungszeiten, d.h. für den Probe-Puls zeitlich vor dem Pump-Puls und umgekehrt, in Abhängigkeit von der Position des Gauß-Pulses aufgetragen.

unterschiedlichen Verzögerungszeiten<sup>16</sup> in Abhängigkeit vom Abstand des Gauß-Pulses von der  $D_2$ -Linie. An dieser Stelle wird der interessante Bereich der Messung gezeigt und nicht der gesamte Bereich, der von  $-60$  bis  $60 \text{ cm}^{-1}$  Abstand von der  $D_2$ -Linie reicht. Wie bei der  $D_1$ -Linie ist eine symmetrische Struktur dieser Auftragung zur  $D_2$ -Linie zu beobachten, die eine Faltung des Mini-Gauß-Pulses mit der  $D_2$ -Linie nahe legt (s. Abb. 5.22). Trotz der starken atomaren Resonanz der  $D_2$ -Linie wird das höchste Signal für eine Position des Gauß-Pulses bei der  $D_2$ -Linie beobachtet. Dies ist möglich, da durch die spektrale Einschränkung des RegA-Pulses auf einen  $6 \text{ cm}^{-1}$  breiten Gauß-Puls die Laserintensität zu gering ist, um die Atome in dem Maße zu photoionisieren, dass die MOT entvölkert wird. Ein Unterschied dieses Experiments zu den Messungen an der  $D_1$ -Linie besteht darin, dass in einigen wenigen Pump-Probe-Messungen eine Oszillation des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals zu erkennen ist. Die Abb. 5.23 zeigt die Pump-Probe-Messungen für die Positionen des Mini-Gauß-Pulses, bei denen Oszillationen im Molekülsignal zu sehen sind.

Es ist leider nicht möglich, Oszillationsperioden zu bestimmen, da nur jeweils ein Oszillationsmaximum zu erkennen ist (s. Abb. 5.23). Der Kreuzkor-

<sup>16</sup>Als Verzögerungszeiten werden die Zeiten für einen zeitlich früher als der RegA-Puls eingestrahlenen NOPA-Puls und umgekehrt bezeichnet.

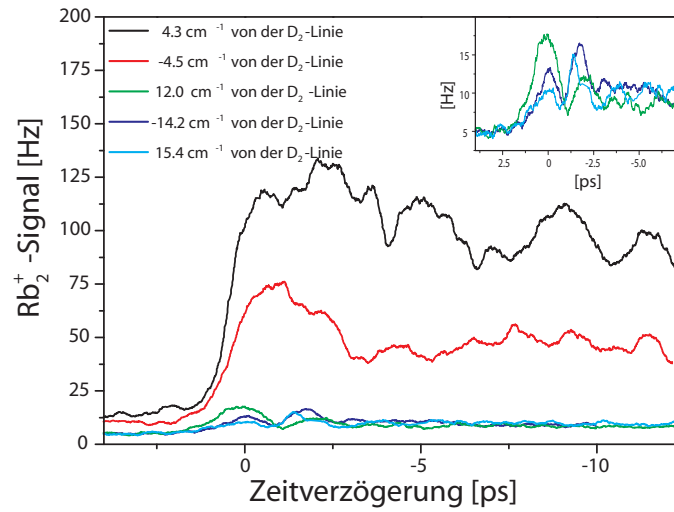


Abbildung 5.23: Für fünf Positionen des Mini-Gauß-Pulses neben der  $D_2$ -Linie sind Oszillationen im  $\text{Rb}_2^+$ -Signal zu erkennen. Die Ausschnittsvergrößerung zeigt die drei Pump-Probe-Messungen geringer Intensität bei den Positionen 12.0, -14.2 und  $15.4 \text{ cm}^{-1}$  entfernt von der  $D_2$ -Linie.

relationspeak ist im Vergleich zu den Pump-Probe-Messungen mit einem nur auf einer Seite blockierten Spektrum des Pump-Pulses deutlich breiter. Das ist auf die zeitliche Länge des RegA-Pulses, bedingt durch seine geringe spektrale Breite, zurückzuführen. Ein Vergleich von Oszillationsperioden dieser Messungen mit Oszillationsperioden aus den vorherigen Pump-Probe-Messungen wäre nicht möglich, da bei dem hier dargestellten Experiment das Spektrum des RegA-Pulses auf ein schmales Frequenzband eingeschränkt ist, welches andere Anregungsprozesse induziert als ein nur zum Teil blockiertes Puls-Spektrum.

### Untersuchung des $\text{Rb}_2^+$ -Signals in Abhängigkeit von einem linearen Chirp des Pump-Pulses

Die Abhängigkeit des Molekülsignals vom Chirp des Pump-Pulses wurde ebenso bei der  $D_2$ -Linie untersucht. Hierzu wurden Messungen rot und blau verschoben von der  $D_2$ -Linie durchgeführt und der Pump-Puls in einem Bereich von  $-90 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$  bis  $90 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$  linear gechirpt. Für ein auf der blauen Seite der  $D_2$ -Linie blockiertes Spektrum des Pump-Pulses wurden Ergebnisse für die Kantenpositionen 8, 14 und  $20 \text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $D_2$ -Linie gewonnen. Für die  $14 \text{ cm}^{-1}$  entfernte Kantenposition werde ich die Pump-Probe-Ergebnisse ausführlich darstellen und anschließend einen Vergleich der Ergebnisse bei den drei Kantenpositionen ziehen.

Die Abb. 5.24 zeigt in Teilbild (a) die Molekülsignale in Abhängigkeit des positiv gechirpten Pump-Pulses, während das Teilbild (b) die Ergebnisse mit ne-

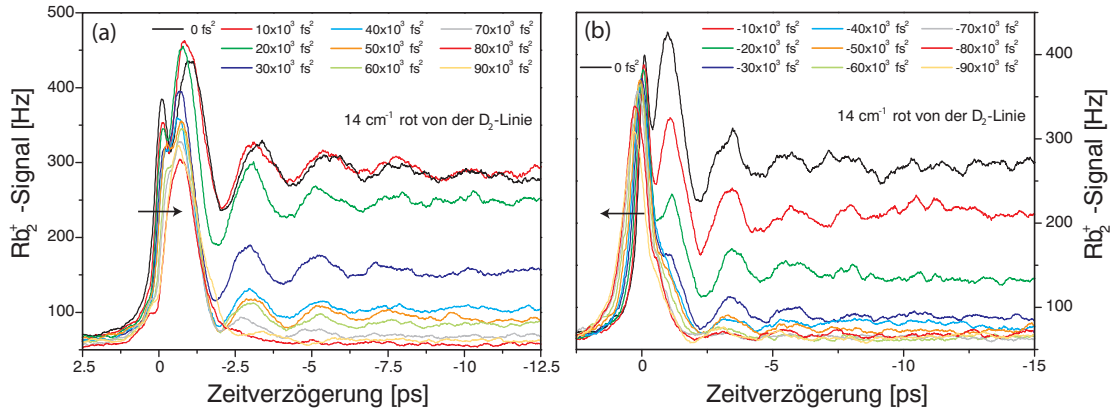


Abbildung 5.24: In Teilbild (a) sind die Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie an  $\text{Rb}_2$  für positiv gechirpte Pump-Pulse aufgetragen. Das Teilbild (b) zeigt das Molekülsignal in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung des Probe-Pulses zum negativ gechirpten Pump-Puls. Die Messungen wurden  $14 \text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $D_2$ -Linie durchgeführt.

gativ gechirpten Pump-Pulsen veranschaulicht. Wie auch bei den Messungen mit gechirpten Pump-Pulsen bei der Kantenposition rot verschoben von der  $D_1$ -Linie verschiebt sich mit zunehmendem Chirp der Kreuzkorrelationspeak im  $\text{Rb}_2^+$ -Signal. Bei einem zunehmend positiv gechirptem Pump-Puls verschiebt sich der Peak im Pump-Probe-Signal zu negativen Verzögerungszeiten, während bei einem zunehmend negativ gechirpten Pump-Puls die Verschiebung in die andere Richtung erfolgt.

Um einen genaueren Einblick in die Beeinflussung des Molekülsignals durch den Chirp des Pump-Pulses zu erhalten, sind in Abb. 5.25 die  $\text{Rb}_2^+$ -Signale mit einem auf Null verschobenen Kreuzkorrelationspeak aufgetragen. Im Teilbild (a) ist für einen positiven Chirp des Pump-Pulses zu beobachten, dass mit zunehmendem Chirp das erste Oszillationsmaximum des Molekülsignals in den Peak der Kreuzkorrelation 'hineinwandert' sowie, dass die Signalstärke abnimmt. Diese Veränderung der Pump-Probe-Signale ist in der Abbildung durch den schwarzen Pfeil gekennzeichnet.

Bei negativ gechirpten Pump-Pulsen ist eine Tendenz zur Vergrößerung des Abstands des ersten Oszillationsmaximums des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals zum Kreuzkorrelationspeak zu beobachten. Zusätzlich ist eine mit positiven Chirps vergleichbare Abnahme des Molekülsignals mit zunehmend großen negativen Chirps zu beobachten (s. Abb. 5.25 (b)).

Eine genaue Analyse der Oszillationsperioden und Abstände des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak in Abhängigkeit des linearen Chirps des Pump-Pulses ist in Tab. 5.9 zu finden. Analog zu den vorherigen Tabellen bei den Messungen an der  $D_1$ -Linie sind die Oszillationsperioden, die Abstände des



Chirp [ $10^3 \text{ fs}^2$ ]	$\varnothing$ Schwingungs- periode	Abstand 1. Max. zur Kreuz- korrelation	Verhältnis Abstand zur Schwingungs- periode
-90	2.207	–	–
-80	2.212	–	–
-70	–	–	–
-60	–	–	–
-50	2.414	–	–
-40	2.700	–	–
-30	2.360	1.066	0.45
-20	2.326	1.114	0.48
-10	2.318	1.010	0.44
0	2.356	0.912	0.39
10	2.317	0.795	0.34
20	2.326	0.628	0.27
30	2.312	0.503	0.22
40	2.295	0.407	0.18
50	2.281	0.487	0.21
60	2.314	0.441	0.19
70	2.229	0.331	0.15
80	–	–	–
90	–	–	–

Tabelle 5.9: Die Tabelle gibt den Durchschnitt der Schwingungsperioden (Abstände der Oszillationsmaxima) für die unterschiedlichen linearen Chirps des Pump-Pulses (s. Abb. 5.24) in ps an. Ebenso ist für die Messungen mit den unterschiedlich stark gechirpten Pump-Pulsen der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak angegeben. Dieser Wert wird in der letzten Spalte zur jeweiligen Oszillationsperiode ins Verhältnis gesetzt.

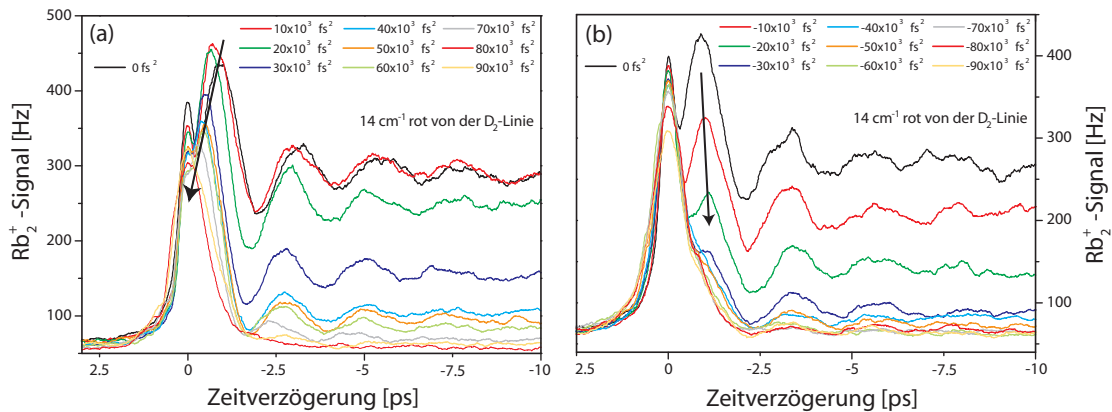


Abbildung 5.25: Das Bild zeigt die Pump-Probe-Ergebnisse aus Abb. 5.24 mit - zur Veranschaulichung der Prozesse - auf Null gesetzten Kreuzkorrelationspeaks. Bei positiven Chirps des Pump-Pulses (a) ist ein 'Hineinwandern' des ersten Oszillationsmaximums in den Kreuzkorrelationspeak zu beobachten. Weiterhin nimmt die Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signalstärke mit zunehmendem Chirp ab. Dies ist auch bei negativen Chirps (b) neben einer Tendenz des aus dem Kreuzkorrelationspeak 'Hinauswanderns' des ersten Oszillationsmaximums sichtbar, wie durch die schwarzen Pfeile angedeutet wird.

ersten Oszillationsmaximums zum Peak der Kreuzkorrelation und das Verhältnis dieser beiden Werte angegeben. Die Werte zeigen ein zur D<sub>1</sub>-Linie analoges Verhalten der Oszillationen rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie. Bei einem zunehmend positiven Chirp wandert das erste Oszillationsmaximum so weit in den Kreuzkorrelationspeak hinein, dass bei Chirps größer als 80 · 10<sup>3</sup> fs<sup>2</sup> kein Abstand der beiden Maxima mehr angegeben werden kann. Dies ist bei negativ gechirpten Pump-Pulsen nicht zu beobachten, bei denen eine Tendenz eines in den Korrelationspeak 'Hineinwanderns' des ersten Oszillationsmaximums zu erkennen ist. Der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak kann jedoch nur für die Werte 0 fs<sup>2</sup> bis -30 · 10<sup>3</sup> fs<sup>2</sup> abgelesen werden, da bei größeren Chirps die Molekülsignaloszillation so stark unterdrückt wird, dass das erste Oszillationsmaximum in der Flanke des Kreuzkorrelationspeaks verschwindet, wie in Abb. 5.25 (b) gut zu beobachten ist. Eine Verschiebung der Oszillationsstruktur bzgl. des Kreuzkorrelationspeaks, wie bei einem positiv gechirpten Pump-Puls (s. Abb. 5.25 (a)), ist in Teilbild (b) zu minimal größeren Abständen zu beobachten.

Das Verhalten des Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signals bei einem gechirpten Pump-Puls rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie ist analog dem rot verschoben von der D<sub>1</sub>-Linie. Auch bei unterschiedlichen Kantenpositionen können die gleichen Beobachtungen gemacht werden, wie die Abb. 5.26 zeigt. Dort ist in Teilbild (a) das Pump-Probe-Signal bei einer Kantenposition 8 cm<sup>-1</sup> rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie für unterschied-

lich stark gechirpte Pump-Pulse aufgetragen. Die gestrichelten Linien zeigen die Pump-Probe-Signale für negative Chirps des Pump-Pulses, während die durchgezogenen Linien die Molekülsignale für positiv gechirpte Pump-Pulse darstellen. Analog im Teilbild (b), welches die  $\text{Rb}_2^+$ -Signale der Pump-Probe-Experimente bei einer Kantenposition  $20\text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $\text{D}_2$ -Linie zeigt.

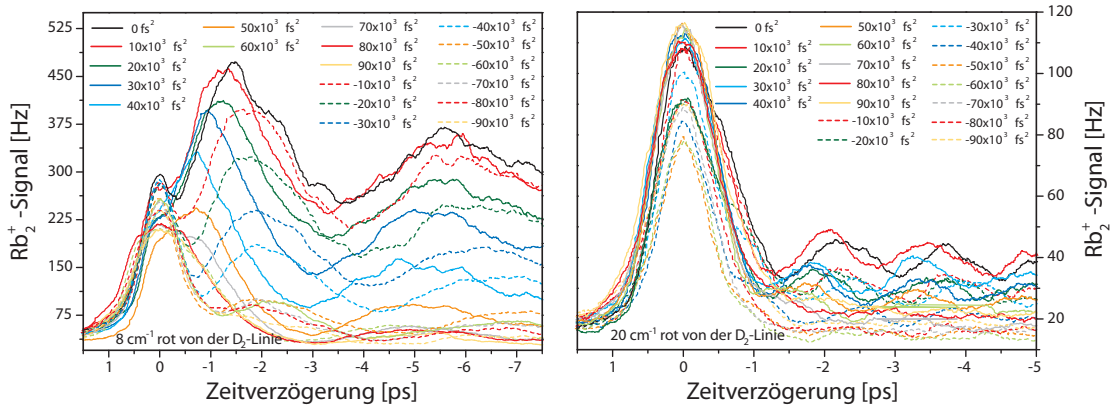


Abbildung 5.26: In Teilbild (a) sind die Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie an  $\text{Rb}_2$  für positiv und negativ gechirpte Pump-Pulse bei einer Kantenposition  $8\text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $\text{D}_2$ -Linie aufgetragen. Es ist deutlich zu erkennen, dass bei einem positiven Chirp des Pump-Pulses das erste Oszillationsmaximum in den Peak der Kreuzkorrelation 'hineinwandert', während es bei einem negativen Chirp 'hinauswandert'. Das Teilbild (b) zeigt das Molekülsignal in Abhängigkeit von der Verschiebung des Probe-Pulses zu einem gechirpten Pump-Puls bei einer Kantenposition  $20\text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $\text{D}_2$ -Linie.

Zu bemerken ist, dass bei allen drei Kantenpositionen rot verschoben von der  $\text{D}_2$ -Linie die Beeinflussung des Molekülsignals durch den Chirp des Pump-Pulses gleich ist. Bei einem negativ gechirpten Pump-Puls wird mit einem zunehmend großen Chirp die  $\text{Rb}_2^+$ -Signalstärke verringert, welches auch bei einem positiv gechirptem Pump-Puls beobachtet werden kann. Zusätzlich wandert das erste Oszillationsmaximum bei stärker positiv gechirpten Pump-Pulsen in den Kreuzkorrelationspeak hinein, während bei einem zunehmend negativen Chirp die Tendenz zu beobachten ist, dass das erste Oszillationsmaximum aus dem Kreuzkorrelationspeak 'hinauswandert'.

Bei einem negativen Chirp des Pump-Pulses konnten bei einer Kantenposition von  $14\text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $\text{D}_2$ -Linie nicht viele Werte für das Verhältnis vom Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak und Oszillationsperiode angegeben werden. Die Abb. 5.25 (b) zeigte jedoch eine kleine Tendenz von einer Verschiebung des ersten Oszillationsmaximums zu negativen Verzögerungszeiten, d.h. eine Abstandsvergrößerung von Kreuzkorre-

Chirp [10 <sup>3</sup> fs <sup>2</sup> ]	8 cm <sup>-1</sup> Verhältnis Abstand/ Osz.-Per.	14 cm <sup>-1</sup> Verhältnis Abstand/ Osz.-Per.	20 cm <sup>-1</sup> Verhältnis Abstand/ Osz.-Per.
-90	–	–	–
-80	0.39	–	–
-70	0.41	–	–
-60	0.47	–	0.52
-50	0.41	–	0.59
-40	0.42	0.45	0.69
-30	0.40	0.48	0.57
-20	0.36	0.44	0.45
-10	0.36	0.43	0.47
0	0.31	0.39	0.30
10	0.27	0.34	0.36
20	0.27	0.27	0.38
30	0.22	0.22	–
40	0.19	0.18	–
50	0.16	0.21	–
60	–	0.19	–
70	–	0.15	–
80	–	–	–
90	–	–	–

Tabelle 5.10: Die Tabelle gibt die Verhältnisse vom Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak und Oszillationsperiode für die Pump-Probe-Messungen bei unterschiedlichen Chirps des Pump-Pulses für die drei Kantenpositionen 8, 14 und 20 cm<sup>-1</sup> rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie an.

lationspeak und erstem Oszillationsmaximum mit zunehmend großen negativem Chirp des Pump-Pulses. Um einen tieferen Einblick zu erhalten, sind in Tab. 5.10 die Verhältnisse vom Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak und Oszillationsperiode für die unterschiedlichen Chirps bei den drei untersuchten Kantenpositionen 8, 14 und 20  $\text{cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $D_2$ -Linie angegeben. Es ist ein 'Hineinwandern' des ersten Oszillationsmaximums in den Peak der Kreuzkorrelation bei einem positiven Chirp des Pump-Pulses, wie auch die Tendenz einer Abstandvergrößerung für einen negativ gechirpten Pump-Puls zu erkennen. Das 'Hinein-' bzw. 'Hinauswandern' des ersten Oszillationsmaximums ist bei kleineren Verstimmungen der Kante bzgl. der  $D_2$ -Linie stärker zu beobachten.

Bei Kantenpositionen blau verschoben von der  $D_2$ -Linie waren bei einer Verstimmung von 8  $\text{cm}^{-1}$  die ausgeprägtesten Oszillationen im Molekülsignal zu erkennen (s. Abb. 5.21). Deswegen wurden Pump-Probe-Messungen bei dieser Kantenposition mit einem gechirpten Pump-Puls durchgeführt, bei denen der lineare Chirp des Pump-Pulses in einem Bereich von  $90 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$  bis  $-90 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$  verändert wurde. In Abb. 5.27 sind die Ergebnisse für positiv (a) und negativ (b) gechirpte Pump-Pulse zu sehen. Das Molekülsignal zeigt wie bei allen vorherigen

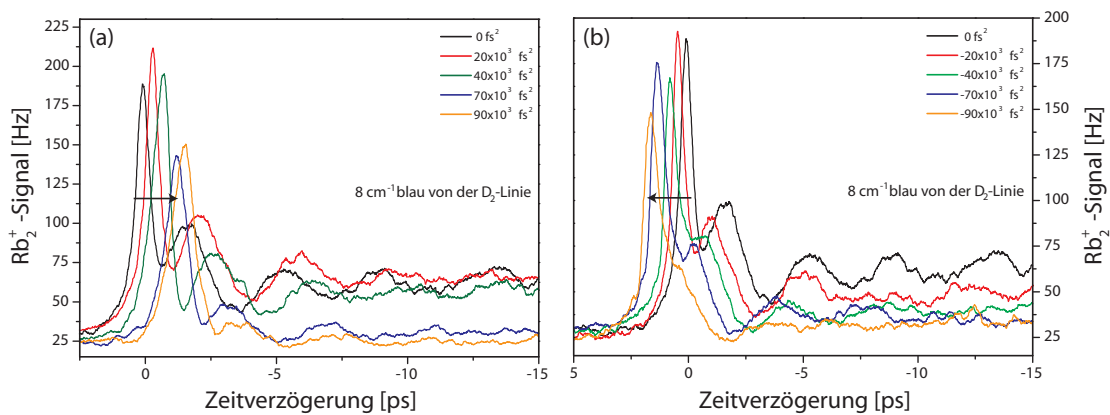


Abbildung 5.27: In Teilbild (a) sind die Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie an  $\text{Rb}_2$  für positiv gechirpte Pump-Pulse aufgetragen. Das Teilbild (b) zeigt das Molekülsignal in Abhängigkeit von der Verzögerung des Probe-Pulses zum negativ gechirpten Pump-Puls. Die Messungen wurden  $8 \text{ cm}^{-1}$  blau verschoben von der  $D_2$ -Linie durchgeführt.

Messungen mit einem linear gechirpten Pump-Puls eine Verschiebung des Kreuzkorrelationspeaks zu negativen Verzögerungszeiten bei einem positiven Chirp des Pump-Pulses und in die entgegengesetzte Richtung für einen negativen Chirp des Pulses. Zu bemerken ist, dass die Verschiebung des Kreuzkorrelationspeaks deut-

Chirp [10 <sup>3</sup> fs <sup>2</sup> ]	∅ Schwingungs- periode	Abstand 1. Max. zur Kreuz- korrelation	Verhältnis Abstand zur Schwingungs- periode
-90	–	–	–
-70	3.703	1.588	0.43
-40	3.912	1.544	0.42
-20	3.980	1.492	0.37
0	3.659	1.719	0.47
20	3.821	1.749	0.46
40	3.671	1.976	0.54
70	3.722	1.918	0.52
90	3.564	2.128	0.60

Tabelle 5.11: Die Tabelle gibt den Durchschnitt der Schwingungsperioden (Abstände der Oszillationsmaxima) für die unterschiedlichen linearen Chirps des Pump-Pulses (s. Abb. 5.27) in ps an. Ebenso sind für die Messungen mit den unterschiedlich stark gechirpten Pump-Pulsen die Abstände des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak angegeben. Dieser Wert wird in der letzten Spalte zur jeweiligen Oszillationsperiode ins Verhältnis gesetzt.

lich stärker ist als auf der roten Seite der D<sub>2</sub>-Linie. Die Abb. 5.28 veranschaulicht, dass das Verhalten des Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signals analog zu der Messung mit Kantenpositionen blau verschoben von der D<sub>1</sub>-Linie ist.

Es werden in der Abbildung die Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signale der Pump-Probe-Messungen bei einer Kantenposition blau verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie mit einer auf Null verschobenen Kreuzkorrelation gezeigt. Wie auch bei der D<sub>1</sub>-Linie werden die Oszillationen des Molekülsignals mit größer werdendem Chirp des Pump-Pulses in ihrer Stärke unterdrückt, ohne eine sichtbare Verschiebung des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak zu erwirken. Zur Vervollständigung der Ergebnisdarstellung dieses Experiments trägt die Tabelle 5.11 bei, in der die Oszillationsperioden, der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak und das Verhältnis dieses Abstands zur Oszillationsperiode in Abhängigkeit von den unterschiedlichen Chirps des Pump-Pulses angegeben sind. Hier ist zu sehen, dass das angegebene Verhältnis in der letzten Spalte für zunehmend starke positive Chirps des Pump-Pulses zunimmt. Da jedoch diese Zunahme in einem Bereich liegt, der bei früheren Messungen durch experimentelle Schwankungen und Ablesefehler verursacht wurde, kann der Zunahme nicht viel Bedeutung beigemessen werden.

Bei einem Chirp von -90 · 10<sup>3</sup> fs<sup>2</sup> kann keine Angabe zum Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak gemacht werden, da das Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signal so stark abgeschwächt ist, dass es in der Flanke des Kreuzkorrelationspeaks

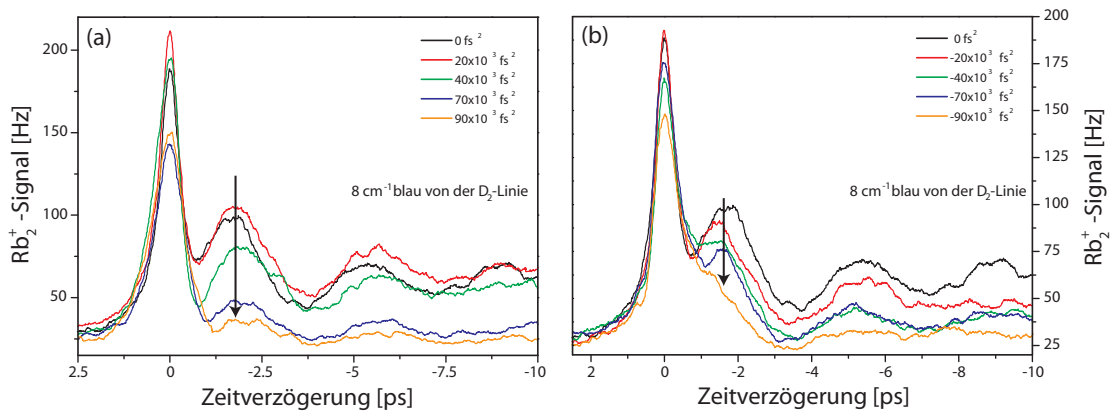


Abbildung 5.28: Das Bild zeigt die Pump-Probe-Ergebnisse aus Abb. 5.27 mit - zur Veranschaulichung der Prozesse - auf Null gesetzten Kreuzkorrelationspeaks. Bei positiven Chirps des Pump-Pulses (a) ist, ebenso wie bei negativen Chirps (b), eine Abnahme der  $\text{Rb}_2^+$ -Signalstärke zu beobachten.

verschwindet. Im Allgemeinen ist keine große Abweichung von den gezogenen Schlussfolgerungen bei Messungen mit Kantenpositionen blau verschoben von der  $D_1$ -Linie zu erkennen.

Abschließend ist zu bemerken, dass bei den Pump-Probe-Messungen mit einem linear gechirpten Pump-Puls die Beeinflussung des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals an der  $D_1$ -Linie und der  $D_2$ -Linie vergleichbar ist. Jeweils konnte eine Abnahme der Molekülsignalstärke bei einem zunehmend stark positiv wie auch negativ gechirptem Pump-Puls beobachtet werden. Weiterhin ist eine Abstandsverkleinerung vom ersten Oszillationsmaximum und Kreuzkorrelationspeak bei einem positiven Chirp des Pump-Pulses bei Kantenpositionen rot verschoben von den D-Linien zu bemerken. Bei einem negativ gechirpten Pump-Puls wurde hingegen eine Tendenz zur Abstandsvergrößerung gesehen. Dieses Verhalten konnte bei Kantenpositionen blau verschoben von den D-Linien nicht beobachtet werden, wo ausschließlich eine Abnahme des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals in Abhängigkeit von der Chirpgröße zu bemerken war. Die in den Pump-Probe-Signalen sichtbare Verschiebung der Kreuzkorrelationspeaks wird durch den Chirp des Pump-Pulses verursacht.

### Vergleich von der $\text{Rb}_2^+$ -Signalstruktur mit dem Fluoreszenzsignal

Sämtliche Pump-Probe-Messungen zeigten eine Dreiteilung des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals. Für positive Verzögerungszeiten, d.h. für einen zeitlich früheren Probe-Puls, konnte ein konstantes Molekülsignal beobachtet werden. Beim Zeitpunkt Null, bei dem Pump- und Probe-Puls zeitgleich in die MOT fokussiert werden, ist jeweils ein hoher Anstieg des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals zu sehen, da die Moleküle resonant angeregt werden. Der sog. Kreuzkorrelationspeak ist dabei etwa 0.5 ps breit und wird mit größerer

Verstimmung der Kante von den D-Linien etwas breiter. Zu Verzögerungszeiten, an denen der Pump- zeitlich vor dem Probe-Puls in die MOT eingestrahlt wird, wird durch die anregenden Laserpulse eine Oszillation des Molekülsignals verursacht. Diese Struktur des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals in den Pump-Probe-Messungen konnte auch beim Fluoreszenzsignal beobachtet werden, jedoch ist ihr Verlauf spiegelbildlich zum Molekülsignal. Die Abb. 5.29 zeigt exemplarisch die Korrelation von Molekül- und Fluoreszenzsignal für eine Kantenposition  $10 \text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $\text{D}_2$ -Linie.

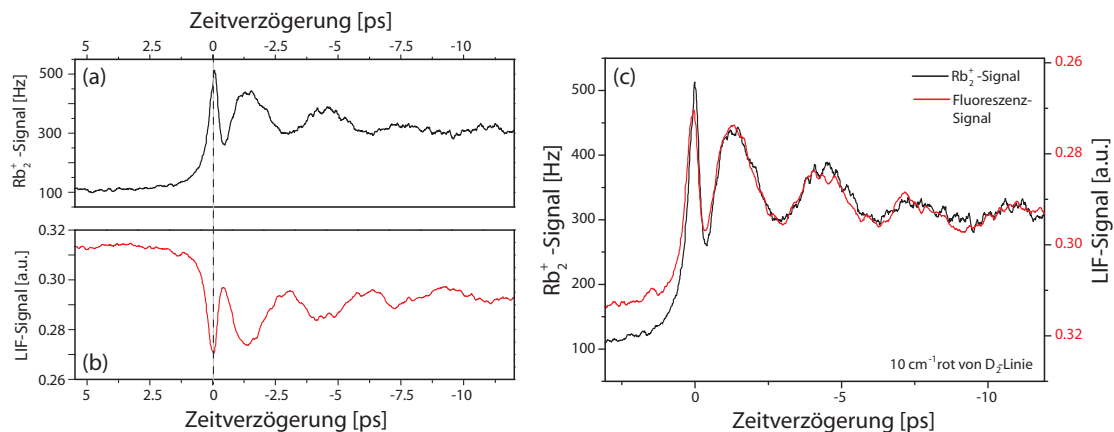


Abbildung 5.29: Für einen Vergleich der  $\text{Rb}_2^+$ -Signalstärke und MOT-Fluoreszenz wird exemplarisch die Pump-Probe-Messung mit einer Kantenposition  $10 \text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $\text{D}_2$ -Linie gezeigt. In Teilbild (a) ist das Molekülsignal aufgetragen, während (b) die MOT-Fluoreszenz zeigt, die spiegelbildlich zum  $\text{Rb}_2^+$ -Signal verläuft. Dies wird eindeutig in Teilbild (c), in dem beide Signale mit gespiegelm Fluoreszenzsignal aufgetragen sind.

Wie in den Teilbildern (a) und (b) zu sehen ist, verlaufen die Signale parallel zueinander. Die Struktur des Molekülsignals (a) ist in der MOT-Fluoreszenz zeitgleich spiegelbildlich zu beobachten. Dies ist durch das Teilbild (c) anschaulich dargestellt, indem das Fluoreszenzsignal gespiegelt und beide Signale übereinander gelegt sind. Auffällig ist, dass der Kreuzkorrelationspeak hier, wie bei allen Messungen, etwas geringer im Fluoreszenz- als im Molekülsignal ist. Die Höhe des Peaks in der MOT-Fluoreszenz entspricht ca. 75 % des Kreuzkorrelationspeaks im  $\text{Rb}_2^+$ -Signal.

Wie diese durch die Fluoreszenz beobachtete Störung der MOT zu erklären ist, wird im folgenden Unterkapitel diskutiert.

Abschließend möchte ich erwähnen, dass in den gezeigten Pump-Probe-Messungen ein Untergrundsignal, welches aus einer alleinigen Anregung der  $\text{Rb}$ -Moleküle durch den NOPA-Puls herrührt, vorhanden ist. Wie in den, im folgenden



Unterkapitel gezeigten, Energiepotentialschemata zu sehen ist, kann der NOPA-Puls Rubidium-Moleküle, die sich in Potentialen der  $\text{Rb}(5s)+\text{Rb}(5p)$ -Asymptote befinden, resonant anregen. Diese in der MOT vorhandenen Moleküle sind durch die Fallenlaser photoassoziierte Dimere [105]. Um eine Diskussion der quantitativen Signalhöhe bei den einzelnen Pump-Probe-Messungen zu erzielen, müsste das Untergrundsignal von den gemessenen  $\text{Rb}_2^+$ -Signalen abgezogen werden.

### 5.4.2 Diskussion der Pump-Probe-Ergebnisse an $\text{Rb}_2$

Die Diskussion der Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie an  $\text{Rb}_2$  in der MOT enthält zwei unterschiedliche Erklärungsschemata für die beobachteten Wellenpaketoszillationen. Bisher konnte durch die vielfachen Experimente nicht eindeutig bewiesen werden, ob die durch die Pump-Probe-Spektroskopie untersuchten Rubidium-Dimere durch Photoassoziation mit fs-Laserpulsen entstanden sind, oder ob es sich um in der MOT vorhandene Moleküle handelt, die durch die Fallenlaser photoassoziiert wurden [105]. Daher werden in diesem Kapitel beide Ansätze vorgestellt, und die Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie in das jeweilige Erklärungsschema eingeordnet.

Folgende experimentelle Befunde werden durch Diskussion, soweit möglich, erklärt: Die Abhängigkeit der Oszillationsperiode des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals von der Entfernung der Kante von den atomaren Resonanzen, der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak in den Pump-Probe-Signalen, die sichtbaren Wellenpaketoszillationen bei Kantenpositionen blau verschoben von den D-Linien und die Abhängigkeit des Molekülsignals vom Chirp des Pump-Pulses.

Auch ohne eine eindeutige Zuordnung zu einem Erklärungsschema sind die Resultate von großer Bedeutung, da erstmals Wellenpaketoszillationen von Dimeren in der MOT mit fs-Laserpulsen untersucht werden konnten. Die Beobachtung von Wellenpaketoszillationen macht eine Lokalisierung des Wellenpakets möglich. Das wiederum erlaubt eine gezielte Beeinflussung der Wellenpakete, die beispielsweise für eine interne Schwingungskühlung verwendet werden könnte.

#### 5.4.2.1 Ergebnisdiskussion ausgehend von leicht gebundenen Grundzustandsmolekülen

Der Erklärungsansatz beinhaltet, dass sich in der MOT schwach unterhalb des Dissoziationslimits  $\text{Rb}(5s)+\text{Rb}(5s)$  gebundene Grundzustandsmoleküle befinden [105]. Wie in Kapitel 5.1.3 erläutert, besitzt Rubidium zwei Grundzustände: Den  $^1\Sigma_g^+$ - und den  $^3\Sigma_u^+$ -Zustand. Da nicht klar ist, in welchem Grundzustand sich die Moleküle befinden, zeigt die Abb. 5.30 in Teilbild (a) die Singulett-Zustände und das Teilbild (b) die Triplett-Zustände des Rubidium-Dimers.

Für die weitere Erklärung der Ergebnisse soll vorausgesetzt werden, dass der RegA-Puls eine einphotonische Anregung verursacht. Diese Annahme wird durch die Abhängigkeit des Pump-Probe-Signals von der NOPA-Wellenlänge gestützt (s. Abb. 5.19). Dort wurde beobachtet, dass bei NOPA-Wellenlängen, größer als 505 nm, das  $\text{Rb}_2^+$ -Signal stark abnahm. Die Abnahme des Molekülsignals für kleinere NOPA-Anregungsenergien weist auf eine einphotonische Anregung durch den Pump-Puls in ein Potential der  $\text{Rb}(5s)+\text{Rb}(5p)$ -Asymptote mit einer anschließenden Photoionisation durch den NOPA-Puls hin. Wird dieser in seiner Frequenz verringert, ist ein Erreichen des ionischen Grundzustandspotentials energetisch

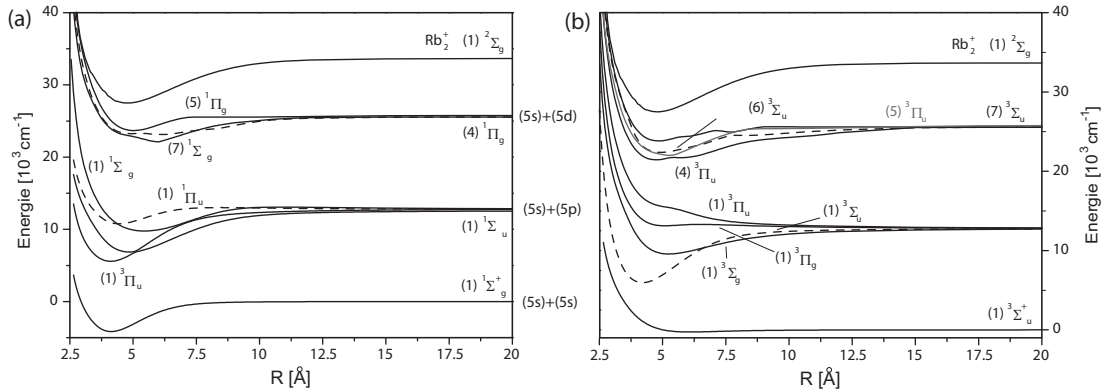


Abbildung 5.30: Das Teilbild (a) zeigt das EPS-Schema für  $\text{Rb}_2$  ausschließlich mit Singulett-Potentialkurven, die mit den Anregungswellenlängen der Pump-Probe-Messungen erreicht werden können. In (b) sind die Triplet-Zustände gezeigt.

nicht mehr möglich. Folglich nimmt das durch die Pump-Probe-Spektroskopie detektierte Molekülsignal ab. Auf dieser Grundlage der einphotonischen Anregung durch den Pump- sowie Probe-Puls werden die weiteren Ergebnisse betrachtet.

Die Messergebnisse für Pump-Pulsfrequenzen nahe der  $D_1$ -Linie und  $D_2$ -Linie sind sehr ähnlich. Es wurden die gleichen Oszillationsperioden rot und blau verschoben von den D-Linien beobachtet und auch die Abhängigkeit des Pump-Probe-Signals vom Chirp des Pump-Pulses erbrachte eine ähnliche Änderung im Molekülsignal. Daraus ist zu folgern, dass das Anregungsverhalten des  $\text{Rb}_2$ -Dimers über die jeweiligen Asymptoten ( $^2P_{3/2}+^2S_{1/2}$  und  $^2P_{1/2}+^2S_{1/2}$ ) gleich sein sollte. Da jedoch die Singulett- und Triplet-Potentiale aufgrund der Spin-Bahn- und der Hyperfeinwechselwirkung gekoppelt sind, sind in beiden EPS-Schemata (Singulett und Triplet) der Abb. 5.30 angeregte Zustände mit Asymptoten zu beiden atomaren Resonanzen enthalten. Es ist daher nicht möglich zu entscheiden, in welchem Anregungsschema die Photoionisation stattfindet. Statistische Aussagen geben eine dreimal häufigere Wahrscheinlichkeit von Molekülen in Triplet-Zuständen als in Singulett-Zuständen an. Ob die Rubidium-Dimere in der MOT aber aus Singulett- oder aus Triplet-Kanälen entstehen, ist nicht klar, da bei den großen Kernabständen der Molekülbildung die Potentiale gekoppelt sind und nicht unterschieden werden können. Bei der Kopplung der Zustände kann angenommen werden, dass bei großen Kernabständen die Spin-Bahn-Kopplung stärker ist als die chemische, wie auch als die elektrostatische Bindung. D.h. dort gelten die Zustandsbezeichnungen des Hundschen Falls (c). Bei kleineren Kernabständen ist hingegen die Austauschwechselwirkung größer als die Spin-Bahn-Kopplung, und die Molekülzustände können durch den Hundschen Fall (a) beschrieben werden. In Abb. 5.31 ist die Kopplung der Singulett- und Triplet-Zustände für die Asymptote der  $D_1$ -Linie gezeigt. Das Bild ist ent-

nommen aus [106] und gibt die drei gebundenen Zustände  $0_u^+$ ,  $1_g$  und  $0_g^-$  des Hundschen Falls (c) bei der  $^2P_{1/2}+^2S_{1/2}$ -Asymptote wieder. Gezeigt sind ebenfalls die Singulett- und Triplett-Zustände des Hundschen Falls (a).

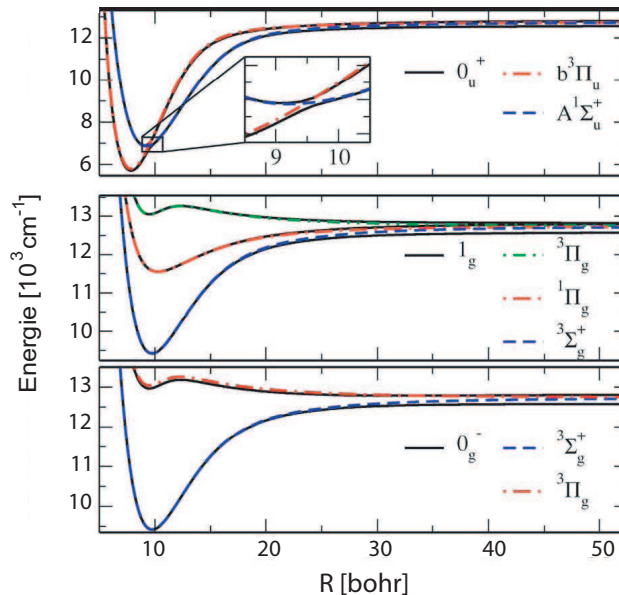


Abbildung 5.31: Es sind die drei gebundenen Zustände  $0_u^+$ ,  $1_g$  und  $0_g^-$  (schwarze Linien) des Hundschen Falls (c) gezeigt, deren Asymptote zur D<sub>1</sub>-Linie führt. Ebenso sind ihre entsprechenden zur D<sub>2</sub>-Linie führenden Zustände abgebildet sowie die Zustände des Hundschen Falls (a) (rote, blaue und grüne gestrichelte Kurven). Das Bild ist entnommen aus [106].

Für die Photoionisation der Rb<sub>2</sub>-Dimere ist eine Anregung durch den RegA-Puls im äußeren Teil des Potentials wahrscheinlich, da bei den Pump-Probe-Signalen nahe der D<sub>1</sub>-Linie und D<sub>2</sub>-Linie ein starkes Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signal und lange Oszillationsperioden beobachtet werden konnten, die auf einen guten Franck-Condon-Überlapp schließen lassen.

Aufgrund des Abstands des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak von einer halben Oszillationsperiode bei Kantenpositionen rot verschoben von den D-Linien ist es wahrscheinlich, dass der Übergang in das ionische Grundzustandspotential durch den NOPA-Puls am inneren Umkehrpunkt des Potentials stattfindet. Die bei der Diskussion bisher verwendeten Pump-Probe-Ergebnisse legen nunmehr die Schlussfolgerung nahe, dass die schwach gebundenen Grundzustandsmoleküle am äußeren Umkehrpunkt durch den Laserpuls des RegAs in Potentiale der Rb(5s)+Rb(5p)-Asymptoten angeregt werden. Nach einer Propagation des erzeugten Wellenpakets zum inneren Umkehrpunkt wird dort

das Wellenpaket durch den NOPA-Puls in das ionische Grundzustandspotential transferiert und das ionisierte Dimer detektiert (s. Abb. 5.32). Durch die Anregung in das gebundene Grundzustandspotential des  $\text{Rb}_2^+$ -Dimers ist eine hohe Molekülionenausbeute gewährleistet.

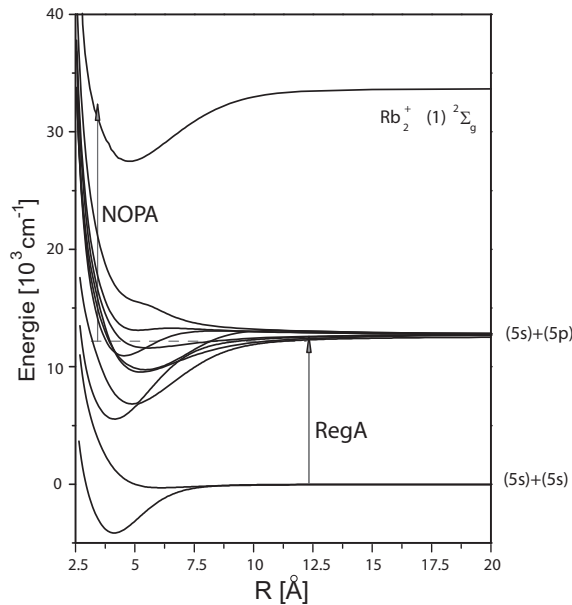


Abbildung 5.32: Das Bild zeigt das mögliche Anregungsschema für schwach im Grundzustand gebundene  $\text{Rb}_2$ -Dimere. Durch den RegA (Pump)-Puls wird ein Wellenpaket in den angeregten Potentialen der  $(5s)+(5p)$ -Asymptote erzeugt, welches nach Propagation zum inneren Umkehrpunkt vom Probe (NOPA)-Puls durch Ionisation abgefragt wird.

Rechnungen von Christiane Koch ergeben Oszillationsperioden eines Wellenpakets der  $^2P_{1/2}+^2S_{1/2}$ -Asymptote in der gleichen Größenordnung wie in den Experimenten. Hierzu wurden Rechnungen mit unterschiedlichen Anfangszuständen durchgeführt. Die Wellenfunktionen der sechs bis sieben höchsten Vibrationsniveaus des Grundzustands wurden als Anfangszustand von schwach gebundenen Molekülen in der MOT verwendet, während zur Betrachtung von photoassoziierten Molekülen die Streuzustände zweier Atome als Anfangszustand diente. Der Pump-Puls wurde als transform-limitierter Puls im Zeitraum gewählt und nach einer Fouriertransformation im Frequenzraum nahe der atomaren Resonanz - wie im Experiment - abgeschnitten. Durch die Rücktransformation in den Zeitraum ergab sich durch das Abschneiden des Pulsspektrums ein unphysikalisch langer Puls. Um dem entgegenzuwirken, wurde eine Einhüllende des Pulses verwendet. Der zweite Schritt des Pump-Probe-Experiments, die Anregung durch den Probe-Puls, wurde störungstheoretisch behandelt [117].

Die theoretische Behandlung der Pump-Probe-Spektroskopie erbrachte bei einer Bindung der Rb<sub>2</sub>-Moleküle von einer Wellenzahl im Grundzustand eine dem Experiment ähnliche Oszillationsperiode eines angeregten Wellenpakets für alle drei gebundenen Potentiale des Hundschen Falls (c) (s. Abb. 5.31). Jedoch konnte keine Abhängigkeit der Oszillationsperiode von der Kantenposition rot verschoben von der D<sub>1</sub>-Linie im Spektrum des Pump-Pulses beobachtet werden. Dies kann an der theoretischen Realisierung des Pump-Puls-Spektrums liegen, da die Einhüllende des Pulses nach der Rücktransformation in den Zeitraum die Kante im Pump-Puls-Spektrum verwischt. Diese Verbreiterung der Kante im Pulsspektrum macht eine Abhängigkeit der Oszillationsperiode von der Kantenposition unwahrscheinlich. Bei einem Anfangszustand mit Streuzuständen zweier Atome wurden deutlich längere Oszillationsperioden als im Experiment beobachtet. Außerdem besaßen die Signaloszillationen keine so klare Struktur wie im Experiment.

Weiterhin kann gesagt werden, dass das Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signal abhängig von der Zeitverzögerung des Pump- und Probe-Pulses ist, da die angeregte Population durch den NOPA-Puls nur bei bestimmten Kernabständen effektiv in einen stark gebundenen Zustand des Moleküls transferiert und nachgewiesen werden kann.

Warum die Oszillationsperiode von der Kantenposition abhängig ist, wird nun intuitiv deutlich. Bei einer größeren Verstimmung der Kante rot verschoben von den D-Linien werden die Übergangsfrequenzen für einen Transfer in höhere Schwingungsniveaus mehr und mehr abgeschnitten, so dass nur die restlichen Schwingungsfunktionen tiefer liegender Vibrationsniveaus das Wellenpaket bilden. Je tiefer die angeregten Vibrationsniveaus liegen, desto schneller oszilliert das erzeugte Wellenpaket. Damit gilt: Ist die Kante von der atomaren Resonanz weiter entfernt, so ist die Oszillationsperiode geringer (s. beispielsweise Tab. 5.7).

Hiermit lassen sich die Oszillationen im Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signal als Summe der Oszillationen von Schwingungsfunktionen verstehen, so dass die Oszillation für eine Kantenposition diejenigen mit dazu rot verschobenen Kantenpositionen beinhaltet. Zum Verständnis zeigt die Abb. 5.33 die aus den Pump-Probe-Messungen rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie gewonnenen Oszillationen des Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signals durch Bildung von Differenzen der Messungen bei unterschiedlichen Kantenpositionen.

In Abb. 5.33 (a) sind die Differenzen der Pump-Probe-Messungen für die Kantenpositionen 18, 20, 22 und 24 cm<sup>-1</sup> aufgetragen. Sie wurden aus der Differenz des Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signals bei jeweils zwei Kantenpositionen gewonnen. Für die Kantenposition 18 cm<sup>-1</sup> ist die Differenz des Pump-Probe-Signals der Messungen bei den Kantenpositionen 18 und 20 cm<sup>-1</sup> rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie gebildet worden. Die Differenzsignale bei den anderen angegebenen Kantenpositionen wurden analog gebildet. Die Addition der Signaldifferenzen aus Teilbild (a) ergibt mit dem Pump-Probe-Signal bei der Kantenposition 26 cm<sup>-1</sup> das Pump-Probe-Signal bei der Kantenposition 18 cm<sup>-1</sup> rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie<sup>17</sup> (s.

---

<sup>17</sup>Zum Vergleich s. Abb. 5.20

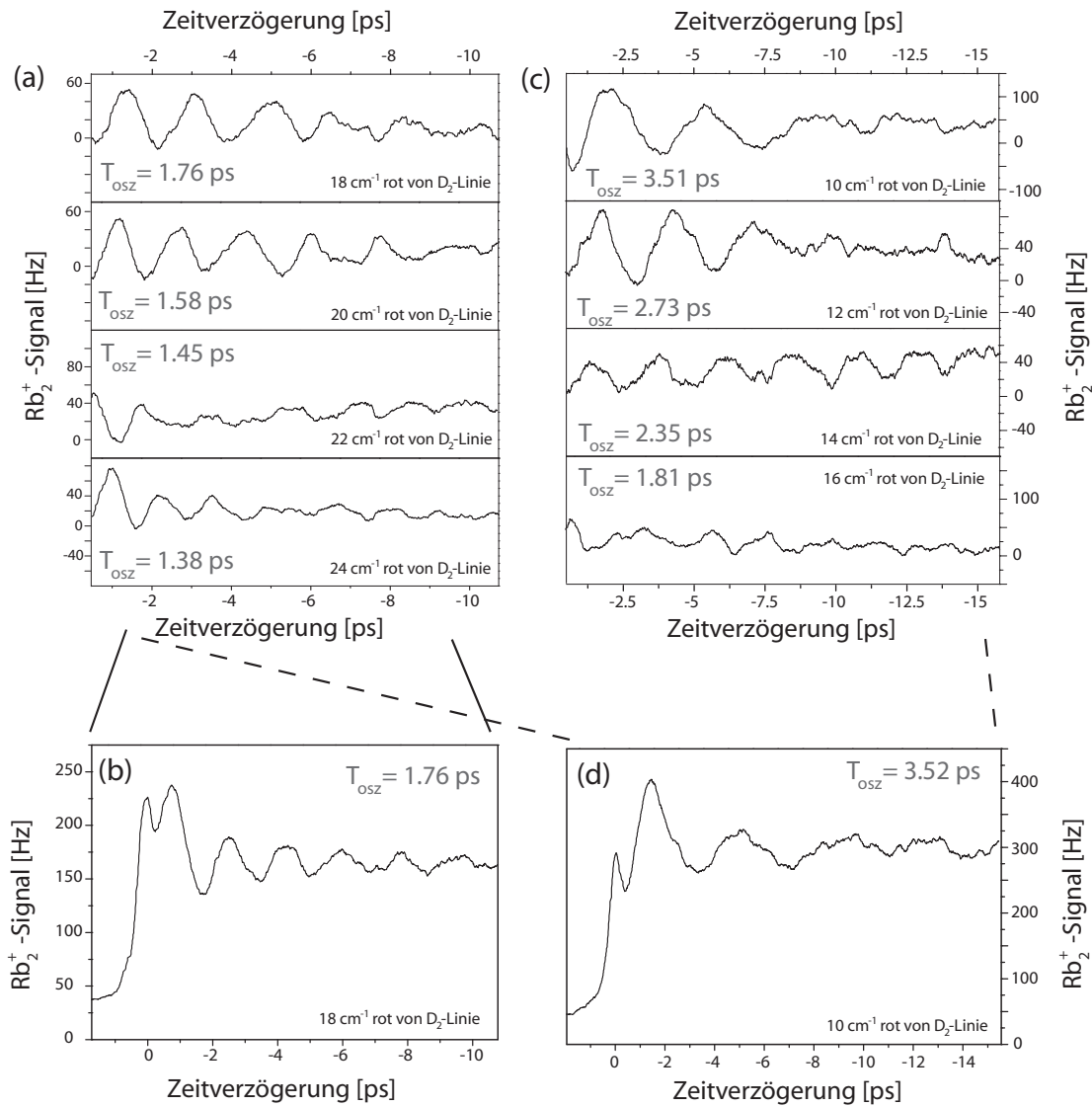


Abbildung 5.33: Zur Erklärung der Bildung des bei den Pump-Probe-Messungen beobachteten Wellenpakets aus den Schwingungsfunktionen unterschiedlich tief liegender Vibrationsniveaus werden die Differenzen der  $\text{Rb}_2^+$ -Signale für Kantenpositionen rot verschoben von der  $D_2$ -Linie aufgetragen (a), (d). Diese zeigen Oszillationsperioden, die mit einem zunehmenden Abstand von der  $D_2$ -Linie kleiner werden, und mit den Perioden der Pump-Probe-Signale bei diesen Kantenpositionen übereinstimmen. Die Addition der Differenzen aus Teilbild (a) ergibt mit dem  $\text{Rb}_2^+$ -Signal bei der Kantenposition  $26 \text{ cm}^{-1}$  das Molekülsignal bei der Kantenposition  $18 \text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $D_2$ -Linie (b). Die Gesamtsumme aller gezeigten Differenzsignale ergibt mit dem  $\text{Rb}_2^+$ -Signal bei der Kantenposition  $26 \text{ cm}^{-1}$  das Pump-Probe-Molekülsignal bei der Kantenposition  $10 \text{ cm}^{-1}$  rot verschoben von der  $D_2$ -Linie. Die verwendeten Pump-Probe-Signale stammen aus dem Experiment gezeigt in Abb. 5.20.

Abb. 5.33 (b)). Um einen besseren Überblick über die betrachteten Prozesse zu erhalten, stellt das Teilbild (c) die Differenzen der Pump-Probe-Signale bei den weniger weit verstimmtten Kantenpositionen 10, 12, 14 und 16 cm<sup>-1</sup> dar. In (d) wird die Gesamtsumme aller Molekülsignaldifferenzen mit dem Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signal bei der Kantenposition 26 cm<sup>-1</sup> gezeigt, die der Pump-Probe-Messung bei der Kantenposition 10 cm<sup>-1</sup> rot verschoben von der D<sub>2</sub>-Linie entspricht. Obwohl sich die experimentellen Fehler bei der Differenzbildung addieren, kann eine Aussage über die Oszillationsperioden in den Differenzsignalen der einzelnen Kantenpositionen getroffen werden. Wie erwartet, ist eine Zunahme der Oszillationsperiode mit kleinerem Abstand der Kante von der D<sub>2</sub>-Linie zu erkennen, und ein Vergleich der Oszillationsperioden der Differenzsignale mit Tabelle 5.7 zeigt, dass diese mit denen der detektierten Pump-Probe-Signale bei entsprechender Kantenposition übereinstimmen.

Die immer in den Pump-Probe-Messungen sichtbare asymmetrische Form des ersten Oszillationsmaximums ist in den Differenzen der Molekülsignale nicht mehr zu beobachten. Bei den Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signalen tritt sie wegen der Addition der Frequenzkomponenten aller weiter entfernten Kantenpositionen auf.

Weiterhin kann über die Zusammensetzung der Oszillationsperiode durch die unterschiedlichen Frequenzkomponenten des Pump-Pulses ausgesagt werden, dass die weiter rot verstimmtten Komponenten maßgeblich für die Signaloszillation sind. Die Ursache dafür ist, dass die Frequenzkomponenten nahe an der Kante des physikalischen Blockers durch ihn gestört und damit verlängert werden. Die relativ kurzen Oszillationsperioden, die in den Experimenten gesehen wurden, sind somit verständlich.

Wie die Abhängigkeit der Molekülooszillationen vom Chirp des Pump-Pulses erklärt werden können, zeigen die folgenden Schlussfolgerungen. Bei Kantenpositionen rot verschoben von den D-Linien wurde bei einem positiven Chirp des Pump-Pulses eine Verschiebung des Kreuzkorrelationspeaks zu negativen Verzögerungszeiten beobachtet, während bei einem negativen Chirp des Pump-Pulses die Verschiebung in die andere Richtung erfolgte (s. Abb. 5.15 und Abb. 5.24). Die für den Anregungsübergang relevantesten Frequenzen befinden sich nahe der jeweiligen D-Linie. Da die Zentralwellenlänge jeweils 5 nm rot verschoben von der D-Linie gewählt wurde und sich nahe dem Modulatormittelpixel befindet, liegen die für den Prozess relevanten Frequenzen auf der blauen Seite des Modulatormittelpixels und werden durch einen positiven Chirp ans Ende des Pulses verschoben. Dies bewirkt die Verschiebung des Kreuzkorrelationspeaks in den Pump-Probe-Messungen zu negativen Verzögerungszeiten.

Eine weitere Beobachtung bei der Untersuchung der Abhängigkeit des Molekülsignals vom Chirp des Pump-Pulses war die Verringerung des Abstands vom ersten Oszillationsmaximum zum Kreuzkorrelationspeak bei einem positiven Chirp. Es war zu erkennen, dass das erste Oszillationsmaximum trotz der Verschiebung des Kreuzkorrelationspeaks mit zunehmendem Chirp am gleichen Ort bleibt (s. Abb. 5.15 und Abb. 5.24). Dies ist dadurch zu erklären, dass die für



die Anstiegsflanke des ersten Oszillationsmaximums wichtigen Frequenzen nahe dem Zentralpixel des Flüssigkristallmodulators liegen und durch den Chirp wenig beeinflusst werden<sup>18</sup>.

Die Verschiebung des Kreuzkorrelationspeaks in den Pump-Probe-Messungen mit einem zunehmend großen positiven Chirp zu negativen Verzögerungszeiten und die Beibehaltung der Position des ersten Oszillationsmaximums resultiert in der Abstandsverringerung beider Maxima. Der zugrunde liegende Prozess ist bei einem negativen Chirp des Pump-Pulses wie erwartet dem bei einem positiven Chirp des Pump-Pulses konträr. Jedoch war bei den Pump-Probe-Experimenten die Vergrößerung des Abstands des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak nur in der Tendenz zu erkennen.

Wie die beobachteten Oszillationen des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals für Kantenpositionen blau verschoben von den D-Linien in diesem Erklärungsschema verständlich werden, diskutiere ich nachstehend. Die erste Beobachtung von Oszillationen des Molekülsignals mit einem Pump-Pulsspektrum, dessen rote Frequenzanteile blockiert sind, waren bemerkenswert. Es stellte sich die Frage, wie Wellenpaketoszillationen des  $\text{Rb}_2$ -Dimers beobachtet werden können, wenn das Molekül mit Frequenzen blau verschoben von den D-Linien angeregt wird. Auf den ersten Blick ist ein Übergang in einen gebundenen angeregten Zustand nicht möglich. Was wir beobachteten, waren zwar geringere  $\text{Rb}_2^+$ -Signalstärken als bei Kantenpositionen rot verschoben von den D-Linien, jedoch deutlich ausgeprägte Wellenpaketoszillationen, deren Stärke und Periode - wie auf der anderen Seite der D-Linien - mit einer zunehmenden Verstimmung der Kantenposition von der D-Linie abnahm. Der Abstand des ersten Oszillationsmaximums zum Kreuzkorrelationspeak betrug aber im Unterschied zu Kantenpositionen rot verschoben von den D-Linien nicht die Hälfte einer Oszillationsperiode sondern ca. ein Drittel (s. Tab. 5.3 und Tab. 5.8).

Diese Beobachtungen sind unter der Voraussetzung erklärbar, dass auch niedrigere Schwingungsniveaus im Grundzustand besetzt werden, die durch die Anregung mit dem Pump-Puls ein Wellenpaket in niedrigeren Vibrationsniveaus in den angeregten Potentialen erzeugen. Das ist trotz der deutlichen Abnahme der Franck-Condon-Faktoren mit einer zunehmenden Kantenverstimmung möglich, welches ebenfalls die starke Intensitätsabnahme des Molekülsignals erklärt. Um diese Übergänge durchzuführen, muss die Anregung bei kleineren Kernabständen erfolgen, da sie ansonsten nicht in einen gebundenen angeregten Zustand führen, sondern im Kontinuum enden würde. Daher findet bei einer zunehmenden Kantenverstimmung blau verschoben von den D-Linien die Anregung durch den

---

<sup>18</sup>Aus den Pump-Probe-Messungen bei unterschiedlichen Kantenpositionen kann gefolgert werden, dass sich die Flanke des ersten Oszillationsmaximums aus niedrigeren Frequenzen zusammensetzt und die Asymmetrie des ersten Oszillationsmaximums bewirkt. In Abb. 5.20 ist deutlich zu erkennen, dass die Oszillationsminima für entferntere Kantenpositionen verschoben werden, während die ansteigende Flanke des ersten Oszillationsmaximums an der gleichen Stelle der Verzögerungszeit bleibt.

Pump-Puls bei kleineren Kernabständen statt, so dass tiefer liegende Vibrationsniveaus besetzt und kürzere Oszillationsperioden als bei Kantenpositionen rot verschoben von den D-Linien erzeugt werden.

Wegen einer Anregung ausgehend vom Grundzustand zu angeregten Potentialen bei kleineren Kernabständen als dem äußeren Umkehrpunkt beginnt das Wellenpaket mit seiner Propagation näher am inneren Umkehrpunkt als bei Kantenpositionen rot verschoben von den D-Linien. D.h. es ist früher als nach einer halben Oszillationsperiode am inneren Umkehrpunkt, an dem es durch den NOPA-Puls durch Ionisation abgefragt wird.

Die Erklärung der Abhängigkeit der Oszillationsstruktur im Molekülsignal vom Chirp des Pump-Pulses verläuft analog zu den Kantenpositionen rot verschoben von den D-Linien. Die Verschiebungsrichtung des Kreuzkorrelationspeaks ist durch die Anordnung der für den Prozess wichtigen Frequenzanteile bzgl. des Modulatorpixels verständlich. Bei einer Kantenposition blau verschoben von der jeweiligen D-Linie kann jedoch keine Änderung des Abstands vom ersten Oszillationsmaximum zum Kreuzkorrelationspeak beobachtet werden, welches daran liegen kann, dass die für die Oszillationsstruktur und die Bildung des Kreuzkorrelationspeaks relevanten Frequenzanteile nahe beieinander liegen und durch einen linearen Chirp des Pump-Pulses ähnlich stark verschoben werden.

Als letzter Punkt ist das spiegelbildliche Verhalten des Fluoreszenzsignals zu diskutieren. Als mögliche Erklärung dient die Störung der MOT durch die Bildung erheblicher Mengen von Ionen. Das spiegelbildliche Verhalten wird durch die Anregung des Rubidium-Dimers durch den Pump-Puls in ein Potential der  $\text{Rb}(5s)+\text{Rb}(5p)$ -Asymptote verständlich. Nachdem der Probe-Puls das erzeugte Wellenpaket im inneren Umkehrpunkt in das ionische Grundzustandspotential ionisiert, ist weniger angeregte Population zur Erzeugung des Fluoreszenzsignals vorhanden - somit ist ein Abfall des Fluoreszenzsignals zu beobachten. Eine mögliche Erklärung weswegen der Verlust im Fluoreszenzsignal bei gleichzeitiger Einstrahlung von Pump- und Probe-Puls nur ca. 75 % der Höhe vom Peak im  $\text{Rb}_2^+$ -Signal besitzt, kann folgende sein: Bei einer gleichzeitigen resonanten Einstrahlung beider Pulse ist eine größere Population in den angeregten Zuständen der  $\text{Rb}(5s)+\text{Rb}(5p)$ -Asymptote denkbar, da ansonsten aufgrund des schlechteren Franck-Condon-Überlapps nicht eine so hohe  $\text{Rb}_2^+$ -Signalausbeute zustande kommen könnte. Ist zu diesem Zeitpunkt der Verzögerung von Pump- und Probe-Puls aber mehr Population in den angeregten Zuständen vorhanden, könnte diese Populationsvermehrung zu einer höheren Fluoreszenz führen. Durch das höhere Fluoreszenzsignal erreicht der zu beobachtende Abfall der Fluoreszenz nicht die entsprechende Größe des Kreuzkorrelationspeaks im Ionensignal.

### 5.4.2.2 Ergebnisdiskussion ausgehend von Photoassoziation der Moleküle mit fs-Laserpuls

In diesem Erklärungsansatz wird davon ausgegangen, dass die beobachteten  $\text{Rb}_2^+$ -Dimere durch den fs-Laserpuls des RegAs photoassoziiert sind. Hierbei stoßen freie Atome und werden durch den assoziierenden Laserpuls in einen gebundenen Zustand angeregt. In diesem angeregten Zustand wird ein kohärentes Wellenpaket erzeugt, das anfängt, im Molekülpotential zu propagieren. Dieses Anregungsschema wird in Abb. 5.34 verdeutlicht, dadurch dass in Teilbild (a) die photoassoziiierende Anregung in ein gebundenes Potential durch den Pump-Puls und in (b) die Ionisation durch den Probe (NOPA)-Puls angedeutet wird. In beiden Teilbildern wird die Möglichkeit offen gehalten, dass der Pump-Puls eine ein- oder zweiphotonische Anregung durchführt. Bei einer einphotonischen Anregung wird ein Wellenpaket in Potentialen der  $\text{Rb}(5s)+\text{Rb}(5p)$ -Asymptote erzeugt, während ein zweiphotonischer Übergang dieses in Potentialen der  $\text{Rb}(5s)+\text{Rb}(5d)$ -Asymptote erzeugen würde. Je nach Anregungstyp ionisiert der Probe-Puls am inneren Umkehrpunkt des angeregten Zustands das Dimer mit einer größeren Energie des abgelösten Elektrons (s. Abb. 5.34).

Die Photoassoziation findet nahe unter der molekularen Dissoziationsgrenze bei großen Kernabständen statt<sup>19</sup>, wo die Molekülpotentiale stark anharmonisch sind. Ein Übergang bei großen Kernabständen wird durch die dort hohen Franck-Condon-Faktoren favorisiert. Durch die Kürze des anregenden fs-Laserpulses sowie der Manipulation seines Pulsspektrums, die die atomare Resonanz ausschließt, ist die Propagation des erzeugten Wellenpakets beobachtbar.

Das in Abb. 5.34 vorgeschlagene Anregungsschema bietet eine vollständige Erklärung der sichtbaren dreiteiligen Struktur der Pump-Probe-Signale. Bei Verzögerungszeiten, in denen der Pump-Puls dem Probe-Puls folgt, ist ein konstantes Molekülsignal zu beobachten, dessen Erklärung ich mich später zuwenden werde.

Bei einem gleichzeitigen Einstrahlen beider Pulse steigt das  $\text{Rb}_2^+$ -Signal stark an und bildet einen Peak mit der Breite von ca. 0.5 ps, abhängig von der Verstimmung der Kante gegenüber der jeweiligen D-Linie. Dieser sog. Kreuzkorrelationspeak könnte aus einer Zwei-Farben-Anregung eines Grundzustandsatoms zu einem Rydbergzustand resultieren, gefolgt von einer assoziierenden Stoß-Ionisation. Ebenso kann eine direkte Photoassoziations-Anregung eines Atom-Paares in den elektronischen Grundzustand des  $\text{Rb}_2^+$ -Ions erfolgen.

Folgt der Probe-Puls zeitlich dem Pump-Puls, ist eine charakteristische Oszillation des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals sichtbar, die ca. eine halbe Oszillationsperiode nach dem Kreuzkorrelationspeak beginnt. Nach einigen Oszillationsperioden ist ein Verwaschen der Struktur zu einem konstanten Level zu beobachten. Die Oszillationsperioden der erzeugten Wellenpaketoszillation liegen auf einer Zeitskala, die in diesem System nur für relativ kleine Kernabstände um die 12 Å auftreten

<sup>19</sup>Diese wurde in Abb. 5.34 nur schematisch dargestellt.

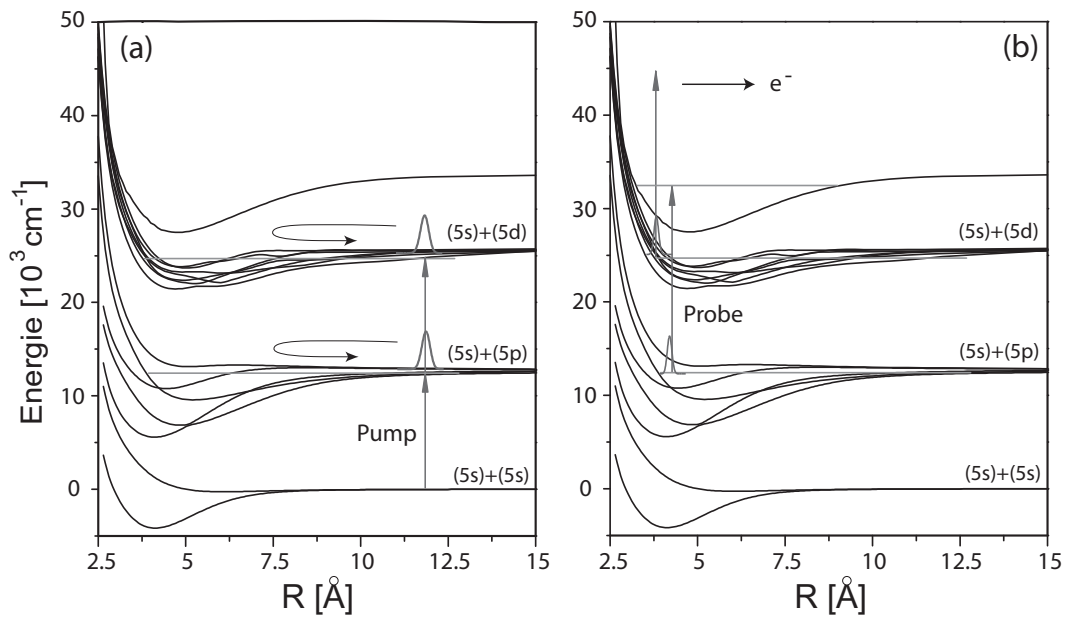


Abbildung 5.34: Das Bild zeigt das mögliche Anregungsschema für durch den Pump-Puls photoassoziierte  $\text{Rb}_2$ -Dimere. In Teilbild (a) ist die Erzeugung eines Wellenpakets durch den Pump-Puls in Potentialen der  $(5s)+(5p)$ -Asymptote für eine einphotonische Anregung und in Potentialen der  $(5s)+(5d)$ -Asymptote für eine zweiphotonische Anregung gezeigt. Der Probe-Puls fragt die Wellenpaketpropagation durch Ionisation am inneren Umkehrpunkt des angeregten Zustands ab (b).

können. Der Abstand vom ersten Oszillationsmaximum zum Peak der Kreuzkorrelation von etwa einer halben Oszillationsperiode weist auf eine halbe Wellenpaketoszillation hin, bevor das angeregte Dimer durch den NOPA-Puls effizient ionisiert werden kann. Das Anregungsschema sieht demnach wie folgt aus: Nach einer Erzeugung des Wellenpakets durch den photoassoziiierenden fs-Laserpuls am äußeren Umkehrpunkt des angeregten Zustands, an dem der Franck-Condon-Überlapp mit den Kontinuum-Paar-Wellenfunktionen groß ist, propagiert es im Molekülpotential. Nach einer halben Oszillationsperiode erreicht das Wellenpaket den inneren Umkehrpunkt des Potentials, an dem ein guter Überlapp mit dem  $\text{Rb}_2^+$ -Zustand vorhanden ist, und eine Zunahme des Molekülsignals kann anhand einer effizienten Ionisation durch den NOPA-Puls erzielt werden.

Die Abhängigkeit der Oszillationsperiode von der Kantenposition rot verschoben bzgl. der D-Linien kann nun erklärt werden. Je weiter die Kante zur D-Linie verstimmt ist, desto tiefer gebundene Vibrationsniveaus werden angeregt. Diese besitzen einen reduzierten Franck-Condon-Überlapp zum ausgehenden Kontinuums-Zustand, welches eine Reduktion des  $\text{Rb}_2^+$ -Signals bewirkt. Da

die angeregten Vibrationsniveaus tiefer im Potentialtopf liegen, besitzen die Wellenpakete dieser Schwingungsniveaus eine kürzere Oszillationsperiode.

Klassische und quantenmechanische Rechnungen zeigen jedoch für schwach gebundene Moleküle in den Rb(5s)+Rb(5p)-Zuständen Oszillationsperioden, die ca. einen Faktor 10 größer<sup>20</sup> sind als die in den Pump-Probe-Signalen beobachteten. Nur Wellenpakete in tiefer gebundenen Vibrationsniveaus besitzen Oszillationsperioden von einigen wenigen ps. Die Anregung dieser tiefer liegenden Schwingungsniveaus findet jedoch nur mit den äußersten roten Spektralkomponenten des Pump-Pulses statt, deren Intensität sehr gering ist. Diese roten Frequenzkomponenten würden ein solch starkes Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signal nicht erzielen und wären zudem nicht sensitiv auf die Kantenposition, die nahe der atomaren Resonanz liegt.

Damit liegt die Schlussfolgerung nahe, dass die Wellenpaketoszillation Potentialen zugeordnet werden könnte, die durch eine zweiphotonische Anregung des Pump-Pulses erreicht werden können. Dafür mögliche Potentiale lägen unterhalb der Rb(5s)+Rb(5d)-Asymptote (s. Abb. 5.34). Wellenpakete in diesen Potentialen, erzeugt durch eine zweiphotonische Anregung des RegA-Pulses, können die Oszillationszeiten aus den Pump-Probe-Ergebnissen liefern.

Eine andere Möglichkeit, diese relativ schnellen Oszillationszeiten des Pump-Probe-Signals zu erklären, wäre die Spin-Orbit-Kopplung von zwei Potentialkurven, die jeweils zur <sup>2</sup>P<sub>3/2</sub>+<sup>2</sup>S<sub>1/2</sub>- und <sup>2</sup>P<sub>1/2</sub>+<sup>2</sup>S<sub>1/2</sub>-Asymptote konvergieren.

Die Diskussion der Ergebnisse der Pump-Probe-Spektroskopie mit Kantenpositionen rot verschoben von den atomaren Resonanzen ist nunmehr analog zum ersten Teil des Diskussionskapitels.

Weiterhin kann der spiegelbildliche Verlauf des Fluoreszenzsignals in diesem Erklärungsbild wie folgt verstanden werden: Der beobachtete Einbruch des Fluoreszenzsignals bei gleichzeitigem Pump- und Probe-Puls (s. Abb. 5.29) wird durch die atomare Ionisation erzeugt, durch die die MOT einen Verlust an Atomen erleidet und die Fluoreszenz verringert wird. Im weiteren Verlauf des Signals wird die Anzahl der Atome in der MOT durch die photoassoziierten Moleküle verringert, welches durch die Abnahme in der Fluoreszenz sichtbar wird. Durch diese unterschiedlichen Erklärungen des Fluoreszenzabfalls kann verstanden werden, wie eine unterschiedliche Höhe des Kreuzkorrelationspeaks bzw. des Einbruchs im Fluoreszenzsignal zustande kommen kann, während die Oszillationen in dem Pump-Probe- und dem Fluoreszenz-Signal die gleiche Stärke zeigen.

Abschließend wende ich mich dem Bereich der Pump-Probe-Messungen zu, in denen der Pump- dem Probe-Puls zeitlich folgt. Wie in den unterschiedlichen Messungen zu beobachten war, ist die in diesem Zeitverzögerungsbereich sichtbare Signalthöhe abhängig von der Kantenposition (s. Abb. 5.12 und Abb. 5.20). In etwa beträgt hier die Signalstärke 25 % der Signalthöhe nach dem Auslaufen der Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>-Signaloszillationen. Eine mögliche Erklärung ist das Entstehen dieses Signals durch Anregung von Grundzustandsmolekülen. Diese können in der MOT

<sup>20</sup>Die Oszillationsperioden betragen ca. 50-60 ps.

vorhanden sein, da die durch die Fallenlaser photoassoziierten angeregten Moleküle durch den fs-Laserpuls des RegAs in den Grundzustand transferiert und von dort von der nächsten Pulssequenz  $10 \mu\text{s}$  später ionisiert werden. Bei dieser Ionisation regt der Probe-Puls die Moleküle zunächst in ein Potential an, welches beispielsweise zur  $\text{Rb}(5s)+\text{Rb}(6s)$ - oder  $\text{Rb}(5s)+\text{Rb}(5d)$ -Asymptote verläuft, und die angeregten Moleküle werden durch den Pump-Puls ionisiert.

Wie die Pump-Probe-Ergebnisse mit Kantenpositionen blau verschoben von den D-Linien durch das Erklärungsschema ausgehend von photoassoziierten Molekülen verstanden werden können, ist nicht im Detail nachzuvollziehen. Die bei dem ersten Erklärungsschema diskutierte Möglichkeit, dass auch eine Anregung aus tieferen Vibrationszuständen in tiefere Schwingungszustände von Potentialen der  $\text{Rb}(5s)+\text{Rb}(5p)$ -Asymptote möglich ist, die diese Wellenpaketoszillationen erklärt, ist hier ausgeschlossen. Ein zweiphotonischer resonanter Übergang ausgehend vom Dissoziationslimit des molekularen Grundzustands ergibt keine Möglichkeit eines energetisch tiefer liegenden Ausgangspunkts der Ionisation.

Eine weitere offene Frage ist die Abhängigkeit der Pump-Probe-Signalstärke von der Wellenlänge des Probe-Pulses (s. Abb. 5.19). Bei einer zweiphotonischen Anregung durch den Pump-Puls wird bei der Ionisation des Dimers die überschüssige Energie an das Elektron abgegeben. Warum die Effizienz dieser Anregung von der Wellenlänge des ionisierenden Laserpulses abhängt, ist nicht verständlich. Eine Erklärung könnte die Anregung in gebundene ionische Potentiale sein.

Eine eindeutige Zuordnung der Pump-Probe-Experimente zu einem der beiden vorgestellten Erklärungsschemata kann bisher leider nicht getroffen werden. Auf theoretischer Grundlage ist eine qualitative Entscheidung für ein Erklärungsschema nicht möglich, da die Knotenpunkte der Schwingungswellenfunktionen der schwach gebundenen Moleküle mit den Knotenpunkten der Streufunktionen zweier Atome im Fall der Photoassoziation übereinstimmen [118]. Eine weitere Erklärungsmöglichkeit liegt in der Überlagerung von Ionisationsprozessen schwach gebundener und photoassoziiertes  $\text{Rb}_2$ -Dimere, wobei nicht klar ist, wie bei einer möglichen Überlagerung dieser beiden Prozesse die im Experiment sichtbare klare Oszillationsstruktur erhalten werden kann.

Trotz der offenen Erklärung dieser Experimente möchte ich betonen, dass die sichtbar gewordene Molekulardynamik in angeregten Zuständen sowie die Lokalisierung der Wellenpakete entscheidende Informationen zur weiteren Beeinflussung der molekularen Dynamik liefern. Die Beeinflussung der Moleküldynamik durch fs-Laserpulse könnte eine zukünftige vibrationelle Kühlung von Molekülen ermöglichen.