

Kapitel 6

Zusammenfassung

In meiner Arbeit untersuchte ich Alkalidimere mittels kohärenter Kontrolle im Molekularstrahl sowie durch Pump-Probe-Spektroskopie in einer magneto-optischen Falle (MOT).

Die optimale Kontrolle wurde verwendet, um im Molekularstrahl erzeugte Dimere isotopenselektiv anzuregen. Diese Methode der isotopenselektiven Anregung ist im Vorteil gegenüber herkömmlichen Methoden, die ein ausführliches Vorwissen der untersuchten Moleküle benötigen. Bei der isotopenselektiven Anregung durch optimale Kontrolle wurde der anregende fs-Laserpuls durch einen Pulsformer in seiner zeitlichen und spektralen Struktur auf das betrachtete Ziel hin optimiert. Im Kapitel 4 diskutierte ich die gewonnenen Ergebnisse am NaK- und KRb-Dimer, wobei unterschiedliche Pulsformer für die Experimente verwendet wurden. Bei der isotopenselektiven Kontrolle des NaK-Dimers wurde zwischen der Maximierung und Minimierung des $(^{23}\text{Na}^{39}\text{K})^+ / (^{23}\text{Na}^{41}\text{K})^+$ -Isotopomerenverhältnisses bei einer Zentralwellenlänge des fs-Laserpulses von 770 nm ein Optimierungsfaktor von $\mathfrak{R}_{Ph \& Ampl}^{770} = \frac{\mathfrak{R}_{max}}{\mathfrak{R}_{min}} = 25$ bei gleichzeitiger Modulation der Phase und Amplitude gewonnen, welches eine sehr hohe Ausbeute durch die geformten Laserpulse bedeutet. Weiterhin wurde das Dimer durch reine Phasen- und reine Amplitudenmodulation sowie bei einer Zentralwellenlänge des fs-Laserpulses von $\lambda = 780$ nm untersucht. Die Zuordnung von spektralen Strukturen der optimierten Pulse zu Übergangsfrequenzen beider Isotopomere gab den Hinweis auf eine stufenweise Ionisation (s. Kapitel 4.3.3). Nach einer einphotonischen Anregung aus dem Grundzustand $X(1)^1\Sigma^+; \nu'' = 0$ propagiert das erzeugte Wellenpaket im $A(2)^1\Sigma^+$ -Zustand. Von dort wird es über ein resonantes Molekülpotential in das ionische Grundzustandspotential transferiert und nachgewiesen. Weiterhin zeigten die experimentellen Ergebnisse den hohen Optimierungsgrad der simultanen Phasen- und Amplitudenmodulation, bei der die Formung der zeitlichen und spektralen Pulsstrukturen optimal im Anregungsprozess zusammenspielt.

Die komplexe zeitliche Struktur der optimierten Pulse der Maximierung des Isotopomerenverhältnisses bei reiner Phasenoptimierung und gleichzeitiger Phasen- und Amplitudenmodulation konnte durch den Vergleich der experimentell

gewonnenen Daten mit den Ergebnissen des OCT-Verfahrens - ausgeführt durch die Arbeitsgruppe von Prof. Bonačić-Koutecký - verstanden werden (s. Kapitel 4.3.4). Diese Rechnungen zeigten, dass hauptsächlich die Dephasierung der Wellenpakete im ersten angeregten $A(2)^1\Sigma^+$ -Zustand zur isotopenselektiven Anregung beiträgt. Die OCT-Ergebnisse für die simultane Phasen- und Amplitudenmodulation wiesen, wie das Experiment, auf das Adressieren von Schwingungszuständen im ersten angeregten Zustand hin, die durch die zusätzliche Phasenmodulation mit den Dephasierungseffekten der Wellenpakete durch die optimierte zeitliche Pulsstruktur gekoppelt wurde.

Für die isotopenselektive Kontrolle des KRb-Dimers wurde das Isotopomenverhältnis $(^{124}\text{KRb})^+ / (^{126}\text{KRb})^+$ als Fitness-Funktion des Optimierungsalgorithmus gewählt (s. Kapitel 4.4.3). Die Experimente wurden mit einem Pulsformer realisiert, der die höchste spektrale Auflösung von $1.84 \text{ cm}^{-1}/\text{Pixel}$ besitzt, die bisher für ein kohärentes Kontrollexperiment verwendet wurde. Die Experimente bei einer Zentralwellenlänge von 840 nm ergaben bei der kombinierten Phasen- und Amplitudenmodulation einen Optimierungsfaktor von $\mathcal{R}_{Ph \& Ampl} = \frac{\mathcal{R}_{max}}{\mathcal{R}_{min}} = 7$ zwischen der Maximierung und Minimierung des Isotopomenverhältnisses. Neben dieser effektiven isotopenselektiven Anregung erlaubte die hohe spektrale Auflösung des Experiments bei den Minimierungen der Fitness-Funktion die eindeutige Bestimmung, welches Isotopomer der atomaren Masse 126 amu stärker zur Optimierung des Isotopomenverhältnisses beiträgt. Zu Beginn des Experiments war nur der Beitrag des $^{39}\text{K}^{85}\text{Rb}$ -Isotopomers zur Optimierung bekannt. Die Zuordnung von Übergangsfrequenzen zu spektralen Peaks des optimierten Spektrums erlaubte zumindest bei den Minimierungen des Isotopomenverhältnisses die Bestimmung des größeren Beitrags des $^{41}\text{K}^{85}\text{Rb}$ -Isotopomers als atomare Masse 126 amu zur Optimierung. Wie bei den NaK-Experimenten wurden simultane und reine Phasen- und Amplitudenoptimierungen durchgeführt und analysiert. Das vorgeschlagene Anregungsschema beinhaltet den einphotonischen Übergang vom Grundzustand in den angeregten $(2)^1\Sigma^+$ -Zustand. Von dort aus liegen drei Potentiale im resonanten Anregungsfenster zum ionischen Grundzustandspotential, über die die Ionisation erfolgen kann.

Als weiterführende Experimente wäre die isotopenselektive Kontrolle - neben der Amplituden- und Phasenmodulation des Pulses - durch Optimierung der Polarisation des fs-Laserpulses denkbar. Die Möglichkeit der kontrollierten Polarisationsänderung der Laserpulse besteht in der Arbeitsgruppe und ist gerade bei Photoionisationsexperimenten von großem Interesse, da optische Übergänge zwischen molekularen Anregungszuständen durch eine Drehung der Polarisation optimiert werden können. Weiterhin ist eine Untersuchung der isotopenselektiven Anregung komplexerer Systeme möglich. Dafür bietet sich neben Molekularstrahlexperimenten ebenfalls die Untersuchung durch das in der Arbeitsgruppe neue MALDI-Experiment an. Die Ausnutzung der hohen spektralen Auflösung des $2x640$ -Pixel-Pulsmodulators steht im Mittelpunkt der kohärenten Kontrollexperimente.

In Kapitel 5 befasste ich mich mit der Pump-Probe-Spektroskopie an Rb_2 -Molekülen in der dark SPOT. Hier konnte erstmals die Molekulardynamik durch fs-Laserpulse beobachtet und untersucht werden. Dazu wurden Zweifarben-Pump-Probe-Experimente durchgeführt, wobei der Pump-Puls ein verstärkter fs-Laserpuls des RegA-Systems war und der Probe-Puls durch einen NOPA erzeugt wurde. Das Spektrum des Probe-Pulses wurde durch Manipulation in der Fourierebene des verwendeten Pulsformers nahe - und vor allen Dingen einschließlich - der atomaren Resonanzen blockiert. Für die Experimente an der D_1 -Linie wurde eine Zentralwellenlänge von 800 nm des Pump-Pulses und 496 nm des Probe-Pulses verwendet. Bei der D_2 -Linie lag die Zentralwellenlänge des Pump-Pulses bei 785 nm. Durch eine Abhängigkeitsmessung des Rb_2^+ -Signals von der NOPA-Wellenlänge ergab sich dort die effektivste Anregung des Rb_2 -Dimers bei der Zentralwellenlänge $\lambda = 505$ nm. Die Ergebnisse der Pump-Probe-Messungen bei beiden atomaren Resonanzen (D_1 -Linie und D_2 -Linie) zeigten eine stark ausgeprägte Oszillationsstruktur des Rb_2^+ -Signals. Sie konnten bei Kantenpositionen des physikalischen Blockers im Spektrum rot und blau verschoben von den D-Linien beobachtet werden, wobei die Oszillationsperiode mit der Verstimmung der Kante von den D-Linien abnahm. Die Oszillationsperiode lag dabei in einem Bereich von wenigen Pikosekunden.

Die beobachteten Prozesse bei beiden atomaren Resonanzen waren sehr ähnlich. Im Allgemeinen besaßen die Pump-Probe-Signale eine dreiteilige Struktur. Für Verzögerungszeiten, in denen der Pump-Puls dem Probe-Puls folgte, war ein konstantes Niveau des Rb_2^+ -Signals zu erkennen. Bei gleichzeitig eingestrahltm Pump- und Probe-Puls war die Form einer Kreuzkorrelation beider Pulse im Signal zu beobachten. Die Wellenpaketszillationen wurden im Bereich von negativen Verzögerungszeiten, in dem der Pump-Puls vor dem Probe-Puls in die MOT fokussiert wird, sichtbar. Die Molekülsignalstruktur konnte durch einen Chirp des Pump-Pulses beeinflusst werden.

Für die Erklärung der Pump-Probe-Ergebnisse in der MOT diskutierte ich zwei mögliche Erklärungsschemata. Einerseits ging ich von in der MOT existierenden schwach gebundenen Rb_2 -Dimeren im Grundzustand aus und andererseits von durch den fs-Laserpuls photoassoziierten Molekülen. Eine direkte Zuordnung der Experimente zu einem dieser Erklärungsschemata war mir zum Zeitpunkt dieser Arbeit leider nicht möglich. Jedoch konnten alle sichtbaren Abhängigkeiten des Pump-Probe-Signals in einem der beiden Bilder erklärt und ihr Prozess visualisiert werden. Weitere Experimente lassen auf eine Erklärung des Ursprungs der beobachteten Rb_2 -Dimere hoffen.

Die Möglichkeit, durch fs-Laserpulse die Molekulardynamik von Dimeren in der MOT zu beeinflussen, bietet eine Vielzahl von Folgeexperimenten. Die vibrationelle Kühlung von in der MOT hergestellten Dimeren durch fs-Pulse wäre dabei sehr wünschenswert und würde für die Herstellung eines schwingungsgekühlten molekularen Bose-Einstein-Kondensats (BEC) wegweisend sein.