

Heteronukleare Photoassoziation in einem kalten ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ -Gemisch

Dissertation

zur Erlangung des Grades eines Doktors

der Naturwissenschaften

der Fakultät für Mathematik und Physik

der Eberhard-Karls-Universität zu Tübingen

vorgelegt von

Ulrike Schlöder

aus Köln

2003

Tag der mündlichen Prüfung: 12. Juni 2003

Dekan:	Prof. Dr. H. Müther
1. Berichterstatter:	Prof. Dr. C. Zimmermann
2. Berichterstatter:	Prof. Dr. M. Weidemüller
3. Berichterstatter:	Prof. Dr. V. Vuletic

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	3
2.1	Langreichweitige Wechselwirkungen	3
2.1.1	Potential: asymptotische Näherung	4
2.1.2	Energiespektrum: LeRoy-Formalismus	6
2.1.3	Wellenfunktionen	9
2.2	Photoassoziation	13
2.2.1	Prozeß	13
2.2.2	Ratenkoeffizient	15
2.2.3	Streuwahrscheinlichkeit	15
2.2.4	Erweiterung des Modells	19
2.3	Heteronukleare Systeme	22
2.3.1	Homonukleare und heteronukleare Photoassoziation	22
2.3.2	Heteronukleares System ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$	24
2.3.3	Methode der massenreduzierten Quantenzahlen	29
2.3.4	Detektion in der kombinierten magnetooptischen Falle	31
3	Experimenteller Aufbau	37
3.1	Präparation eines kalten ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ -Gemisches	37
3.1.1	Vakuumapparatur	37
3.1.2	Lasersystem	42
3.1.3	Detektion	46
3.1.4	Simultane Speicherung	48
3.2	Photoassoziationsspektrometer	51
3.2.1	Laser	51
3.2.2	Frequenzeichung	52
3.2.3	Fokussierung	53
4	${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$-Spektren	57
4.1	Meßverfahren	57
4.2	Nachweis der heteronuklearen Photoassoziation	61
4.3	Singulett- und Triplettspektren	63

5	Hyperfeinaufgelöste Spektren	69
5.1	Vorbetrachtung	69
5.2	Singulettpektrum	72
5.3	Triplettspektrum	75
6	Bestimmung der Tripletstrelänge	77
6.1	Bestimmung positiver Streulängen	77
6.2	Datenaufnahme	80
6.3	Datenanalyse	82
6.3.1	Extraktion der relativen Franck-Condon-Faktoren	82
6.3.2	Streulänge als Anpassungsparameter	84
7	Sättigung	87
7.1	Datenaufnahme	88
7.2	Qualitative Analyse	88
7.3	Auswerteverfahren	90
7.4	Lichtverschiebung und Linienverbreiterung	92
7.4.1	Lichtverschiebung	92
7.4.2	Linienverbreiterung	94
7.4.3	Einfluß der Laserstrahlfokussierung	96
7.5	Sättigung der Photoassoziationsrate	98
7.5.1	Einführung der korrigierten Rate	98
7.5.2	Sättigungsintensität und unitäres Limit	100
8	Zwei-Farben-Photoassoziation	107
8.1	Theoretische Einführung	107
8.1.1	Kopplungsschema	108
8.1.2	Streuwahrscheinlichkeit	109
8.2	Übergang im ${}^6\text{Li}_2$ -Molekül	112
8.3	Experimentelle Erweiterung	113
8.4	Spektroskopie des Grundzustands	115
8.5	Autler-Townes-Dublett	117
9	Ausblick	121
A	Spektroskopierte Vibrationsniveaus	125
B	Streulängen	127
	Literaturverzeichnis	129

1 Einleitung

Kalte Atome ermöglichen faszinierende Einblicke in die Natur. Sie offenbaren nicht nur grundlegende Konzepte der Quantenmechanik, sondern dienen auch als exzellente Modellsysteme zum Studium zahlreicher physikalischer Phänomene [Chu02]. Nachdem die Forschung mit atomaren Ensembles einer Spezies in den letzten zwanzig Jahren in rasanter und aufsehenerregender Entwicklung vorangeschritten ist (Nobelpreis 1997 und 2001, [Chu02]), weitet sich das Gebiet nun auf Experimente mit kalten atomaren Mischungen aus. Die Realisierung von binären Mischungen, von verschiedenen Spinzuständen des gleichen Isotops [Mya97, DeM99] bis hin zu beliebigen Elementen mit unterschiedlichem quantenstatistischen Charakter [Had02, Mod02], bietet die Perspektive mannigfaltiger neuartiger Beobachtungen. Durch sympathetische Kühlung in einem Gemisch ist beispielsweise die Erzeugung eines Fermi-Gases erst möglich geworden [DeM99]. Spektakuläre zukünftige Ziele sind die Cooper-Paar-Bildung in einem Fermi-Gas [Sto96] oder die Erzeugung heteronuklearer Moleküle [Bar02]. Kohärente Kopplung [Mac00, Wyn00, Don02] in einer Mischung aus einem bosonischen und einem fermionischen Quantengas könnte die Tür zu einer Art Superchemie öffnen [Hei00].

Interatomare Wechselwirkungen sind in Experimenten mit Mischungen von noch entscheidenderer Bedeutung als in atomaren Ensembles einer Spezies. Sie bestimmen die Thermalisierungszeiten bei der evaporativen oder sympathetischen Kühlung und prägen die erreichbaren Teilchenzahlen bzw. die Stabilität der gespeicherten Ensembles. Eine geeignete Manipulation der Wechselwirkungen ist grundlegend für die Beobachtung verschiedener Phänomene, wie zum Beispiel des Kollapses eines Bose-Einstein-Kondensats [Rob01], der Atom-Molekül-Kohärenz [Don02] oder der Cooper-Paar-Bildung [Mod02].

Eine vielversprechende Methode zur Untersuchung und Manipulation der interatomaren Wechselwirkungen ist die Photoassoziation [Tho87, Wei99, Fed96, Jul98]. Bei diesem Prozeß werden zwei Atome durch Absorption eines *Photons* zu einem angeregten Molekül *assoziiert*. Der angeregte Zustand ist instabil und zerfällt. Mit größter Wahrscheinlichkeit entsteht ein Paar freier Atome, zu einem geringen Bruchteil auch gebundene Grundzustandsmoleküle. Da die Produkte in den üblicherweise verwendeten Fallen nicht speicherbar sind, führt ein Photoassoziationsprozeß zu einem Verlust an gespeicherten Atomen. Dies kann zur Detektion ausgenutzt werden. Die Photoassoziation stellt eine Spektroskopiemethode dar, die nicht nur höchstauflösend, sondern auch extrem sensitiv auf langreichweitige Wechselwirkungen ist. In dieser Eigenschaft wird sie zur Bestimmung der Lebensdauer von atomaren Zuständen [McA96], zur Untersuchung von langreichweitigen Wechselwirkungen [Abr95b] bis hin zur Messung von Streulängen [Abr96a, Dra00b] verwendet.

Darüberhinaus spielt die Photoassoziation eine entscheidende Rolle in der Erzeugung kalter Moleküle [Fio98, Nik99, Gab00, Wyn00]. Weitere Anwendungen, auch unter Verwendung erweiterter Kopplungsschemata werden diskutiert. Die Photoassoziation von Atomen einer Spezies (homonukleare Photoassoziation) umfaßt inzwischen ein weitgefächertes Spektrum an Elementen [Abr95b, Let93, Wan96, Mil93, Fio98, Mos99, Her00, Zin00, Tak02]. Die Photoassoziation von zwei unterschiedlichen Spezies (heteronukleare Photoassoziation) konnte bislang jedoch noch nicht beobachtet werden. Zum einen gibt es erst vergleichsweise wenige Experimente mit kalten Mischungen, zum anderen ist die heteronukleare Photoassoziation im Allgemeinfall mit intrinsischen Schwierigkeiten behaftet. Die langreichweitigen Wechselwirkungen zwischen heteronuklearen Atomen sind von anderem Charakter als die zwischen homonuklearen Atomen. Die erfolgreiche heteronukleare Photoassoziation bedeutet daher einen zukunftsweisenden Schritt in der Forschung mit kalten atomaren Mischungen.

Ein Gemisch von kalten ${}^6\text{Li}$ - und ${}^7\text{Li}$ -Atomen stellt in diesem Zusammenhang ein ideales System dar. Die beiden Isotope ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ folgen unterschiedlichen Quantenstatistiken: ${}^6\text{Li}$ ist ein Fermion und ${}^7\text{Li}$ ist ein Boson. Als koexistentes Fermi- und Bose-Gas [Tru01, Sch01b] bietet das System damit zahlreiche experimentelle Möglichkeiten. Das Gemisch ist zwar heteronuklear, die Wechselwirkungen weisen jedoch in dem für Photoassoziationsexperimente wichtigen internuklearen Abstandsbereich homonuklearen Charakter auf. Damit ist das System ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ geeignet für heteronukleare Photoassoziation. Die Photoassoziation von ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ ist jedoch nicht nur von direktem Interesse, sondern stellt auch ein wichtiges Modellexperiment für weitere heteronukleare Photoassoziationsexperimente dar.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine kombinierte magnetooptische Falle zur Erzeugung eines Gemisches aus kalten ${}^6\text{Li}$ - und ${}^7\text{Li}$ -Atomen aufgebaut und ein Photoassoziationsspektrometer integriert. Heteronukleare Photoassoziation von ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ wurde nachgewiesen und für verschiedenartige Experimente eingesetzt.

Die vorliegende Dissertation ist wie folgt gegliedert: Im anschließenden zweiten Kapitel werden die theoretischen Grundlagen dargelegt. Der experimentelle Aufbau ist Inhalt des dritten Kapitels. In den nachfolgenden vier Kapiteln werden die verschiedenen Experimente zur heteronuklearen Photoassoziation von ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ präsentiert. Diese sind die Beobachtung der Lage der verschiedenen Photoassoziationsresonanzen (Kap. 4), die hyperfeinaufgelösten Spektren (Kap. 5), die Bestimmung der Tripletstretlänge von ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ (Kap. 6) und eine Messung zur Sättigung der Photoassoziationsrate (Kap. 7). Die Erweiterung dieser Ein-Farben-Photoassoziation zu einer Zwei-Farben-Photoassoziation wird im achten Kapitel dargestellt. Ein Ausblick beschließt die Arbeit.

In diesem Zusammenhang sei ferner auf zwei Publikationen [Sch01a, Sch02a] verwiesen, die im Rahmen dieser Arbeit entstanden sind.

2 Theoretische Grundlagen

Dieses zweite Kapitel befaßt sich mit den theoretischen Grundlagen, die zum Verständnis des Experiments zur Photoassoziation von kalten ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Atomen wichtig sind. Das Kapitel besteht aus drei Teilen. Im ersten Teil werden die langreichweitigen Wechselwirkungen, auf die kalte Atome extrem sensitiv sind, dargestellt. Dabei werden die Aspekte der Potentialverläufe, der gebundenen Zustände und der Wellenfunktionen ausführlich behandelt (Kap. 2.1). Der Prozeß der Photoassoziation, durch den diese langreichweitigen Wechselwirkungen untersucht und für verschiedene Anwendungen ausgenutzt werden können, wird im zweiten Teil qualitativ und quantitativ beschrieben (Kap. 2.2). Inhalt des dritten Teils ist die Erweiterung der bislang bekannten homonuklearen Photoassoziation auf das heteronukleare System ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ (Kap. 2.3).

2.1 Langreichweitige Wechselwirkungen

Die Photoassoziation wird üblicherweise an kalten Atomen durchgeführt, die in einer Falle gespeichert sind. Die Temperatur des atomaren Ensembles ist dabei von dem verwendeten Element und dem verwendeten Fallentyp abhängig. Typischerweise liegt sie unterhalb von 1 mK. Damit ist die kinetische Energie der Atome klein gegenüber atomaren Anregungsenergien und interatomaren Wechselwirkungsenergien. Somit ist die zur Beschreibung von Molekülen verwendete Born-Oppenheimer-Näherung, die darauf basiert, daß sich die Elektronen instantan an das veränderte Feld der Kerne anpassen können, anwendbar.

Die Beschreibung der langreichweitigen Wechselwirkungen zwischen zwei Atomen in bestimmten Zuständen kann also mit Hilfe der Potentialkurven des entsprechenden Moleküls erfolgen. Diese geben für einen bestimmten elektronischen Eigenzustand die gesamte elektronische Energie zuzüglich der Abstoßungsenergie der Kerne in Abhängigkeit vom internuklearen Abstand R an. Die verschiedenen gebundenen und freien Eigenzustände der Relativbewegung der Kerne werden durch die Energieeigenwerte E und die entsprechenden Wellenfunktionen ψ charakterisiert, die sich als Lösung der radialen Schrödinger-Gleichung ergeben:

$$-\frac{1}{2\mu} \frac{d^2\psi(R)}{dR^2} + V_{\text{eff}}(R)\psi(R) = E\psi(R). \quad (2.1)$$

Dabei bezeichnet μ die reduzierte Kernmasse, und das Wechselwirkungspotential V ist um einen Zentrifugalbeitrag zum effektiven Potential V_{eff} ergänzt.

Das Modell besitzt das prinzipielle Problem, daß erstens das Potential nicht exakt bekannt ist und zweitens eine analytische Lösung nicht möglich ist. Für den Bereich großer internuklearer Abstände läßt sich eine relativ einfache Näherung für das Potential finden (Kap. 2.1.1). Dies ermöglicht eine näherungsweise Bestimmung der Eigenwerte (Kap. 2.1.2). Verschiedene Näherungslösungen für die Wellenfunktionen werden diskutiert (Kap. 2.1.3).

2.1.1 Potential: asymptotische Näherung

Für große internukleare Abstände R ist der Überlapp der Elektronenwolken der beiden Atome vernachlässigbar. Die Wechselwirkung zwischen den beiden Atomen ist durch die Coulombwechselwirkung zwischen Kern und Elektronen des einen Atoms und Kern und Elektronen des anderen Atoms bestimmt. Für einen bestimmten elektronischen Molekülzustand läßt sich das langreichweitige Wechselwirkungspotential $V(R)$ in der asymptotischen Näherung als Summe der Dissoziationsenergie D und einer Potenzreihe mit Summanden C_n/R^n schreiben:

$$V(R) = D - \sum_n \frac{C_n}{R^n}. \quad (2.2)$$

Die Koeffizienten C_n sind durch die Natur der wechselwirkenden Atome bestimmt und lassen sich störungstheoretisch berechnen. Dazu werden die elektronischen Molekülzustände in der Basis der ungestörten atomaren Produktzustände, die z.B. aus atomaren Zuständen ohne Berücksichtigung der Feinstruktur, aus Feinstrukturzuständen oder aus Hyperfeinstrukturzuständen bestehen, dargestellt. Die Wahl der geeigneten Basiszustände hängt dabei von der Stärke der Coulombwechselwirkung im Vergleich zu den verschiedenen Kopplungsenergien und damit von dem betrachteten Abstandsbereich R ab. Die Coulombwechselwirkung wird in einer Multipolentwicklung dargestellt und die einzelnen Beiträge, die der Wechselwirkung zwischen verschiedenen Multipolen entsprechen, werden für die elektronischen Molekülzustände berechnet [Hir67].

In Störungstheorie erster Ordnung erhält man Beiträge aufgrund der elektrostatischen Wechselwirkung zwischen permanenten elektrischen Multipolen. Diese haben ungerade Exponenten mit $n \geq 3$. Der führende Term C_3/R^3 entspricht der Wechselwirkung zwischen elektrostatischen Dipolen, der nächste Term C_5/R^5 der Wechselwirkung zwischen zwei elektrostatischen Quadrupolen etc. Da neutrale Atome keine permanenten Dipolmomente besitzen und höhere Momente nur in angeregten Zuständen auftreten können, sind diese Beiträge in der Regel nicht vorhanden oder sehr klein, mit einer Ausnahme: Zwei identische Atome, die sich in unterschiedlichen Zuständen befinden, zwischen denen Dipolübergänge erlaubt sind, verhalten sich wie zwei elektrostatische Dipole. Dieser spezielle Fall der resonanten Dipol-Dipol-Wechselwirkung ist letztlich eine Folge des Pauli-Prinzips, das eine

Symmetrisierung der atomaren Produktzustände erfordert. In dieser Basis liefert der Dipol-Dipol-Operator einen Beitrag. Anschaulich kann dieser Beitrag durch Anregungsaustausch, bei dem sich die Atome wechselseitig anregen, verstanden werden. Der entsprechende C_3 -Koeffizient ist proportional zum Quadrat des Dipolmatrixelements [Kin39].

In Störungstheorie zweiter Ordnung ergeben sich Beiträge durch die Dispersionswechselwirkung zwischen zwei Atomen mit induzierten elektrischen Momenten.¹ Die beitragenden Terme besitzen geradzahlige Exponenten mit $n \geq 6$. Der erste Beitrag C_6/R^6 entspricht einer induzierten Dipol-Dipol-Wechselwirkung, der zweite Beitrag C_8/R^8 einer induzierten Dipol-Quadrupol-Wechselwirkung etc. Die Dispersionskoeffizienten C_6, C_8, \dots sind mit den Polarisierbarkeiten der verschiedenen Multipole verknüpft und lassen sich mit zahlreichen Methoden (siehe z.B. [Yan96] mit Literaturangaben) näherungsweise berechnen.

Welcher Term in der Entwicklung 2.2 der führende Term ist, d.h. $n=3$ oder $n=6$, hängt davon ab, ob in dem betrachteten asymptotischen Zustand eine resonante Dipol-Dipol-Wechselwirkung vorhanden ist. Für zwei identische Atome, von denen sich eines im Grundzustand und eines im angeregten Zustand befindet, gilt also unter Vernachlässigung der höheren Terme:

$$V(R) = D - \frac{C_3}{R^3}. \quad (2.3)$$

Bei zwei identischen oder unterschiedlichen Atomen im Grundzustand oder bei zwei unterschiedlichen Atomen, von denen sich eines im angeregten Zustand befindet, gibt es keine resonante Dipol-Dipol-Wechselwirkung. In diesem Fall ist der führende Term durch die induzierte Dipol-Dipol-Wechselwirkung, auch van-der-Waals-Wechselwirkung genannt, bestimmt:

$$V(R) = D - \frac{C_6}{R^6}. \quad (2.4)$$

Der Gültigkeitsbereich dieser asymptotischen Näherung ist für große internukleare Abstände durch das Wirksamwerden von atomaren Kopplungsenergien sowie durch Retardationseffekte [Mea68] begrenzt. Für kleine internukleare Abstände ist der Überlapp der Elektronenwolken nicht mehr zu vernachlässigen und Austauschwechselwirkungen werden wirksam. Diese nehmen mit abnehmendem internuklearem Abstand R exponentiell zu und müssen innerhalb des LeRoy-Radius [LeR73, Ji95], der typischerweise bei 10–20 a_0 liegt, berücksichtigt werden. Sie führen zu einer energetischen Aufspaltung des Singulett- und Triplettzustandes mit gleichem langreichweitigen Verhalten.

In Abb. 2.1 sind für ein Lithium-Molekül die Potentialkurven gezeichnet, die den

¹Beiträge aufgrund der Induktionswechselwirkung zwischen einem permanenten elektrischen Moment und einem dadurch induzierten Moment werden hier vernachlässigt. Diese treten für die betrachteten Zustände entweder gar nicht oder erst in Termen höherer Ordnung auf [Bus85].

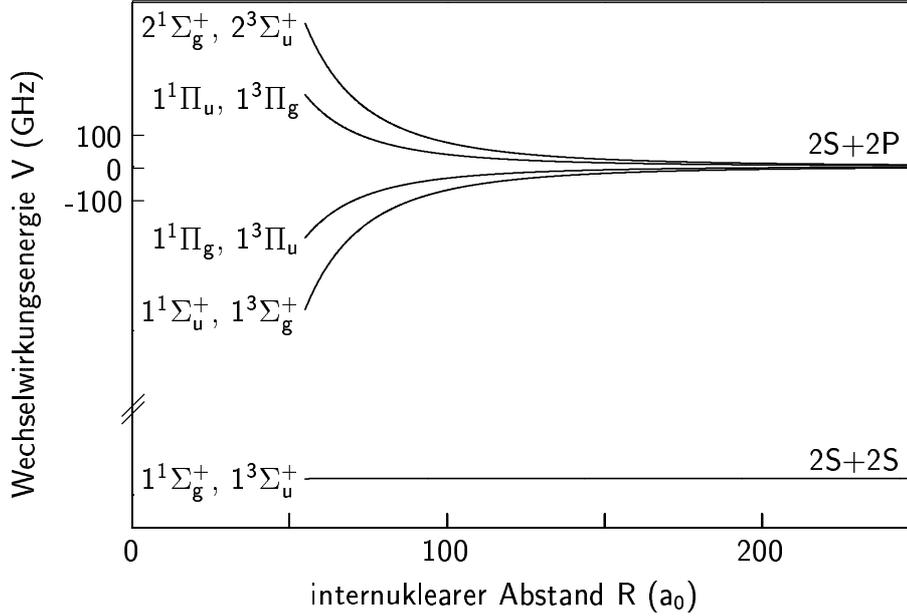


Abbildung 2.1: Potentialkurven für die Molekülzustände der $S+S$ - und $S+P$ -Asymptote des Li_2 -Moleküls.

asymptotischen Zuständen $S+S$ und $S+P$ entsprechen. Dabei ist die Feinstruktur nicht berücksichtigt. Die Koeffizienten C_3 und C_6 sind [McA96] bzw. [Yan96] entnommen. Für die Grundzustandsasymptote $S+S$ ergeben sich zwei elektronische Zustände, $^1\Sigma_g^+$ und $^3\Sigma_u^+$, mit gleichem C_6 -Koeffizienten. Für die $S+P$ -Asymptote gibt es insgesamt acht elektronische Zustände mit jeweils paarweise gleichem C_3 -Koeffizienten. Dabei ist der C_3 -Koeffizient für die Σ -Zustände jeweils doppelt so groß wie für die Π -Zustände. Die Koeffizienten für die attraktiven und für die entsprechenden repulsiven Zustände unterscheiden sich nur durch das Vorzeichen [Kin39].

2.1.2 Energiespektrum: LeRoy-Formalismus

Die Energieeigenwerte $E(v)$ der gebundenen Zustände in einem eindimensionalen Potential $V(R)$ können näherungsweise auf Grundlage der JWKB-Quantisierungsbedingung erster Ordnung berechnet werden [Frö80]. Diese lautet:²

$$v + 1/2 = \frac{1}{\pi} \sqrt{\frac{2\mu}{\hbar^2}} \int_{R_1(v)}^{R_2(v)} [E(v) - V(R)]^{1/2} dR. \quad (2.5)$$

Hierbei bezeichnen $R_1(v)$ und $R_2(v)$ die klassischen Umkehrpunkte des Teilchens mit reduzierter Masse μ in dem Energieniveau mit der Vibrationsquantenzahl v .

²Die JWKB-Quantisierungsbedingung erster Ordnung ist gleichbedeutend mit der halbklassischen oder Phasenintegral- oder Bohr-Sommerfeld-Quantisierungsbedingung.

In der Methode von LeRoy und Bernstein [LeR70] wird für hochliegende Vibrationsniveaus diese Gleichung näherungsweise gelöst. Dazu wird die Dichte der Vibrationsniveaus eingeführt, die sich durch Übergang zu einer kontinuierlichen Variablen v und Differentiation des obigen Ausdrucks nach $E(v)$ zu

$$\frac{dv}{dE(v)} = \frac{1}{\pi} \sqrt{\frac{\mu}{2\hbar^2}} \int_{R_1(v)}^{R_2(v)} [E(v) - V(R)]^{-1/2} dR \quad (2.6)$$

ergibt. Anhand dieses Ausdrucks ist ersichtlich, daß der Hauptbeitrag zu dem Integral von dem Bereich um den äußeren Umkehrpunkt geliefert wird: Für hochliegende Vibrationsniveaus ist das Molekülpotential stark asymmetrisch mit einer steilen Flanke am inneren Umkehrpunkt R_1 und einem flachen asymptotischen Verhalten am äußeren Umkehrpunkt R_2 . Daher wird das exakte Potential $V(R)$ durch eine Funktion ersetzt, die das Potential möglichst gut an den äußeren Umkehrpunkten beschreibt. Hierfür wird der asymptotisch dominierende Beitrag aus Gl. 2.2 eingesetzt. Im Grenzfall $R_1 \rightarrow 0$ läßt sich die Ortsintegration näherungsweise ausführen, und nach weiterer Integration nach der Variablen v ergibt sich der folgende analytische Ausdruck für die energetische Lage der Vibrationsniveaus:

$$E(v) = D - X_n (v_D - v)^{2n/(n-2)}, \quad (2.7)$$

mit

$$X_n = \frac{\bar{X}_n}{[\mu^n (C_n)^2]^{1/(n-2)}}. \quad (2.8)$$

Hierbei ist D die Dissoziationsenergie und v_D die effektive Vibrationsquantenzahl. Diese gibt die (hypothetische) Quantenzahl des am Dissoziationslimit gebundenen Vibrationsniveaus an und ist im allgemeinen keine ganze Zahl. Ferner hängt der Ausdruck von dem Exponenten n des führenden Terms in der Entwicklung des langreichweitigen Potentialverlaufs ab. Die Größe X_n ist eine für die betrachtete asymptotische Entwicklung spezifische Konstante, die sich aus der reduzierten Kernmasse μ , dem jeweiligen C_n -Koeffizienten und einer Konstanten \bar{X}_n zusammensetzt. Diese ist nur von dem Exponenten n abhängig und in [LeR80] für verschiedene n angegeben. Für praktische Anwendungen ist ein Ausdruck für den Abstand zwischen zwei diskreten Energieniveaus

$$E(v+1) - E(v) := \Delta G_{v+1/2} \quad (2.9)$$

von Bedeutung. Dazu wird obige Funktion näherungsweise diskretisiert gemäß

$$\Delta G_{v+1/2} \approx \left. \frac{dE(v)}{dv} \right|_{v+1/2}. \quad (2.10)$$

Damit ergibt sich aus Gl. 2.7 nach Differentiation für die diskrete Vibrationsabstandsfunktion $\Delta G_{v+1/2}$:

$$\Delta G_{v+1/2} = X_n \frac{2n}{n-2} (v_D - v - 1/2)^{(n+2)/(n-2)}. \quad (2.11)$$

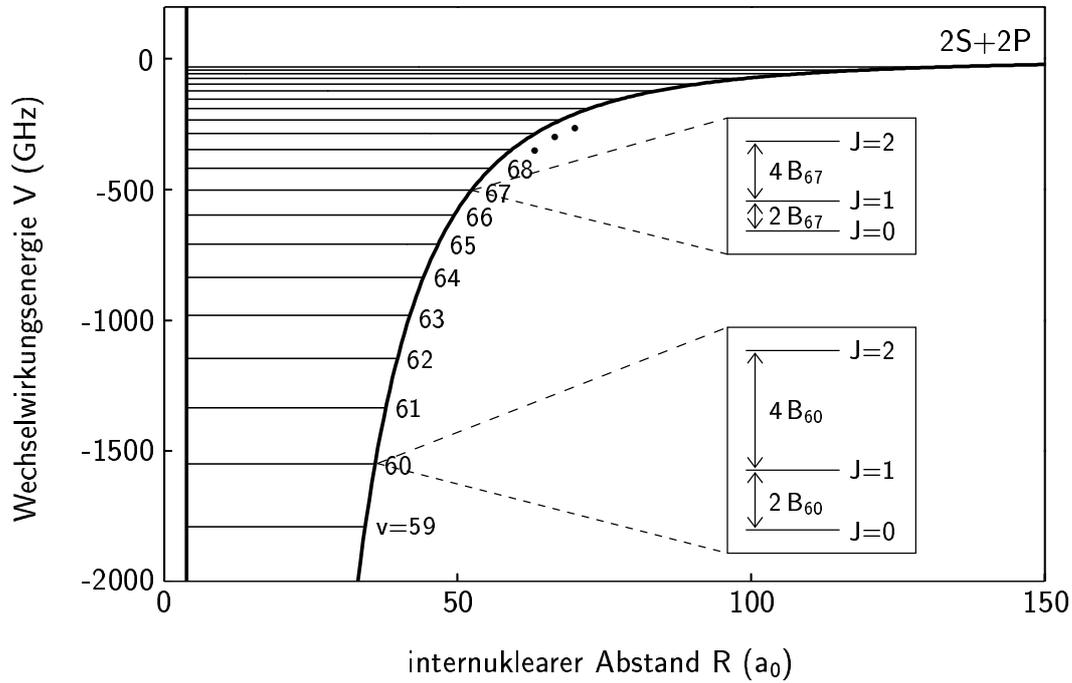


Abbildung 2.2: Energetische Lage der Vibrationsniveaus und Rotationsniveaus im langreichweitigen R^{-3} -Potential. Dargestellt sind die Vibrationsniveaus $v = 59-79$ (gemessene Werte nach [Abr95b]) für den angeregten Zustand $1^3\Sigma_g^+$ (berechnetes Potential nach [Sch85, McA96]) des ${}^6\text{Li}_2$ -Moleküls. Ferner sind für die Vibrationsniveaus $v=60$ und $v=67$ die niedrigsten Rotationsniveaus (Werte nach [Abr95b]) in 90-facher Vergrößerung eingezeichnet.

Der ganzzahlige Anteil des Ausdrucks $(v_D - v - 1/2)$ gibt die Vibrationsquantenzahl des Energieniveaus gezählt von der Dissoziationsgrenze an. Für ein Potential mit einem langreichweitigen R^{-6} -Verhalten nimmt der Abstand der Vibrationsniveaus v also mit $(v_D - v - 1/2)^2$ zu. Für ein Potential mit einem langreichweitigen R^{-3} -Verhalten nimmt der Abstand mit $(v_D - v - 1/2)^5$ zu. Letzterer Fall ist in Abb. 2.2 anhand des angeregten Zustandes $1^3\Sigma_g^+$ des ${}^6\text{Li}_2$ -Moleküls veranschaulicht.

Zur Berücksichtigung der Rotationsaufspaltung der verschiedenen Vibrationsniveaus muß Ausdruck 2.7 erweitert werden. Für die energetische Lage eines bestimmten Rotations-Vibrationsniveaus (v, J) gilt unter Vernachlässigung der Rotationsdehnung:

$$E(v, J) = D - X_n(v_D - v)^{2n/(n-2)} + B_v J(J+1), \quad (2.12)$$

mit einer zunächst unbekanntenen Rotationskonstanten B_v für ein gegebenes Vibrationsniveau v . Zwei benachbarte Rotationsniveaus J und $J+1$ zu einem gegebenen Vibrationsniveau v weisen demnach einen Energieabstand von

$$E(J+1) - E(J) = 2B_v(J+1) \quad (2.13)$$

auf.

Eine der Herleitung der Vibrationsenergie entsprechende Rechnung führt zu folgendem Ausdruck für die Rotationskonstante B_v [LeR72]:

$$B_v = Q_n(v_D - v)^{4/n-2}, \quad (2.14)$$

mit

$$Q_n = \frac{\overline{Q}_n}{[\mu^n (C_n)^2]^{1/(n-2)}}. \quad (2.15)$$

Die molekül-, und zustandsunabhängige Konstante \overline{Q}_n ist in [LeR80] tabelliert.

Die Rotationskonstante B_v nimmt für einen gegebenen elektronischen Molekülzustand mit zunehmender Vibrationsquantenzahl v ab, und zwar umso stärker, je kleiner der Exponent n des langreichweitigen Potentialverlaufs ist. Dies ist letztlich ein Ausdruck für die Schwingungsdehnung des Moleküls. In Abb. 2.2 sind exemplarisch für zwei Vibrationsniveaus die niedrigsten Rotationsniveaus eingezeichnet.

2.1.3 Wellenfunktionen

Sowohl für die gebundenen Zustände als auch für die freien Zustände sind die Beiträge zur Wellenfunktion, die vom internuklearen Abstand R abhängen, durch eine radiale Schrödinger-Gleichung (vgl. Gl. 2.1) bestimmt.

Für die gebundenen Zustände folgt dies aus dem Separationsansatz für die Wellenfunktion, gemäß dem diese sich als Produkt aus einem abstandsabhängigen und einem winkelabhängigen Anteil schreiben läßt. Die abstandsabhängige Radialwellenfunktion ist von der Form $\psi_e(R)/R$, wobei $\psi_e(R)$ die Lösung der radialen Schrödinger-Gleichung (vgl. Gl. 2.1) ist.

Für die freien Zustände ergibt sich diese Abhängigkeit aus streutheoretischen Überlegungen. Die Wellenfunktion eines freien Zustands der Energie E entspricht einem stationären Streuzustand. Dieser kann in dem zugrundeliegenden sphärisch symmetrischen Potential nach Partialwellen l entwickelt werden. Diese Partialwellen stellen jeweils das Produkt aus einem abstandsabhängigen und einem winkelabhängigen Anteil dar. Der abstandsabhängige Anteil ist, entsprechend obigem Fall, von der Form $\psi_g(R)/R$, wobei $\psi_g(R)$ durch die radialen Schrödinger-Gleichung (vgl. Gl. 2.1) gegeben ist. Die Anzahl der zur Entwicklung beitragenden Partialwellen hängt von der Streuenergie und der Reichweite des Potentials ab. Trägt nur eine Partialwelle bei, so bestimmt die entsprechende Wellenfunktion ψ_g den abstandsabhängigen Anteil des gesamten stationären Streuzustands.

Eine Wellenfunktion, die Lösung der radialen Schrödinger-Gleichung ist, kann in der allgemeinen Milne'schen Phasen-Amplituden-Form [Mil30] dargestellt werden:

$$\psi(R) = c\alpha(R) \sin \beta(R). \quad (2.16)$$

Hierbei genügen die Amplitude α und die Phase β zwei gekoppelten, nichtlinearen Differentialgleichungen, die durch das Potential bestimmt sind. Die Konstante c dient der Normierung.

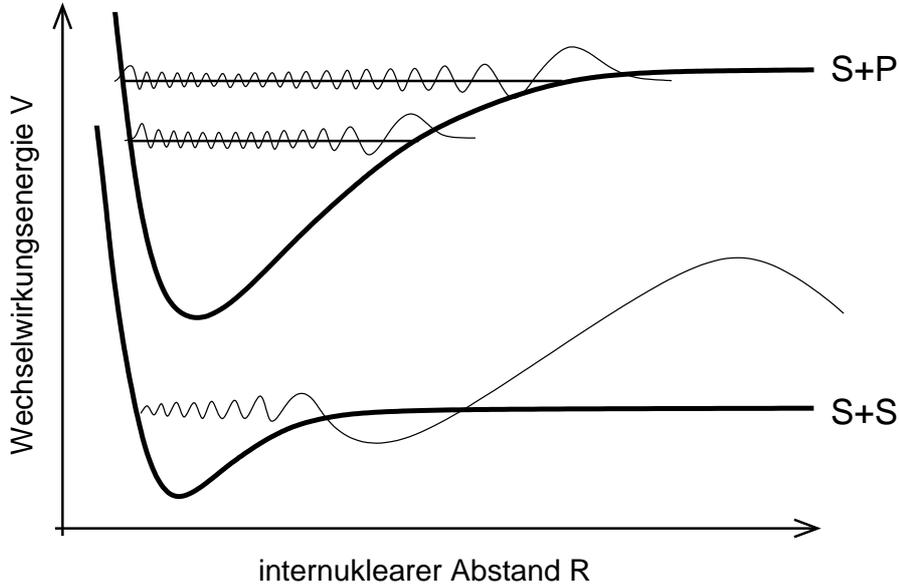


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der Wellenfunktionen der gebundenen Zustände und des freien Grundzustands.

Gebundene Wellenfunktion

Für die Wellenfunktion ψ_e eines gebundenen Zustands hat die Gl. 2.16 unter Berücksichtigung der Normierung folgende Form:

$$\psi_e(R) = \sqrt{\frac{\partial E}{\partial v}} \sqrt{\frac{2\mu}{\pi\hbar^2}} \alpha_e(R) \sin \beta_e(R). \quad (2.17)$$

Hierbei ist $\partial E/\partial v$ die Vibrationsabstandsfunktion und μ die reduzierte Kernmasse. Bezüglich der verschiedenen möglichen Näherungslösungen sei auf [LeR02] verwiesen. In diesem Zusammenhang ist die folgende qualitative Betrachtung ausreichend. Die Amplitude und die lokale Oszillationsfrequenz der gebundenen Wellenfunktion sind durch die Krümmung des Potentials bestimmt. Aufgrund der starken Asymmetrie des Potentials für hochliegende Vibrationsniveaus sind die Wellenfunktionen charakterisiert durch eine hohe räumliche Oszillationsfrequenz mit kleiner Amplitude im Bereich um den inneren Umkehrpunkt und eine niedrige Oszillationsfrequenz mit großer Amplitude im Bereich um den äußeren Umkehrpunkt. Diese Eigenschaft ist umso stärker ausgeprägt, je stärker asymmetrisch das Potential ist, also je höher die Vibrationsquantenzahl v ist.

Freie Wellenfunktion

Die Grundzustandswellenfunktion ψ_g lautet in allgemeiner Phasen-Amplituden-Form:

$$\psi_g(R) = \sqrt{\frac{2\mu}{\pi\hbar^2}} \alpha_g(R) \sin \beta_g(R). \quad (2.18)$$

Der Faktor $\sqrt{2\mu/\pi\hbar^2}$ gewährleistet dabei die Energienormierung, d.h.

$$\langle \psi(E, R) | \psi(E', R) \rangle = \delta(E - E'). \quad (2.19)$$

Analytische Näherungslösungen für α und β gibt es für verschiedene Streuenergien E [Boi00] und verschiedene internukleare Abstände R [Jul96] (vgl. Kap. 6.1).

Die einfachste Näherungslösung ergibt sich für große internukleare Abstände R . Unter der Voraussetzung, daß das Potential ausreichend schnell verschwindet, kann die Schrödinger-Gleichung gelöst werden. Für eine bestimmte Partialwelle l hat die Funktion $\psi_g(R)$ folgende asymptotische Form [Joa75]:

$$\psi_g(R) = \sqrt{\frac{2\mu}{\pi\hbar^2 k}} \sin(kR - l/2\pi + \delta_l). \quad (2.20)$$

Der Wellenvektor k der Relativbewegung steht dabei mit der Streuenergie E gemäß $k = \sqrt{2\mu E}/\hbar$ in Zusammenhang. Diese Wellenfunktion ist gegenüber einer Wellenfunktion, die vom Potential unbeeinflusst ist, um die Streuphase δ_l verschoben. Die Streuphase ist eine komplizierte Funktion des Potentials.

Bei genügend kleinen Energien tragen nur Partialwellen mit $l = 0$, also s -Wellen, bei. Dieser Fall der s -Wellen-Streuung sei im folgenden betrachtet. Die asymptotische Grundzustandswellenfunktion besitzt dann folgende Form:

$$\psi_g(R) = \sqrt{\frac{2\mu}{\pi\hbar^2 k}} \sin(kR + \delta_0). \quad (2.21)$$

Für kleine Energien kann die Streuphase δ_0 mit Hilfe folgender Reihenentwicklung nach der Wellenzahl k dargestellt werden:

$$\tan \delta_0 \approx -ak - \frac{1}{2} a_c a^2 k^3. \quad (2.22)$$

In dieser Entwicklung wird a als Streulänge und a_c als effektive Reichweite des Potentials bezeichnet. Damit ist die Streulänge a über den Grenzwert der Streuphase für kleine Energien definiert gemäß

$$a = - \lim_{k \rightarrow 0} \frac{\tan \delta_0}{k}. \quad (2.23)$$

Die Streulänge a ist also auf der internuklearen Achse der dem Ursprung nächstliegende Nulldurchgang der asymptotischen Lösung für verschwindend kleine Energien.

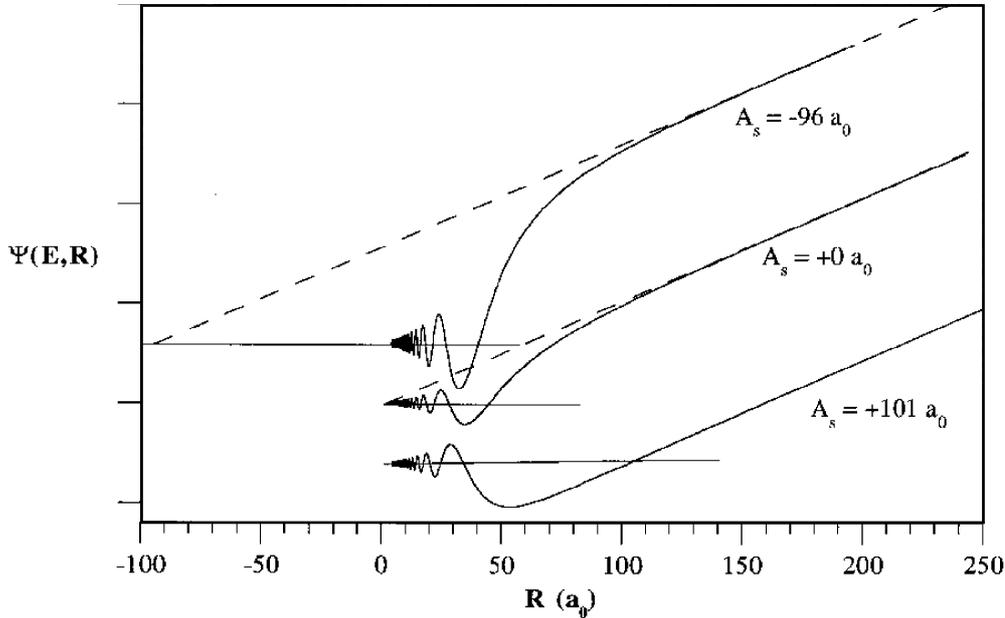


Abbildung 2.4: Berechnete Grundzustandswellenfunktionen für drei verschiedene Modellpotentiale nach [Jul96]. Der Schnittpunkt der extrapolierten Wellenfunktion (gestrichelte Linie) mit der internuklearen Achse liegt näherungsweise bei der Streulänge a .

In Zusammenhang mit der exakten Wellenfunktion ψ_g ergibt sich eine anschauliche Bedeutung der Streulänge wie folgt (vgl. Abb. 2.4): Im Bereich um den Nulldurchgang kann die asymptotische Lösung durch das Argument genähert und damit linearisiert werden. Die resultierende Gerade entspricht der Extrapolation der exakten Wellenfunktion ψ_g auf die internukleare Achse. Damit hat die Streulänge die geometrische Bedeutung des Schnittpunkts der extrapolierten Wellenfunktion mit der internuklearen Achse R .

Das Vorzeichen und die Größe der Streulänge spiegeln die Stärke des repulsiven bzw. attraktiven Charakters des Potentials wider. Eine positive Streulänge entspricht einer negativen Phasenverschiebung der asymptotischen Wellenfunktion gegenüber der freien Wellenfunktion. Die Wellenfunktion wird also aus dem Potential herausgedrückt, das Potential wirkt repulsiv. Dies ist mit der Tatsache verknüpft, daß der letzte gebundene Zustand nur schwach gebunden ist. Eine negative Streulänge entspricht damit einer positiven Phasenverschiebung. Die Wellenfunktion wird in das Potential hineingezogen, das Potential wirkt also attraktiv. Dies geht einher mit einem stark gebundenen letzten Zustand.

2.2 Photoassoziation

In diesem zweiten Teil der theoretischen Grundlagen wird zunächst der Photoassoziationsprozeß qualitativ erklärt (Kap. 2.2.1). Im Rahmen der anschließenden quantitativen Beschreibung wird der Ratenkoeffizient eingeführt (Kap. 2.2.2). Die verschiedenen Abhängigkeiten des Ratenkoeffizienten von der Molekül-Licht-Wechselwirkung werden dargelegt (Kap. 2.2.3). Schließlich wird eine erweiterte Beschreibung diskutiert (Kap. 2.2.4).

2.2.1 Prozeß

Die Beschreibung des Photoassoziationsprozesses erfolgt mittels molekülphysikalischer Methoden. Wie in Kap. 2.1.1 beschrieben, ist der langreichweitige Potentialverlauf zweier Grundzustandsatome durch die induzierte Dipol-Dipol-Wechselwirkung geprägt und weist eine R^{-6} -Abhängigkeit auf. Für zwei identische Atome ist der langreichweitige Teil des ersten elektronisch angeregten Zustandes durch die resonante Dipol-Dipol-Wechselwirkung bestimmt und zeigt eine R^{-3} -Abhängigkeit. Ein entscheidendes Merkmal dieses Systems ist, daß infolge der unterschiedlichen Potentialverläufe die äußeren Umkehrpunkte der angeregten Vibrationsniveaus bei internuklearen Abständen liegen, bei denen das Grundzustandspotential noch annähernd flach verläuft (vgl. Abb. 2.5).

In diesem System können Übergänge von ungebundenen Atomen in gebundene Niveaus des angeregten Zustandes durch ein Lichtfeld induziert werden. In einer halbklassischen Beschreibung wird der Photoassoziationsprozeß als Stoß betrachtet. Die beiden freien Atome bewegen sich oberhalb des Grundzustandspotentials mit einer bestimmten Energie E der Relativbewegung aufeinander zu. Ein Übergang der beiden freien Atome in ein gebundenes Niveau des angeregten Moleküls durch Absorption eines Photons kann stattfinden, wenn die Resonanzbedingung erfüllt ist. Unter Vernachlässigung der Krümmung des Grundzustandspotentials ist dies der Fall, wenn es ein gebundenes Niveau gibt, dessen Energie $\hbar\omega_0$ bezüglich der Grundzustandsasymptote der Photonenenergie des eingestrahlten Lichtfeldes $\hbar\omega_{PA}$ zuzüglich des geringen Beitrags der kinetischen Energie E entspricht. Dabei geschieht der Übergang mit größter Wahrscheinlichkeit bei dem internuklearen Abstand, bei dem der klassische Umkehrpunkt des angeregten Vibrationsniveaus liegt. Die Lage des Umkehrpunktes kann aus der Verstimmung Δ_v des Lasers gegenüber der atomaren Resonanz und dem genäherten Potentialverlauf gemäß Gl. 2.3 abgeschätzt werden zu

$$R_C = \left(\frac{C_3}{\hbar\Delta_v} \right)^{1/3}. \quad (2.24)$$

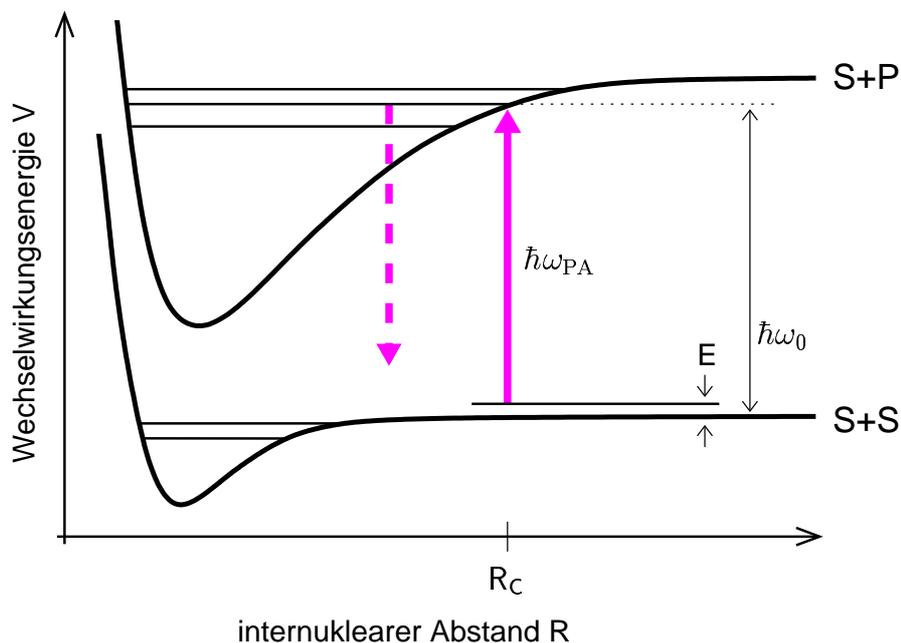


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung des Photoassoziationsprozesses.

Dieser internukleare Abstand wird als Condon-Punkt R_C bezeichnet.³ Der angeregte Zustand ist instabil, d.h. er zerfällt, typischerweise nach einigen ns. Mit größter Wahrscheinlichkeit zerfällt er in ungebundene, freie Atome, zu einem geringen Bruchteil auch in gebundene Grundzustandsmoleküle. Da die Produkte in den üblicherweise verwendeten Fallen nicht speicherbar sind, führt ein Photoassoziationsprozeß zu einem Verlust an gespeicherten Atomen. Dies kann zur Detektion ausgenutzt werden.

Entscheidend für die Wahrscheinlichkeit, mit der der Photoassoziationsprozeß stattfindet, ist die Lage des Condon-Punkts. Liegt der Condon-Punkt bei großen internuklearen Abständen, so werden die Grundzustandsatome durch den Einfluß des Grundzustandspotentials wenig beschleunigt. Je länger die Verweildauer der stoßenden Atome bei einem bestimmten internuklearen Abstand ist, desto größer ist die Wahrscheinlichkeit für die Absorption eines resonanten Photons und damit für das Stattfinden des Photoassoziationsprozesses. Im Wellenbild betrachtet entspricht eine hohe Übergangswahrscheinlichkeit einem großen Überlapp der Wellenfunktionen.

³Strenggenommen ist der Condon-Punkt R_C als der internukleare Abstand definiert, bei dem der Laser mit der Differenz von dem Potential des angeregten Zustands und dem des Grundzustands,

$$h\Delta_v = \frac{C_3}{R^3} - \frac{C_6}{R^6},$$

resonant ist. Der Einfluß des Grundzustandspotentials kann jedoch für große internukleare Abstände vernachlässigt werden.

Die erhöhte Aufenthaltswahrscheinlichkeit am äußeren Umkehrpunkt korrespondiert mit einer großen Amplitude der Wellenfunktion des angeregten Zustands. Eine kleine Geschwindigkeit der stoßenden Atome im annähernd flachen Grundzustandspotential entspricht einer langsam oszillierenden Grundzustandswellenfunktion.

2.2.2 Ratenkoeffizient

Die quantitative Beschreibung des Photoassoziationsprozesses erfolgt mittels eines Ratenkoeffizienten K . Dieser gibt die Wahrscheinlichkeit an, mit der zwei Atome, die sich in einem homogen bestrahlten Einheitsvolumen befinden, pro Sekunde photoassoziiert werden und in eine bestimmte Klasse von Reaktionsprodukten zerfallen. Üblicherweise hat er die Einheit cm^3s^{-1} .

Der Ratenkoeffizient K ergibt sich als Produkt aus der Relativgeschwindigkeit v der beiden Atome und dem inelastischen Streuquerschnitt σ :

$$K = v \cdot \sigma. \quad (2.25)$$

Im Fall von verschwindendem Bahndrehimpuls (s -Wellen-Streuung) ist der inelastische Streuquerschnitt σ durch den Wellenvektor k der Relativbewegung und der Streuwahrscheinlichkeit $|S|^2$ bestimmt gemäß

$$\sigma = \frac{\pi}{k^2} \cdot |S|^2. \quad (2.26)$$

Die Streuwahrscheinlichkeit $|S|^2$ beschreibt die Wahrscheinlichkeit, mit der bei einem Stoß der beiden Atome ein Photoassoziationsprozeß stattfindet. Diese Wahrscheinlichkeit hängt zum einen von atom- bzw. molekülspezifischen Eigenschaften der beiden Stoßpartner ab, wie den Spezies, den internen Zuständen und dem betrachteten Übergang. Zum anderen ist sie von diversen äußeren Parametern abhängig, wie der Streuenergie, der Laserintensität und der Verstimmung des Lasers gegenüber der Photoassoziationsresonanz.

2.2.3 Streuwahrscheinlichkeit

Zur Berechnung der Streuwahrscheinlichkeit $|S|^2$ wurde von Bohn und Julienne eine umfassende Theorie entwickelt [Boh99]. Diese basiert auf der Behandlung des Photoassoziationsprozesses als resonanten Streuprozeß. Das Problem wird in der Basis bekleideter molekularer Zustände (dressed-state picture, [Coh98]) betrachtet, die durch die Molekül-Licht-Wechselwirkungen gekoppelt werden. Die resultierende gekoppelte Schrödinger-Gleichung wird störungstheoretisch gelöst, um Resultate in analytischer Form zu erhalten. Durch die geforderten Randbedingungen für die gekoppelten Wellenfunktionen läßt sich eine Streumatrix definieren. Die Quadrate der

Matrixelemente geben die Streuwahrscheinlichkeit zwischen zwei bekleideten molekularen Zuständen, also zwischen zwei Streukanälen, an.

In dem hier betrachteten Fall eines Grundzustandspotentials und eines Potentials des elektronisch angeregten Zustands liefert die Theorie für die Streuwahrscheinlichkeit folgenden Ausdruck:

$$|S|^2 = \frac{\gamma\Gamma}{(E - E_1 + \Delta)^2 + [(\gamma + \Gamma)/2]^2}. \quad (2.27)$$

Hierbei gehen als unabhängige Größen ein: die Streuenergie E ; die Verstimmung Δ des Photoassoziationslasers der Frequenz $\hbar\omega_{\text{PA}}$ gegenüber der Übergangsfrequenz $\hbar\omega_0$ des gebundenen Zustandes bzgl. der Grundzustandsasymptote, $\Delta = \hbar\omega_{\text{PA}} - \hbar\omega_0$; ferner die spontane Zerfallsrate γ des angeregten Zustands. Diese ist lediglich eine Eigenschaft des angeregten Zustands und beträgt näherungsweise das Doppelte der atomaren Zerfallsrate [Côt98].

Die Streuwahrscheinlichkeit ist außerdem abhängig von der induzierten Rate Γ und der Lichtverschiebung E_1 . Diese beiden Größen sind durch die Ankopplung des molekularen Systems an das Lichtfeld bestimmt. Die induzierte Rate Γ beschreibt die Wahrscheinlichkeit, mit der ein Übergang zwischen dem Kontinuumszustand der Energie E und dem angeregten Zustand stattfindet. Die Lichtverschiebung E_1 ist ein für die Kontinuumsstreuung charakteristisches Phänomen: die Lage eines diskreten Zustands, der an ein Kontinuum gekoppelt ist, wird verschoben [Fan61]. Diese Lichtverschiebung ist in der Regel negativ, sofern sogenannte Shape-Resonanzen keine Rolle spielen [McK02, Sim02].

Die Streuwahrscheinlichkeit weist eine lorentzförmige Abhängigkeit von der Laserverstimmung Δ auf (vgl. Abb. 2.6). Sie nimmt ihren maximalen Wert an, wenn die Verstimmung Δ gleich der Differenz aus der Lichtverschiebung E_1 und der Streuenergie E ist, $\Delta = E_1 - E$. Die Höhe und Breite der Kurve sind durch die spontane Zerfallsrate γ des angeregten Zustandes und die induzierte Rate Γ bestimmt. Die volle Halbwertsbreite ist $\gamma + \Gamma$, für die Höhe $|S|_{\text{max}}^2$ gilt:

$$|S|_{\text{max}}^2 = \frac{4\gamma\Gamma}{(\gamma + \Gamma)^2}. \quad (2.28)$$

Induzierte Rate und Lichtverschiebung

Für die induzierte Rate Γ und die Lichtverschiebung E_1 liefert die Theorie von Bohn und Julienne unter der Annahme von Fermis Goldener Regel analytische Ausdrücke. Diese lauten:

$$\Gamma = 2\pi V_{\text{rad}}^2 \left| \int_0^\infty dR \psi_g(R) \psi_e(R) \right|^2, \quad (2.29)$$

$$E_1 = -\pi V_{\text{rad}}^2 \int_0^\infty dR \psi_e(R) \bar{\psi}_g(R) \int_0^\infty dR' \psi_g(R') \psi_e(R'). \quad (2.30)$$

In beide Formeln geht jeweils das Kopplungsmatrixelement V_{rad} sowie jeweils ein Franck-Condon-Integral, und zwar 1. Ordnung für die induzierte Rate Γ und

2. Ordnung für die Lichtverschiebung E_1 , ein.
Das Kopplungsmatrixelement V_{rad} ist gegeben durch

$$V_{\text{rad}} = \sqrt{\frac{2\pi I}{c}} d(R), \quad (2.31)$$

mit der Laserintensität I und dem R -abhängigen molekularen Dipolmatrixelement $d(R)$. Letzteres wird am Condon-Punkt bestimmt oder kann aus dem atomaren Dipolmatrixelement abgeschätzt werden.

Die Franck-Condon-Integrale hängen von der Grundzustandswellenfunktion ψ_g , der Wellenfunktion des angeregten Zustandes ψ_e und der irregulären Fundamentallösung für die Grundzustandswellenfunktion $\bar{\psi}_g$ ab.⁴ Diese Integrale können unter Anwendung einer stationären Phasen-Näherung [Jab45, Jul96] berechnet werden. Dabei wird angenommen, daß in der Separation des Produkttermes aus den beiden oszillierenden Wellenfunktionen der schnell oszillierende Summenterm vernachlässigbar ist. Die Phase des langsam oszillierenden Differenzterms wird um den Condon-Punkt R_C entwickelt und die Integration wird ausgeführt. Aus dem Franck-Condon-Integral in der induzierten Rate Γ ergibt sich damit der folgende Ausdruck für den sogenannten Franck-Condon-Faktor F_{eg} :

$$F_{\text{eg}} = \frac{\partial E}{\partial v} \frac{1}{D_C} |\psi_g(R_C)|^2. \quad (2.32)$$

Hierbei bezeichnen $\partial E/\partial v$ die Vibrationsabstandsfunktion und D_C die Steigung des Differenzpotentials zwischen angeregtem und Grundzustand.

In dieser Form ist der Franck-Condon-Faktor nicht mehr explizit von der Wellenfunktion des angeregten Zustandes abhängig, sondern nur noch von dem Betragsquadrat $|\psi_g(R_C)|^2$ der Wellenfunktion des Grundzustands. Der Tatsache, daß die Amplitude der Wellenfunktion des angeregten Zustandes am äußeren Umkehrpunkt von dem jeweiligen Vibrationsniveau abhängig ist, wird durch die beiden Vorfaktoren, $\partial E/\partial v$ und D_C , Rechnung getragen. Dies steht in Analogie zu dem aus der Molekülphysik bekannten Franck-Condon-Prinzip, nach dem die Wahrscheinlichkeit für einen Übergang zwischen zwei gebundenen Zuständen von dem Überlapp der Wellenfunktionen an den äußeren Umkehrpunkten abhängt.

Die beiden Vorfaktoren lassen sich näherungsweise auswerten. Der Abstand der Vibrationsniveaus in der Umgebung des Energieniveaus v , $\partial E/\partial v$, kann genähert werden durch den mittleren Energieabstand zu den nächsten beiden benachbarten Niveaus mit den Energien E_{v+1} und E_{v-1} :

$$\frac{\partial E}{\partial v} \approx \frac{E_{v+1} - E_{v-1}}{2}. \quad (2.33)$$

⁴Die irreguläre Lösung $\bar{\psi}_g$ lautet in Phasen-Amplituden-Form

$$\bar{\psi}_g(R) = -\sqrt{\frac{2\mu}{\pi\hbar^2}} \alpha_g(R) \cos \beta_g(R),$$

mit den gleichen Koeffizienten α_g und β_g (vgl. Gl. 2.18) [Boh99].

Die Steigung des Differenzpotentials D_C am Condon-Punkt R_C entspricht in guter Näherung der Steigung des angeregten Potentials am Condon-Punkt R_C . Unter Annahme eines R^{-3} -Potentials mit einem C_3 -Koeffizienten kann diese direkt berechnet werden gemäß

$$D_C = \left. \frac{\partial V}{\partial R} \right|_{R_C} = \frac{3C_3}{R_C^4}. \quad (2.34)$$

Für das Franck-Condon-Integral in der Lichtverschiebung E_1 erhält man einen entsprechenden Ausdruck (vgl. Gl. 2.36). Die Wellenfunktion der einlaufenden Welle, ψ_g , und ihr irreguläres Gegenstück, $\bar{\psi}_g$, werden ebenfalls am Condon-Punkt R_C ausgewertet.

Damit ergeben sich für die induzierte Rate Γ und die Lichtverschiebung E_1 folgende Näherungsformeln:

$$\Gamma = 2\pi V_{\text{rad}}^2 \frac{\partial E}{\partial v} \frac{1}{D_C} |\psi_g(R_C)|^2, \quad (2.35)$$

$$E_1 = \pi V_{\text{rad}}^2 \frac{\partial E}{\partial v} \frac{1}{D_C} \psi_g(R_C) \bar{\psi}_g(R_C). \quad (2.36)$$

Energieabhängigkeit

Die Abhängigkeit der Wellenfunktionen ψ_g und $\bar{\psi}_g$ von der Streuenergie E bestimmt das energieabhängige Verhalten der Linienbreite Γ und der Lichtverschiebung E_1 und damit der Streuwahrscheinlichkeit $|S|^2$. Für den Fall der s -Wellenstreuung folgt durch Entwicklung der Grundzustandswellenfunktion (vgl. Gl.2.21) um die Streuphase:

$$\Gamma \propto \sqrt{E}. \quad (2.37)$$

Die induzierte Rate Γ zeigt also eine wurzelförmige Abhängigkeit von der Streuenergie E . Hierin manifestiert sich das Wignersche Schwellenverhalten [Wig48].

Die Lichtverschiebung E_1 ist näherungsweise unabhängig von der Streuenergie:

$$E_1 \propto \text{const.} \quad (2.38)$$

Intensitätsabhängigkeit

Die Abhängigkeit des Kopplungsmatrixelements V_{rad} von der Laserintensität I überträgt sich in eine lineare Intensitätsabhängigkeit der induzierten Rate Γ und der Lichtverschiebung E_1 , also $\Gamma \propto I$, $E_1 \propto I$. Für eine feste Energie E verschiebt sich also die Lage des Maximums der Streuwahrscheinlichkeit $|S|^2$ linear mit zunehmender Intensität I , ebenso nimmt die Breite linear zu. Definiert man als Sättigungsintensität I_{sat} die Intensität, bei der die induzierte Breite Γ der spontanen Zerfallsrate γ entspricht, so läßt sich die Intensitätsabhängigkeit des Maximums $|S|_{\text{max}}^2$ vereinfacht schreiben als

$$|S|_{\text{max}}^2 = \frac{1}{1/2 + I_{\text{sat}}/4I + I/4I_{\text{sat}}}. \quad (2.39)$$

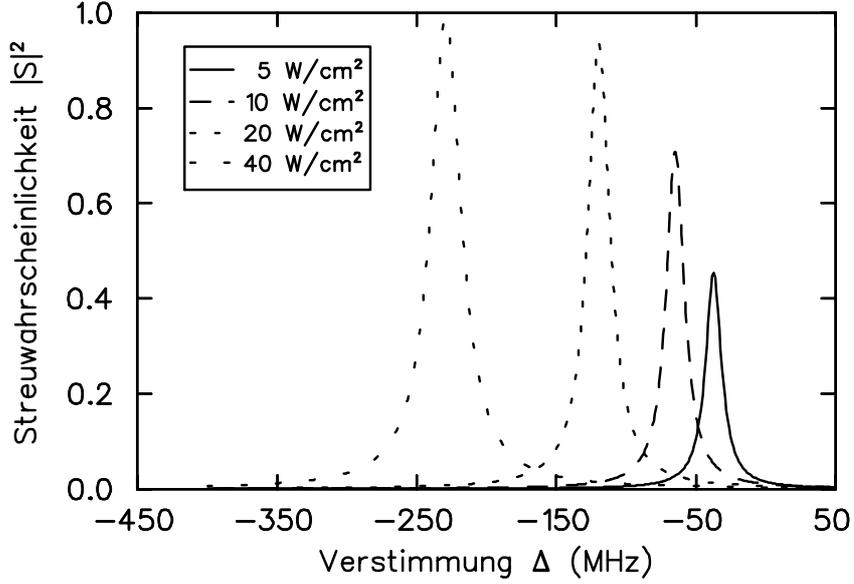


Abbildung 2.6: Streuwahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von der Laserverstimmung für verschiedene Intensitäten. Zur Berechnung der Kurven wurde eine Energie von $E/k_B = 0.5$ mK angenommen. Für die spontane Zerfallsrate wurde ein Wert von $\gamma = 12$ MHz zugrundegelegt. Für die induzierte Rate wurde $\Gamma/I = 0.361$ MHz·cm²/W und für die Lichtverschiebung wurde $E_1/I = -5.5$ MHz·cm²/W eingesetzt. Dies entspricht abgeschätzten Werten für einen Übergang in das Niveau $v_S = 83$ des Singulettzustands für das ⁶Li⁷Li-Molekül [Jul02a].

Da die induzierte Rate Γ von der Streuenergie E abhängt, ist somit auch die Sättigungsintensität I_{sat} von der Energie E abhängig. Für hohe Streuenergien ist die Sättigungsintensität somit kleiner als für niedrige Streuenergien.

In Abb. 2.6 ist die Streuwahrscheinlichkeit $|S|^2$ für eine feste Energie und vier verschiedene Intensitäten dargestellt.

2.2.4 Erweiterung des Modells

Die Beschreibung des Ratenkoeffizienten K in dem bisherigen Modell stellt eine starke Vereinfachung dar. In einer erweiterten Beschreibung müssen folgende Aspekte in Betracht gezogen werden.

Thermische Mittelung

Es muß berücksichtigt werden, daß die Atome nicht alle die gleiche Energie E besitzen, sondern in der Regel thermisch verteilt sind. Der Ratenkoeffizient K stellt in diesem Fall das thermische Mittel dar:

$$K = \left\langle \frac{\pi v}{k^2} |S|^2 \right\rangle. \quad (2.40)$$

Unter Annahme einer Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung bei der Temperatur T ergibt sich der thermisch gemittelte Ratenkoeffizient nach einer einfachen Variablensubstitution zu

$$K = \frac{1}{hQ_T} \int_0^\infty |S|^2 e^{-E/k_B T} dE. \quad (2.41)$$

Hierbei ist $Q_T = (2\pi\mu k_B T/h^2)^{3/2}$, mit der Boltzmann-Konstanten k_B , dem Planck'schen Wirkungsquantum h und der reduzierten Masse μ des betrachteten Systems. Der thermisch gemittelte Ratenkoeffizient setzt sich also aus den lorentzförmigen Beiträgen der verschiedenen Energieklassen zusammen. Deren Wichtung ist von dem Boltzmann-Faktor und dem Sättigungsgrad abhängig (vgl. Abb. 2.7). Die Verstimmungsabhängigkeit des Ratenkoeffizienten ist nun im strengen Sinne keine Lorentzkurve mehr, sondern kann Asymmetrien aufweisen. Im Bereich niedriger Intensitäten ist die Flanke bei kleiner Verstimmung, also niedriger Energie, durch ein lorentzförmiges Verhalten bestimmt, die Flanke bei großer Verstimmung, also hoher Energie, durch das exponentielle Abklingen der thermischen Verteilung [Nap94]. Dieser Effekt ist umso stärker ausgeprägt, je kleiner die natürliche Linienbreite γ des angeregten Zustands im Vergleich zur Breite der Geschwindigkeitsverteilung ist. Bei höheren Intensitäten ist die Linienform zunehmend durch den unterschiedlichen

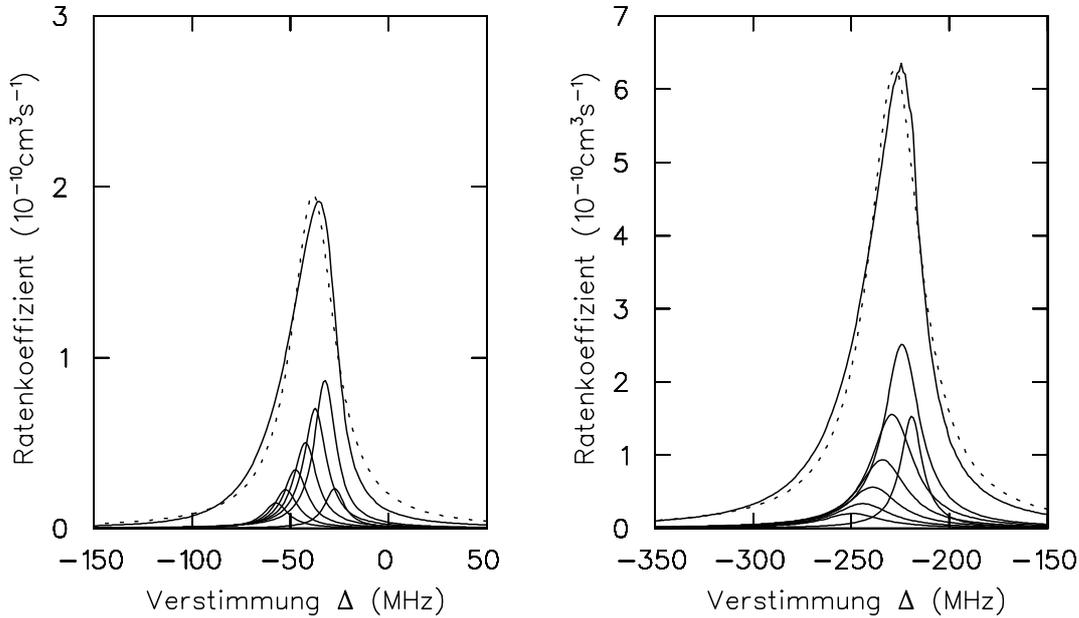


Abbildung 2.7: Thermisch gemittelter Ratenkoeffizient (große Kurve) in Abhängigkeit von der Laserverstimmung für eine Intensität von $I = 5 \text{ W/cm}^2$ (linkes Bild) und $I = 40 \text{ W/cm}^2$ (rechtes Bild). Die gestrichelte Kurve repräsentiert die Anpassung mit einer Lorentzkurve. Die angenommene Temperatur beträgt $T = 0.5 \text{ mK}$, die übrigen Werte entsprechen denen für Abb. 2.6. Die kleinen Kurven sind die Beiträge der einzelnen Energieklassen mit $E/k_B = 0.1, 5, 10, 15, 20, 25, 30 \text{ mK}$, jeweils mit einem Faktor 5 gewichtet.

Sättigungsgrad der unterschiedlichen Energieklassen bestimmt, da Energieklassen niedriger Energie bei höheren Intensitäten sättigen als Energieklassen höherer Energie. Dies kann die Form der Kurve, die Lage und Höhe deren Maximums sowie deren Breite auf komplizierte Weise beeinflussen.

Partialwellen

Es können mehrere Partialwellen l zum Ratenkoeffizienten beitragen. Unter Berücksichtigung des Entartungsgrades $2l + 1$ und der nun partialwellenabhängigen Streuwahrscheinlichkeit $|S_l|^2$ lautet der Ratenkoeffizient:

$$K = \sum_l (2l + 1) \frac{\pi v}{k^2} |S_l|^2. \quad (2.42)$$

Die Beteiligung verschiedener Partialwellen kann zu komplizierten Intensitätsabhängigkeiten von Lichtverschiebung und Linienverbreiterung führen. Das ist insbesondere dann der Fall, wenn eine sogenannte Shape-Resonanz auftritt. Dies ist ein gebundener Zustand innerhalb der Zentrifugalbarriere, dessen Bindungsenergie bezüglich der atomaren Asymptote der Streuenergie entspricht. Liegt der Condon-Punkt innerhalb der Zentrifugalbarriere, kann dieser Zustand aufgrund des Tunneleffekts stark an den angeregten Zustand ankoppeln und Lichtverschiebung und Linienverbreiterung beeinflussen. Diese Phänomene sind erst ansatzweise untersucht [Sim02, Boe96, Boe97, McK02, Côt99b].

Die Anzahl an beitragenden Partialwellen hängt von der Streuenergie und von der Höhe und Lage der jeweiligen Zentrifugalbarriere im Vergleich zur Lage des Condon-Punkts ab. Für Lithium als leichtes Element sind die Zentrifugalbarrieren vergleichsweise groß [Jul02b]. Die Zentrifugalbarriere für die p -Welle beträgt näherungsweise 7.3 mK bei einem internuklearen Abstand von $70 a_0$ und für die d -Welle etwa 38 mK bei einem Abstand von $54 a_0$. Infolgedessen sollten bei Lithium Beiträge von d -Wellen und noch höheren Partialwellen, auch in Form von Shape-Resonanzen, stark unterdrückt sein.

Mehrniveausystem

Man muß berücksichtigen, daß in den seltensten Fällen ein reines Zwei-Niveau-System vorliegt. So kann es zu einer Grundzustandsasymptote verschiedene Streukanäle α geben, die z.B. durch Atome in unterschiedlichen magnetischen Hyperfeinzuständen gebildet werden. Ebenso kann es verschiedene angeregte Zustände β , z. B. nicht-aufgelöste Hyperfeinzustände, geben. Die Streuwahrscheinlichkeit ist dann von den beteiligten Zuständen α und β abhängig, also $|S_{\alpha,\beta}|^2$. Berücksichtigt man desweiteren, daß die verschiedenen Grundzustände unterschiedlich stark besetzt sein können, mit einer relativen Besetzung w_α , so erhält man den gesamten Ratenkoeff-

fizienten als gewichtete Summe über die verschiedenen Beiträge:

$$K = \sum_{\alpha,\beta} w_{\alpha} \frac{\pi\nu}{k^2} |S_{\alpha,\beta}|^2. \quad (2.43)$$

2.3 Heteronukleare Systeme

Die heteronukleare Photoassoziation ist im Allgemeinfall mit intrinsischen Schwierigkeiten behaftet. Diese sind darauf zurückzuführen, daß bei heteronuklearen Atomen die langreichweitigen Wechselwirkungen im angeregten Zustand von grundsätzlich anderem Charakter sind als bei homonuklearen Atomen. Eine Ausnahme bildet das Isotopengemisch ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$. Dies stellt zwar ein heteronukleares System dar, die Wechselwirkungen in dem für die Photoassoziation relevanten Abstandsbereich weisen jedoch homonuklearen Charakter auf. Damit ist das System ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ für Photoassoziationsexperimente besonders geeignet.

Dieser abschließende Teil der theoretischen Grundlagen beginnt mit einem allgemeinen Vergleich der homonuklearen und heteronuklearen Photoassoziation (Kap. 2.3.1). Anschließend wird das spezielle System ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ vorgestellt (Kap. 2.3.2). Die Methode der massenreduzierten Quantenzahlen erlaubt eine Vorhersage der Abstände der Vibrationsniveaus für ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ aus denen für ${}^6\text{Li}_2$ bzw. ${}^7\text{Li}_2$ (Kap. 2.3.3). Die Detektion der heteronuklearen Photoassoziation als Reduktion in der Gleichgewichtsteilchenzahl in einer kombinierten magnetooptischen Falle ist Inhalt des letzten Abschnitts (Kap. 2.3.4).

2.3.1 Homonukleare und heteronukleare Photoassoziation

In welchem Rahmen sich Photoassoziationsexperimente an einem bestimmten System durchführen lassen, hängt entscheidend von der Anzahl und Lage der nahe der Dissoziationsgrenze gebundenen Vibrationsniveaus des angeregten Zustands ab. Nur für Übergänge in Vibrationsniveaus, deren äußerer Umkehrpunkt bei einem ausreichend großen internuklearen Abstand liegt, ist der Franck-Condon-Faktor und damit der Ratenkoeffizient ausreichend groß. In diesem Fall ist die Grundzustandswellenfunktion nicht wesentlich durch das Grundzustandspotential beeinflusst und oszilliert langsam und mit großer Amplitude (vgl. Kap. 2.2.3).

Die langreichweitigen Potentialverläufe des angeregten Zustands unterscheiden sich für homonukleare und für heteronukleare Systeme grundsätzlich (vgl. Kap. 2.1.1). Der angeregte Zustand weist im homonuklearen Fall ein charakteristisches R^{-3} -Verhalten auf, im heteronuklearen Fall hingegen ein R^{-6} -Verhalten. Für große internukleare Abstände verläuft das heteronukleare Potential infolgedessen wesentlich flacher. Der Einfluß des vergleichsweise größeren C_6 -Koeffizienten ist in diesem Zusammenhang vernachlässigbar (vgl. Abb. 2.8). Ein Zahlenbeispiel verdeutlicht die Situation: bei einem internuklearen Abstand von $50 a_0$ beträgt für das homonukleare

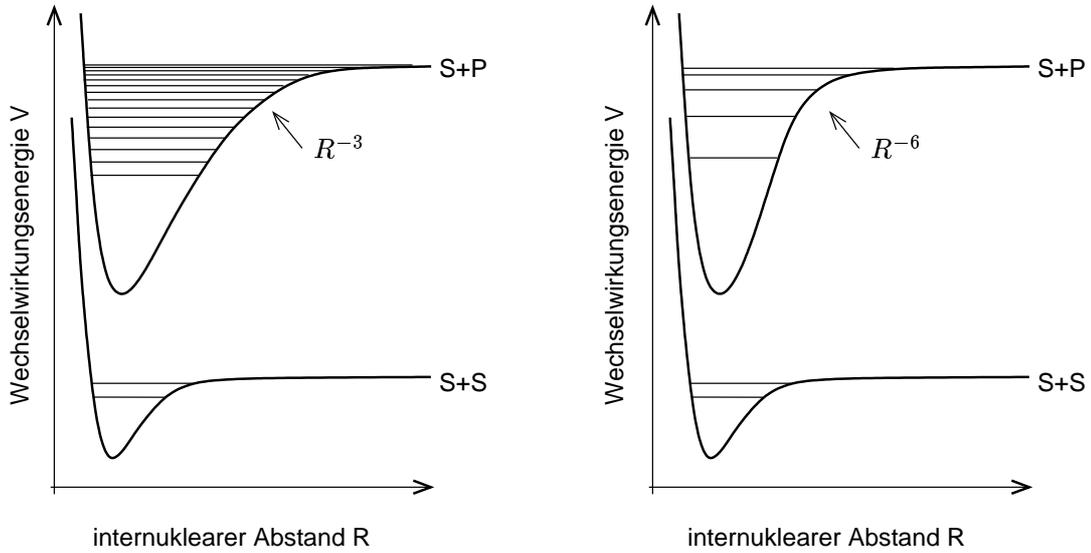


Abbildung 2.8: Potentialverläufe sowie Lage und Anzahl der Vibrationsniveaus für ein homonukleares Dimer (links) und für ein heteronukleares Dimer (rechts) im Vergleich.

Dimer Li_2 die Potentialdifferenz zur Dissoziationsgrenze -580 GHz, für das heteronukleare Dimer LiRb hingegen -13 GHz. Dabei wird für den C_6 -Koeffizienten von LiRb der in [Bus87] angegebene Wert verwendet.

Dieser unterschiedliche Potentialverlauf wirkt sich zum einen auf die Energieabstände der Vibrationsniveaus aus, zum anderen auf die Anzahl der Vibrationsniveaus mit großen äußeren Umkehrpunkten. Die Energieabstände der Vibrationsniveaus v werden durch die Vibrationsabstandsfunktion (vgl. Gl. 2.11) beschrieben. Diese lautet im Falle eines R^{-3} -Potentials ($n=3$):

$$\frac{dE}{dv} = \frac{\bar{X}_3}{\mu^3 C_3^2} (v_D - v)^5. \quad (2.44)$$

Für ein R^{-6} -Potential ($n=6$) gilt:

$$\frac{dE}{dv} = \frac{\bar{X}_6}{\mu^{3/2} C_6^{1/2}} (v_D - v)^2. \quad (2.45)$$

Auch wenn die unterschiedlichen Potenzen von $(v_D - v)$ für den heteronuklearen Fall kleinere Relativabstände als für den homonuklearen Fall suggerieren, so ist das Verhalten dennoch durch die jeweiligen Vorfaktoren dominiert. Infolgedessen weisen die Vibrationsniveaus, ausgehend von der Asymptote, im heteronuklearen Fall einen größeren Energieabstand auf. Verbunden mit der insgesamt viel kleineren Potentialdifferenz bezüglich der atomaren Asymptote gibt es im angeregten Zustand bei großen internuklearen Abständen insgesamt wesentlich weniger Niveaus. Beispielsweise beträgt die Anzahl an Vibrationsniveaus mit äußeren Umkehrpunkten bei

mehr als $50 a_0$ für das Li_2 -Dimer etwa 30, für das LiRb -Dimer schätzungsweise 2. Diese Abschätzung basiert auf der Verwendung von Gl. 2.44 und Gl. 2.45 bzw. folgt aus [Abr95b] und [Wan98a].

Die tatsächliche Anzahl an Vibrationsniveaus, die durch Photoassoziation angeregt werden können, hängt nicht nur von dem exakten Verlauf des angeregten Zustands ab, sondern auch entscheidend von dem Grundzustandspotential. Das Vorzeichen und der Betrag der Streulänge bestimmen den Verlauf der Grundzustandswellenfunktion und damit letztlich den internuklearen Abstandsbereich mit ausreichend großen Franck-Condon-Faktoren.⁵

Die heteronukleare Photoassoziation ist also aufgrund des R^{-6} -Potentials des angeregten Zustands mit Schwierigkeiten verbunden. Verschiedene Anwendungen der Photoassoziation, die auf einer Spektroskopie einer Vielzahl von angeregten Vibrationsniveaus beruhen, lassen sich prinzipiell nicht ausführen. An der Bedeutung der Photoassoziation für die Erzeugung kalter Moleküle sollte sich jedoch nichts ändern.

2.3.2 Heteronukleares System ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$

Termschemata der Atome ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$

Lithium ist das leichteste Alkalienelement. Es besitzt die Kernladungszahl $Z = 3$. In der Natur kommen zwei stabile Isotope vor: ${}^6\text{Li}$ mit drei Neutronen und ${}^7\text{Li}$ mit vier Neutronen. Aufgrund des Unterschieds von einem Neutron haben die beiden Isotope unterschiedlichen quantenstatistischen Charakter: ${}^6\text{Li}$ ist ein Fermion und ${}^7\text{Li}$ ist ein Boson. Das natürliche Isotopenverhältnis beträgt 7.5 % zu 92.5 %.

Die Termschemata der beiden Isotope sind durch das ungepaarte Elektron mit der Hauptquantenzahl $n = 2$ geprägt. Ausschnitte aus den Termschemata sind in Abb. 2.9 für beide Isotope gezeigt. Dargestellt sind für beide Isotope der Grundzustand $2S$ und der erste angeregte Zustand $2P$, jeweils mit den dazugehörigen Fein- und Hyperfeinaufspaltungen. Alle Übergangswellenlängen liegen im Bereich von 671 nm.

Bei beiden Isotopen besitzt der angeregte Zustand eine Feinstrukturaufspaltung in einen $P_{1/2}$ - und in einen $P_{3/2}$ -Zustand. Die Aufspaltungsenergie beträgt 10.1 GHz. Sie ist von der gleichen Größenordnung wie die Isotopieverschiebung der $D1$ - bzw. der $D2$ -Linien, so daß zufälligerweise die $D2$ -Linie von ${}^6\text{Li}$ mit der $D1$ -Linie von ${}^7\text{Li}$ zusammenfällt.

Alle Feinstrukturturniveaus sind hyperfeinaufgespalten (eine Zusammenstellung der

⁵Unter Annahme einer Grundzustandswellenfunktion mit gleicher Streulänge und mit gleicher Energie ist das Verhältnis der Franck-Condon-Faktoren für die heteronukleare Photoassoziation und für die homonukleare Photoassoziation über den gesamten langreichweitigen Potentialverlauf größer als eins und nimmt für große Condon-Punkte zu. Die Tatsache, daß für große internukleare Abstände die Franck-Condon-Faktoren im heteronuklearen Fall größer sind als im homonuklearen, ist anschaulich damit zu begründen, daß durch den flacheren Potentialverlauf die Aufenthaltswahrscheinlichkeit an den äußeren Umkehrpunkten größer ist.

entsprechenden Intervallfaktoren findet sich in [Ari77]). Durch Kopplung des Elektronenspins mit dem Kernspin ($I = 1$ für ${}^6\text{Li}$ und $I = 3/2$ für ${}^7\text{Li}$) spaltet der Grundzustand von ${}^6\text{Li}$ in die beiden Hyperfeinzustände $F = 1/2$ und $F = 3/2$ mit einer Energiedifferenz von 228.2 MHz auf, bei ${}^7\text{Li}$ gibt es die beiden Zustände $F = 1$ und $F = 2$ mit einem Abstand von 803.5 MHz. Der $P_{1/2}$ -Zustand ist ebenfalls jeweils zweifach aufgespalten mit Energiedifferenzen von 26.1 MHz bzw. 91.8 MHz. Der $P_{3/2}$ -Zustand ist dreifach aufgespalten im Fall von ${}^6\text{Li}$ ($F' = 5/2, 3/2, 1/2$) und vierfach aufgespalten im Falle von ${}^7\text{Li}$ ($F' = 3, 2, 1, 0$), wobei dort die energetische Reihenfolge der Hyperfeinniveaus aufgrund einer Anomalie des g_I -Faktors invertiert ist. Die Hyperfeinaufspaltung beträgt einige MHz und liegt damit in der Größenordnung der natürlichen Linienbreite. Diese beträgt 5.9 MHz, entsprechend einer Lebensdauer der angeregten Zustände von 27 ns.

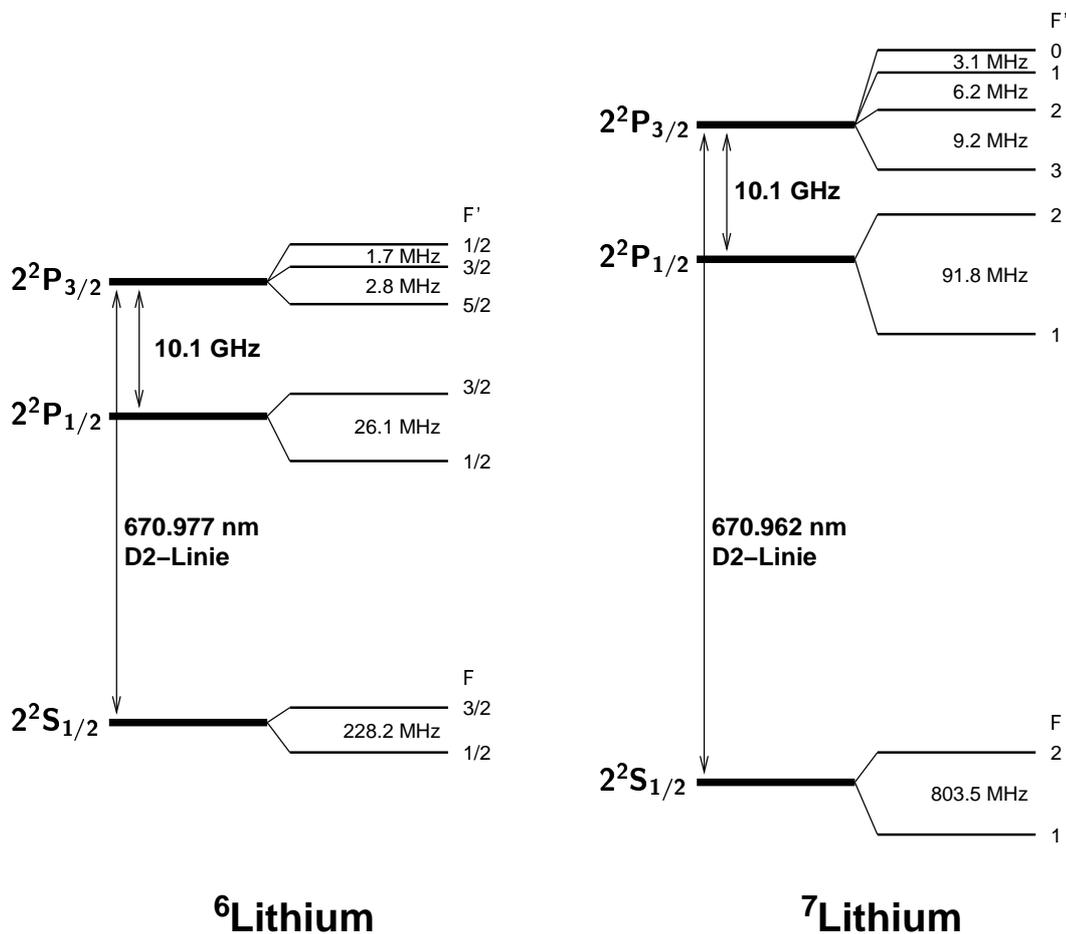


Abbildung 2.9: Termschemata der Atome ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$.

Potentialkurven des Moleküls ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$

Wie im vorhergehenden Abschnitt bereits beschrieben, beträgt die Isotopieverschiebung bei den beiden betrachteten Lithiumisotopen etwa 10 GHz. Anders als im homonuklearen Fall sind somit die beiden Asymptoten ${}^6\text{Li}(S_{1/2}) + {}^7\text{Li}(P_{1/2})$ und ${}^6\text{Li}(P_{1/2}) + {}^7\text{Li}(S_{1/2})$ nicht energetisch entartet, sondern um den Betrag der Isotopieverschiebung von 10 GHz verschoben. Entsprechendes gilt für die beiden Asymptoten ${}^6\text{Li}(S_{1/2}) + {}^7\text{Li}(P_{3/2})$ und ${}^6\text{Li}(P_{3/2}) + {}^7\text{Li}(S_{1/2})$. Aufgrund dieser zufälligen Übereinstimmung der Größe der Isotopieverschiebung mit der Feinstrukturaufspaltung fallen die beiden Asymptoten ${}^6\text{Li}(S_{1/2}) + {}^7\text{Li}(P_{1/2})$ und ${}^6\text{Li}(P_{3/2}) + {}^7\text{Li}(S_{1/2})$ energetisch zusammen (vgl. Abb. 2.10).

Die Isotopieverschiebung ist bereits bei großen internuklearen Abständen R klein gegenüber der Wechselwirkungsenergie. In diesem Abstandsbereich können die asymptotischen Zustände als quasi entartet betrachtet werden. Die Potentialverläufe der angeregten Zustände sind also durch den Beitrag der resonanten Dipol-Dipol-Wechselwirkung mit der charakteristischen R^{-3} -Abhängigkeit dominiert. Damit sind die Potentialverläufe des heteronuklearen Moleküls ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ also ähnlich denen der homonuklearen Moleküle ${}^6\text{Li}_2$ und ${}^7\text{Li}_2$.

Eine einfache Klassifizierung der molekularen Zustände ist dadurch möglich, daß die Feinstrukturaufspaltung, ebenso wie die Isotopieverschiebung, bereits bei großen internuklearen Abständen klein ist gegenüber der Wechselwirkungsenergie. Infolgedessen kann die Spin-Bahn-Kopplung der einzelnen Atome bei der Beschreibung bereits bei einem großen Abstand vernachlässigt werden. Stattdessen koppeln jeweils die Bahndrehimpulse und die Spins der Elektronen der einzelnen Atome zu einem Gesamtbahndrehimpuls \vec{L} und einem Gesamtspin \vec{S} des Moleküls. Die Quantenzahlen L und S stellen gute Quantenzahlen dar, ebenso der Betrag der Projektion des Gesamtbahndrehimpulses \vec{L} auf die internukleare Achse, $\Lambda = |M_L|$. Die Bezeichnung der einzelnen elektronischen Molekülzustände in der ${}^{2S+1}\Lambda_{g/u}^{+/-}$ -Notation, bei der Kopplungen der verschiedenen atomaren Drehimpulse nicht berücksichtigt werden, ist somit adäquat. Die Indizes $+/-$ und g/u kennzeichnen das Symmetrieverhalten der elektronischen Wellenfunktion. Mit $+/-$ wird das Verhalten bei Spiegelung an einer Ebene, die die Atomkerne enthält, beschrieben und mit g/u , der Abkürzung für gerade/ungerade, wird die Parität der Wellenfunktion bezeichnet. Die Kennzeichnung g/u ist nur sinnvoll, wenn das Feld, in dem sich die Elektronen bewegen, ein Symmetriezentrum aufweist. Dies ist nur bei homonuklearen Molekülen der Fall oder im speziellen Fall eines heteronuklearen Moleküls, das aus zwei unterschiedlichen Isotopen des gleichen Elementes besteht [Her50]. Die Tatsache, daß für ein heteronukleares Isotopomer diese Symmetrie nicht exakt gilt, da der Ladungsschwerpunkt nicht mit dem Massenschwerpunkt zusammenfällt, kann in diesem Zusammenhang vernachlässigt werden. Eine derartige ungerade-gerade-Symmetriebrechung wurde kürzlich anhand des ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Moleküls beobachtet [Cac00]. Zur Unterscheidung von verschiedenen elektronischen Zuständen mit gleichen Term-

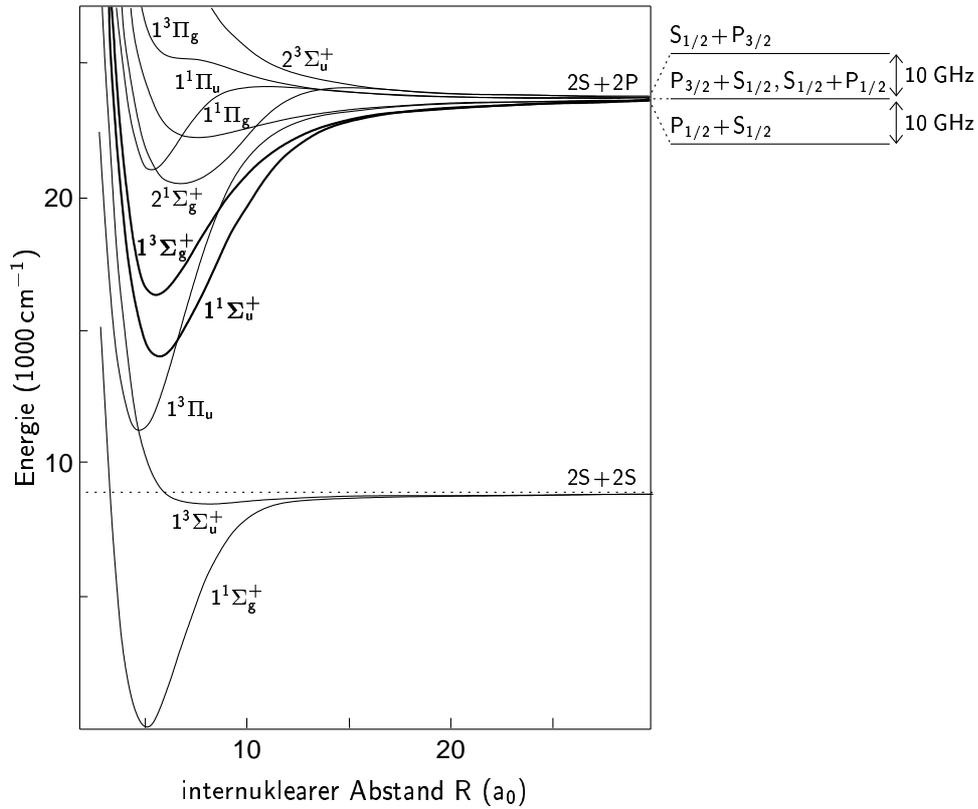


Abbildung 2.10: Potentialkurven des Moleküls ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ für die $2S + 2S$ -Asymptote und $2S + 2P$ -Asymptote nach [Rat87]. Vergrößert dargestellt sind die asymptotischen Feinstrukturzustände, wobei die Quantenzahlen sich jeweils auf ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ beziehen. Vom Grundzustand können nur Anregungen in die Zustände $1^1\Sigma_u^+$ und $1^3\Sigma_g^+$ erfolgen (dick eingezeichnete Linien).

symbolen kann dem Termsymbol eine fortlaufende Nummer, ausgehend vom jeweils tiefstliegenden Zustand, vorangestellt werden. Häufig wird auch eine Kennzeichnung nach der Multiplizität mit den Buchstaben $X, A, B \dots a, b, c \dots$ verwendet (spektroskopische Notation, siehe z.B. [Bar62]).

In Abb. 2.10 sind für das ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Molekül die Potentialverläufe der verschiedenen elektronischen Zustände der Grundzustandsasymptote und der Asymptote des ersten angeregten Zustands dargestellt. Zur $2S + 2S$ -Asymptote gibt es zwei elektronische Grundzustände, den Singulettzustand $1^1\Sigma_g^+$ und den Triplettzustand $1^3\Sigma_u^+$. Zur $2S + 2P$ -Asymptote gibt es insgesamt acht elektronische Zustände (vgl. auch Kap. 2.1.1). Für Photoassoziationsexperimente im allgemeinen sind nur Übergänge zwischen folgenden zwei Paaren von elektronischen Zuständen relevant:

$$1^1\Sigma_g^+ \rightarrow 1^1\Sigma_u^+, \quad (2.46)$$

$$1^3\Sigma_u^+ \rightarrow 1^3\Sigma_g^+. \quad (2.47)$$

Dies ist zum einen in den Auswahlregeln für optische Dipolübergänge (Interkombinationsverbot $\Delta S = 0$; $\Delta \Lambda = 0, \pm 1$; $+$ \rightarrow $+$ und $-$ \rightarrow $-$ für Σ -Zustände; Paritätsänderung), zum anderen in dem normalerweise erforderlichen attraktiven langreichweitigen Verhalten begründet. Aufgrund der Auswahlregeln kann vom Grundzustand aus auch in die Zustände $1^1\Pi_u$ und $1^3\Pi_g$ angeregt werden, diese sind im langreichweitigen Teil jedoch repulsiv und besitzen somit keine gebundenen Zustände mit großen Condon-Radien.

Im Folgenden genügt es, diese vier elektronischen Zustände zu betrachten. Im Rahmen der Born-Oppenheimer-Näherung sind die Potentialverläufe für die drei Isotopomere ${}^6\text{Li}_2$, ${}^7\text{Li}_2$ und ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ gleich. Demzufolge können die Ergebnisse zahlreicher Rechnungen und Messungen an den beiden homonuklearen Dimeren auch auf das heteronukleare Dimer ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ übertragen werden.

Der langreichweitige Potentialverlauf für den Singulettgrundzustand $1^1\Sigma_g^+$ und den Triplettgrundzustand $1^3\Sigma_u^+$ wird durch den gleichen C_6 -Koeffizienten beschrieben. Der derzeit genaueste berechnete Wert beträgt 1393.39 a.u. [Yan96]. Der Unterschied in der Dissoziationsenergie D_e zwischen Singulett- und Triplettzustand aufgrund der Austauschwechselwirkung ist eklatant: für den Singulettzustand beträgt $D_e = 8516.7 \text{ cm}^{-1}$, für den Triplettzustand lediglich 333.7 cm^{-1} . Dabei unterscheiden sich die Dissoziationsenergien für die verschiedenen Isotopomere um weniger als 0.5 cm^{-1} [Abr97]. Die Minima der Potentialkurven liegen für den Singulettzustand bei $5.1 a_0$ [Sch85] und für den Triplettzustand bei $7.9 a_0$ [Lin89].

Die Beschreibung des Potentialverlaufes für große internukleare Abstände R erfolgt für die beiden angeregten Zustände $1^1\Sigma_u^+$ und $1^3\Sigma_g^+$ durch den gleichen C_3 -Koeffizienten. Dieser wurde für die beiden homonuklearen Dimere ${}^6\text{Li}_2$ und ${}^7\text{Li}_2$ zu 11.0028 a.u. bestimmt [McA96]. Das Singulettpotential $1^1\Sigma_u^+$ ist tiefer als das Triplettpotential $1^3\Sigma_g^+$. Die Dissoziationsenergien D_e betragen 9352.3 cm^{-1} [Lin96] bzw. $D_e = 7091.6 \text{ cm}^{-1}$ [Lin89, Mar88], unter Vernachlässigung der Isotopieverschiebung, die in der Größenordnung der Fehlertoleranz liegt. Die Minima liegen bei etwa den gleichen internuklearen Abständen, und zwar bei $5.9 a_0$ [Sch85] für den Singulettzustand und bei $5.8 a_0$ für den Triplettzustand [Lin89].

Die Lage der Vibrationsniveaus in einem bestimmten Potential ist von der reduzierten Masse des betrachteten Isotopomers abhängig. Somit können die Daten für ein bestimmtes Isotopomer nicht ohne weiteres auf die anderen Isotopomere übertragen werden. Spektroskopisch sind nur wenige, tiefliegende Vibrationsniveaus im ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Molekül untersucht, wohingegen die beiden homonuklearen Dimere umfassend spektroskopiert sind (eine Übersicht über die beobachteten Zustände findet sich in Anhang A). Die Anzahl gebundener Zustände sollte sich jedoch nicht wesentlich unterscheiden. So sollte das letzte gebundene Niveau des Singulettgrundzustands $v_S = 39$ sein [Côt99b], für den Triplettzustand wird als höchstes gebundenes Niveau $v_T = 10$ bei einer Bindungsenergie von -1.90 GHz vorausgesagt [Jul02a]. Die beiden angeregten Zustände besitzen um die 110 gebundene Niveaus.

2.3.3 Methode der massenreduzierten Quantenzahlen

Die Methode der massenreduzierten Quantenzahlen [Stw75] stellt für einen bestimmten Molekülzustand einen Zusammenhang zwischen den Abständen der Vibrationsniveaus und zwischen den Rotationskonstanten der verschiedenen Isotopomere her. In der Born-Oppenheimer-Näherung ist das Potential $V(R)$ unabhängig von der reduzierten Masse μ . Durch Einführung einer massenreduzierten Vibrationsquantenzahl η und einer massenreduzierten Rotationsquantenzahl ξ , die wie folgt definiert sind

$$\eta = \frac{v + 1/2}{\sqrt{\mu}}, \quad (2.48)$$

$$\xi = \frac{J(J + 1)}{\mu}, \quad (2.49)$$

kann die radiale Schrödinger-Gleichung in eine parametrisierte Form gebracht werden. Deren Energieeigenwerte hängen nur von den beiden massenreduzierten Größen η und ξ ab. Für eine bestimmte Isotopenkombination mit reduzierter Masse μ besteht somit folgender Zusammenhang zwischen dem Energieabstand $\Delta G_{v+1/2}$ vom $v + 1$ -ten Vibrationsniveau zum v -ten Vibrationsniveau (vgl. Gl. 2.9) und dem Energieabstand in massenreduzierter Form ΔG_η :

$$\Delta G_\eta = \sqrt{\mu} \Delta G_{v+1/2}. \quad (2.50)$$

Für die massenabhängige Rotationskonstante B_v und die massenreduzierte Rotationskonstante B_ξ gilt folgende Beziehung:

$$B_\xi = \mu B_v. \quad (2.51)$$

Diese Beziehungen erlauben einerseits, Daten von verschiedenen Isotopomeren direkt zu vergleichen oder zu kombinieren. Umgekehrt lassen sich aus Daten für ein bestimmtes Isotopomer die entsprechenden Größen eines beliebigen anderen Isotopomers berechnen, indem man die Funktion an den entsprechenden massenreduzierten Quantenzahlen interpoliert.

Durch Anwendung dieser Methode der massenreduzierten Quantenzahlen kann somit für das heteronukleare Molekül ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ eine Vorhersage für die Relativabstände der Vibrationsniveaus des Singulett- und des Triplettzustands sowie für die dazugehörigen Vibrationsquantenzahlen aus den homonuklearen Daten gemacht werden. In der Gruppe von R. Hulet konnte der Singulettzustand für ${}^6\text{Li}_2$ im Bereich von $v_S = 62\text{--}88$, entsprechend einer Verstimmung von -3559 bis -21 GHz relativ zur $2S_{1/2} + 2P_{1/2}$ -Asymptote, und für ${}^7\text{Li}_2$ im Bereich von $v_S = 65\text{--}97$, entsprechend einer Verstimmung von -4884 bis -11 GHz, beobachtet werden. Für den Triplettzustand betrug bei ${}^6\text{Li}_2$ der Bereich $v_T = 56\text{--}84$, entsprechend -2706 bis -46 GHz, und bei ${}^7\text{Li}_2$ umfaßte der Bereich $v_T = 62\text{--}90$, entsprechend -2249 bis -6 GHz. [Abr95b]. Die richtige Anwendung der Methode wurde zunächst an den beiden homonuklearen

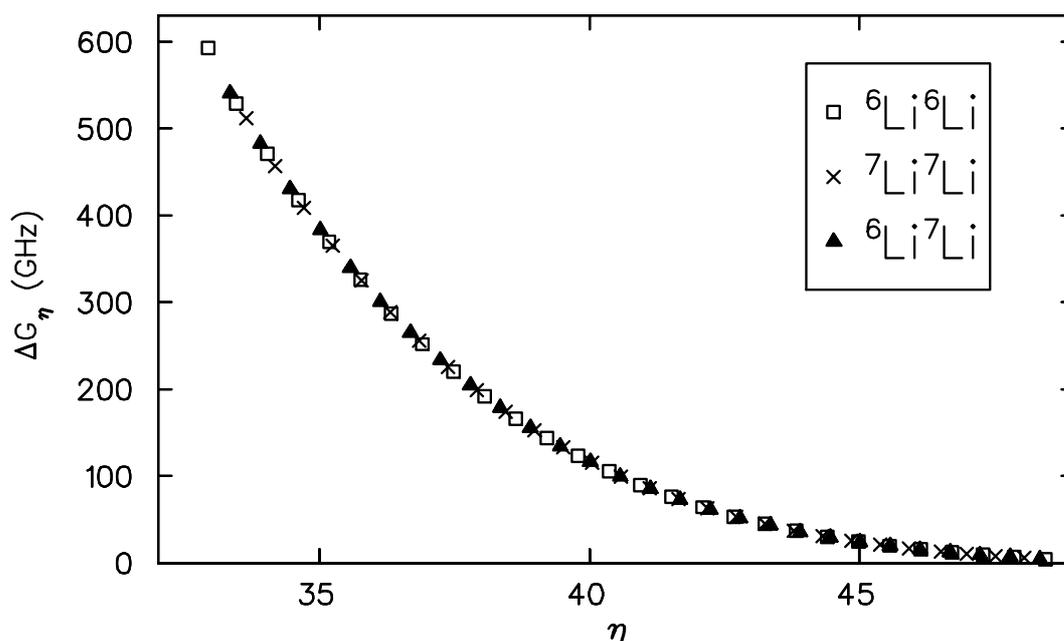


Abbildung 2.11: Anwendung der Methode der massenreduzierten Quantenzahlen auf die Isotopomere von Lithium: Vibrationsabstanzfunktion in massenreduzierter Form in Abhängigkeit von der massenreduzierten Vibrationsquantenzahl. Dargestellt sind die gemessenen Werte für die Vibrationsniveaus (Rotationsniveau $N = 1$) des angeregten Triplettzustands von ${}^6\text{Li}_2$ und ${}^7\text{Li}_2$ sowie jeweils der Mittelwert der daraus berechneten Werte für ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$.

Spektren überprüft, indem die aus dem einen Spektrum berechneten Abstände und Quantenzahlen mit den tatsächlich gemessenen verglichen wurden. Dann wurden mittels dieser Methode aus den homonuklearen Spektren jeweils die Relativabstände für das heteronukleare Spektrum berechnet. Die Berechnungen der Relativabstände aus den ${}^6\text{Li}{}^6\text{Li}$ - und ${}^7\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Spektren stimmen für die Triplettserie innerhalb von 150 MHz über den gesamten Bereich überein. Für die Singulettserie ist die Übereinstimmung ähnlich gut, allerdings gibt es im Bereich von $v_s = 73$ bis $v_s = 79$ größere Abweichungen bis zu 2 GHz. Dies ist auf die teilweise fehlenden homonuklearen Daten in diesem Bereich aufgrund des Minimums im Photoassoziationssignal (vgl. Kap. 6) zurückzuführen. In Abb. 2.11 sind exemplarisch für das Triplettpektrum die aus den beiden homonuklearen Spektren berechneten Abstanzfunktionen in massenreduzierter Form, sowie die Mittelwerte der daraus vorhergesagten Abstanzfunktionen für ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ dargestellt.

2.3.4 Detektion in der kombinierten magnetooptischen Falle

Funktionsprinzip der magnetooptischen Falle

Zur Erzeugung und Speicherung kalter Atome hat sich die magnetooptische Falle (magneto-optical trap, MOT) [Raa87] als Standardwerkzeug etabliert. Ihr Funktionsprinzip beruht auf der spontanen Lichtkraft.

In der Standardkonfiguration besteht eine magnetooptische Falle aus drei zueinander orthogonalen, gekreuzten, gegenüber der atomaren Resonanz rotverstimmten Laserstrahlpaaren und aus einem axialsymmetrischen magnetischen Quadrupolfeld. Dieses zeichnet sich durch einen linearen Anstieg des Magnetfeldbetrags ausgehend vom Fallenzentrum aus und wird durch zwei gegenläufig stromdurchflossene Spulen in Helmholtz-Anordnung erzeugt (vgl. Abb. 2.12, links). In dem Magnetfeld sind die an dem atomaren Übergang beteiligten Zustände Zeeman-aufgespalten, wobei die energetische Reihenfolge der Zustände in positiver und negativer Raumrichtung invertiert ist. Dies ist in Abb. 2.12, rechts, für ein Zwei-Niveau-System mit $J = 0$ und $J' = 1$ vereinfacht dargestellt. Die Auswahlregeln für optische Dipolübergänge werden durch entsprechende Zirkularpolarisierung des verwendeten Lichts derart ausgenutzt, daß das Atom immer mit dem Laserstrahl stärker in Resonanz ist, der es auf das Fallenzentrum zu beschleunigt. In dieser Konfiguration besitzt die spontane Lichtkraft also durch den Zeemaneffekt eine ortsabhängige Rückstellkomponente. Zusätzlich enthält die spontane Lichtkraft eine geschwindigkeitsabhängige Reibungskomponente. Diese entsteht dadurch, daß ein langsames Atom infolge des Dopplereffekts immer mit dem rotverstimmten Laserstrahl stärker resonant ist, der es weiter abbremst. Durch das geschickte Zusammenspiel von Zeemaneffekt und Dopplereffekt kann die magnetooptische Falle somit zum Speichern und Kühlen von Atomen verwendet werden.

Die Temperatur des gespeicherten Ensembles ist bei leichten Atomsorten, wie Li-

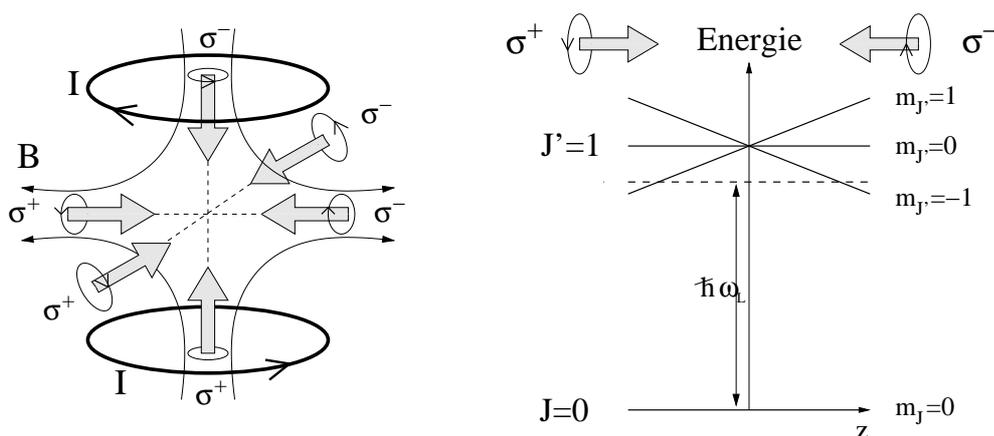


Abbildung 2.12: Laserstrahlkonfiguration und Magnetfeldverlauf in der magnetooptischen Falle (links); Zeemanaufspaltung eines Zwei-Niveau-Systems im Magnetfeld (rechts).

thium, durch die sogenannte Dopplertemperatur begrenzt. Diese hängt nur von der natürlichen Linienbreite des verwendeten Übergangs ab und beträgt bei den Alkali-Elementen etwa $140 \mu\text{K}$ [Phi92]. Bei schweren Elementen können Temperaturen bis zu einigen μK aufgrund zusätzlich auftretender Kühlmechanismen erreicht werden [Dal89].

Photoassoziation in der magnetooptischen Falle

In einer magnetooptischen Falle lassen sich Atome einfangen und speichern, deren Geschwindigkeit unterhalb einer kritischen Geschwindigkeit, der sogenannten Einfanggeschwindigkeit, liegt. Diese ist für eine gegebene Atomsorte eine komplizierte Funktion verschiedener Fallenparameter, wie z. B. des Durchmessers, der Intensität und der Verstimmung der verwendeten Laserstrahlen (siehe z. B. [Lin92, Rit94, Sch97, Sch98a]). Typischerweise beträgt sie einige 10 m/s .

Bei der Photoassoziation zerfällt der größte Teil der angeregten Moleküle durch spontane Emission in Paare von freien Atomen, deren Geschwindigkeit größer als die Einfanggeschwindigkeit ist [Pil97]. Infolgedessen sind diese Atome in der magnetooptischen Falle nicht mehr speicherbar. Die aus den angeregten Molekülen durch spontane Emission zu einem geringen Bruchteil entstehenden Grundzustandsmoleküle sind in der Falle ebenfalls nicht speicherbar, da das Fallenkonzept für sie nicht funktioniert. Der Photoassoziationsprozeß führt also zu einer Reduktion der Anzahl gespeicherter Atome.

Bei der homonuklearen Photoassoziation führt ein Photoassoziationsprozeß zu einem Verlust von zwei Atomen aus der MOT. Die Anzahl an Atomen, die pro Zeit infolge eines Photoassoziationsprozesses aus der Falle entweichen, $(\dot{N})_{\text{PA}}$, ergibt sich unter Annahme eines homogen bestrahlten Volumens durch den Ratenkoeffizienten K und das Ortsintegral des Quadrates der Teilchendichte n gemäß

$$(\dot{N})_{\text{PA}} = -2K \int n^2 d^3r. \quad (2.52)$$

Bei der heteronuklearen Photoassoziation ist der Teilchenzahlverlust bei beiden Spezies gleich groß. In den Verlustterm geht somit das Ortsintegral des Produkts der beiden Teilchendichten n_6 und n_7 ein:⁶

$$(\dot{N}_6)_{\text{PA}} = (\dot{N}_7)_{\text{PA}} = -K_{67} \int n_6 n_7 d^3r. \quad (2.53)$$

Ein entscheidender Unterschied zur homonuklearen Photoassoziation besteht also darin, daß bei der heteronuklearen Photoassoziation der Verlustterm einer betrachteten Atomsorte linear von der betreffenden Teilchendichte abhängt und nicht wie

⁶Die beiden Spezies werden in Anlehnung an ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ mit den Indizes 6 und 7 gekennzeichnet. Diese und die nachfolgenden Überlegungen gelten jedoch allgemein für zwei beliebige Atomsorten A und B .

im homonuklearen Fall quadratisch.

Ratengleichungen

Bei der Detektion der Photoassoziation als Teilchenzahlverluste in einer magneto-optischen Falle muß berücksichtigt werden, daß die zeitliche Abhängigkeit der Teilchenzahl durch verschiedene Prozesse bestimmt ist. Es gibt einen Ladevorgang, der sich im Allgemeinen durch eine zeitlich konstante Laderate L charakterisieren läßt. Ferner gibt es mehrere Verlustprozesse. Diese basieren auf Stößen, bei denen die gefangenen Atome auf Geschwindigkeiten über die Einfanggeschwindigkeit hinaus beschleunigt werden und damit nicht mehr gespeichert werden können. Diese werden im Folgenden kurz beschrieben:

- **Elastische Stöße mit schnellen Atomen:**
Ein elastischer Stoß eines gespeicherten Atoms mit einem schnellen Atom aus dem Restgas oder aus dem Ladestrahle führt zu einer Geschwindigkeitszunahme über die Einfanggeschwindigkeit hinaus [Bjo88]. Die Verlustrate ist proportional zur Teilchenzahl mit einem Ratenkoeffizienten α .
- **Inelastische Stöße im Lichtfeld der MOT:**
Während des Stoßes von zwei gespeicherten Atomen, die sich im Grundzustand befinden, kann ein Photon aus dem Lichtfeld der MOT absorbiert werden. Durch Emission eines rotverschobenen Photons oder durch Änderung des Feinstrukturzustands und anschließender Photonenemission kann Anregungsenergie in Form von kinetischer Energie frei werden. Die beschleunigten Grundzustandsatome können nicht mehr in der Falle gespeichert werden. Der entsprechende Ratenkoeffizient β ist von diversen MOT-Parametern abhängig, wie z. B. der Laserintensität und -verstimmung (Übersichtsartikel sind z.B. [Wal94,Suo96]; Untersuchungen für Lithium sind Inhalt von [Rit95]).
 - Für homonukleare Stöße ist die Verlustrate also zum Quadrat der Dichte proportional mit entsprechenden Ratenkoeffizienten β_{66} bzw. β_{77} .
 - Für heteronukleare Stöße ist die Verlustrate aufgrund der beiden unterschiedlichen beteiligten Stoßpartner von dem Produkt der beiden Teilchendichten abhängig mit einem entsprechenden Ratenkoeffizienten β_{67} . Ferner ist zu berücksichtigen, daß nur inelastische Stöße durch Anregung des Atoms mit längerer Übergangswellenlänge möglich sind. Nur für diese Kombination weist der langreichweitige Potentialverlauf das erforderliche attraktive Verhalten auf [Sch99].
- **Photoassoziation:**
Bei Einstrahlung eines zusätzlichen Lasers, der resonant mit einem Photoassoziationsübergang ist, können zusätzliche Verluste durch Photoassoziation auftreten.

- Homonukleare Photoassoziation findet statt, wenn der Photoassoziationslaser mit einem homonuklearen Übergang resonant ist. Die entsprechenden Koeffizienten sind mit K_{66} bzw. K_{77} bezeichnet.
- Heteronukleare Photoassoziation findet statt, wenn der Photoassoziationslaser mit einem heteronuklearen Übergang resonant ist. Der entsprechende Ratenkoeffizient lautet K_{67} .

Im Fall eines ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Gemisches können homonukleare Photoassoziationsprozesse beider Spezies mit den heteronuklearen Photoassoziationsprozessen konkurrieren. Bei einem Gemisch zweier Spezies mit sehr unterschiedlichen Übergangswellenlängen können jedoch im allgemeinen nur homonukleare Prozesse der Atomsorte mit längerer Wellenlänge mit den heteronuklearen Prozessen konkurrieren. Dies ist, analog den heteronuklearen inelastischen Stößen im Lichtfeld der MOT, in dem erforderlichen attraktiven Potentialverlauf begründet.

Unter Erwägung der verschiedenen Verlustprozesse lauten die Ratengleichungen somit:

$$\dot{N}_6 = L_6 - \alpha N_6 - \beta_{66} \int n_6 n_6 d^3 r - \beta_{67} \int n_6 n_7 d^3 r - K_{66} \int n_6 n_6 d^3 r - K_{67} \int n_6 n_7 d^3 r, \quad (2.54)$$

$$\dot{N}_7 = L_7 - \alpha N_7 - \beta_{77} \int n_7 n_7 d^3 r - \beta_{67} \int n_6 n_7 d^3 r - K_{77} \int n_7 n_7 d^3 r - K_{67} \int n_6 n_7 d^3 r. \quad (2.55)$$

Dies ist ein System von zwei gekoppelten, nicht-linearen Differentialgleichungen. Analytisch ist dieses nicht lösbar. Für eine quantitative Analyse des Photoassoziationsprozesses ist es somit erforderlich, eine vereinfachte Beschreibung zu finden.

Gleichgewichtsteilchenzahl

Eine einfache quantitative Analyse der heteronuklearen Photoassoziation in der kombinierten magnetooptischen Falle ist dann möglich, wenn es gelingt, folgende drei Anforderungen durch eine geschickte Wahl der experimentellen Parameter zu erfüllen:

1. Die ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl soll klein gegenüber der ${}^6\text{Li}$ -Teilchenzahl sein. In diesem Fall können Teilchenzahlverluste in ${}^6\text{Li}$ aufgrund heteronuklearer Photoassoziation vernachlässigt werden und die ${}^6\text{Li}$ -Wolke kann als zeitlich konstantes Hintergrundgas betrachtet werden. Bezüglich der quantitativen Beschreibung ermöglicht dies eine Entkopplung der Differentialgleichungen. Da sich der Einfluß der Photoassoziation hauptsächlich in der ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl äußert, genügt es, die ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl zu betrachten (vgl. Gl. 2.55). Für den Fall, daß der

Photoassoziationslaser resonant mit einem heteronuklearen Übergang ist, lautet diese:

$$\dot{N}_7 = L_7 - \alpha N_7 - \beta_{77} \int n_7 n_7 d^3r - \beta_{67} \int n_6 n_7 d^3r - K_{67} \int n_6 n_7 d^3r. \quad (2.56)$$

- Die optische Anregung durch das Lichtfeld der MOT-Laser und die Dichten der gespeicherten Atomwolken sollen klein sein. Dann sind die homonuklearen und heteronuklearen Verlustprozesse durch die Emission eines rotverschobenen Photons klein und die Differentialgleichung für die ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl reduziert sich zu folgender Form:

$$\dot{N}_7 = L_7 - \alpha N_7 - K_{67} \int n_6 n_7 d^3r. \quad (2.57)$$

- Die beiden MOTs sollen im temperaturlimitierten Regime [Tow95] betrieben werden. In diesem Fall sind die Dichteverteilungen durch Gaußprofile mit teilchenzahlunabhängiger Ausdehnung gegeben. Das Integral, das die Verluste durch Photoassoziation beschreibt, läßt sich somit ausführen und führt zu einem Term, in den die Maximaldichte eingeht sowie ein Faktor r , der den Überlapp zwischen den verschiedenen Gaußfunktionen beschreibt. Ist ferner die Laserintensität ortsabhängig, ist dies in dem Faktor r zusätzlich zu berücksichtigen (vgl. Kap. 7.5.2).

In diesem Zusammenhang muß in Betracht gezogen werden, daß in einer magnetooptischen Falle für Lithium beide Hyperfeingrundzustände stark besetzt sind. Ist der Photoassoziationslaser resonant mit einer bestimmten Hyperfeinkombination kann nur die Population in diesen Zuständen zum Photoassoziationssignal beitragen. Dies wird durch die Einführung eines Gewichtungsfaktors w berücksichtigt (vgl. Kap. 7.5.2). Damit nimmt obige Gleichung folgende Form an:

$$\dot{N}_7 = L_7 - \alpha N_7 - K_{67} r w n_6 N_7. \quad (2.58)$$

Erfolgt die Untersuchung im dynamischen Gleichgewicht, so ergibt sich folgender Ausdruck für die ${}^7\text{Li}$ -Gleichgewichtsteilchenzahl:

$$N_7 = \frac{L_7}{\alpha + \beta_{\text{PA}}}, \quad (2.59)$$

wobei die Photoassoziationsrate β_{PA} gemäß

$$\beta_{\text{PA}} = K_{67} r w n_6 \quad (2.60)$$

eingeführt wurde. Zum Nachweis und zur Analyse der heteronuklearen Photoassoziationsspektren genügt es also, nach sorgfältiger Wahl der experimentellen Parameter die ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl als Funktion der Verstimmung des Photoassoziationslasers zu

beobachten.

Dieser einfache Zusammenhang zwischen der Gleichgewichtsteilchenzahl und dem Ratenkoeffizienten ergibt sich infolge der Tatsache, daß der Verlustterm durch Photoassoziation eine lineare Abhängigkeit von der Dichte der betrachteten Atomsorte aufweist (vgl. Gl. 2.53). Damit ist bei der heteronuklearen Photoassoziation im Vergleich zur homonuklearen Photoassoziation prinzipiell eine durchsichtigere quantitative Analyse möglich.

3 Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau ist Inhalt dieses dritten Kapitels. Die kombinierte magnetooptische Falle zur Präparation eines Gemisches aus kalten ${}^6\text{Li}$ - und ${}^7\text{Li}$ -Atomen wird im ersten Teil beschrieben (Kap. 3.1). Das Photoassoziationspektrometer wird im zweiten Teil erklärt (Kap. 3.2).

3.1 Präparation eines kalten ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ -Gemisches

Die Erzeugung und Speicherung eines Gemisches aus kalten ${}^6\text{Li}$ - und ${}^7\text{Li}$ -Atomen erfolgt in einer kombinierten magnetooptischen Falle. Diese wird aus einem gemeinsamen Zeeman-Abbremsler geladen. Zur Generierung der verschiedenen Laserfrequenzen, die zum Kühlen, Speichern und Nachweisen der kalten Li-Atome erforderlich sind, werden für die beiden Isotope zwei unabhängige, bauähnliche Lasersysteme verwendet. Der Nachweis der gespeicherten Atome erfolgt durch isotopenselektive Absorption unter Verwendung eines phasensensitiven Nachweisverfahrens. In der Falle lassen sich bis zu 10^8 Atome jeweils eines Isotops separat speichern, bei der simultanen Speicherung treten Reduktionen in der Teilchenzahl auf.

Die verschiedenen Bestandteile der kombinierten magnetooptischen Falle werden im folgenden beschrieben (Kap. 3.1.1–Kap. 3.1.3). Dabei wird insbesondere auf die verschiedenen Anforderungen, die sich erstens durch eine Speicherung des Elements Lithium und zweitens durch eine kombinierte Speicherung beider Isotope stellen, eingegangen. Anschließend wird die simultane magnetooptische Speicherung charakterisiert (Kap. 3.1.4). Für eine detaillierte Beschreibung des Vakuumsystems und des Lasersystems sei auch auf [Sil00] verwiesen.

3.1.1 Vakuumapparatur

Als Ausgangspunkt fast aller Experimente mit kalten Atomen möchte man in einer magnetooptischen Falle atomare Ensembles mit möglichst hohen Teilchenzahlen bei kurzen Ladezeiten und gleichzeitig langen Speicherzeiten präparieren. Dabei stellt sich das folgende technische Problem: Die Gleichgewichtsteilchenzahl ist durch das Produkt aus Laderate und Ladezeit gegeben. Sie wird maximiert, wenn die Teilchendichte des zu speichernden Elements am Ort des Fallenzentrums so groß ist, daß die Ladezeit durch Stöße mit dem Gashintergrund des Elements und nicht durch Stöße mit dem Restgas in der Vakuumkammer bestimmt ist. In diesem Fall

ist die Gleichgewichtsteilchenzahl dichteunabhängig und im Wesentlichen durch das Verhältnis von Einfanggeschwindigkeit zu wahrscheinlichster Geschwindigkeit der thermischen Verteilung gegeben [Mon90]. Die Ladezeit kann dann durch Erhöhung der Teilchendichte weiter reduziert werden. Die Erzeugung eines Dampfdrucks des zu speichernden Elements, der höher als der Restgasdruck ist, ist jedoch mit dem Ziel eines guten Vakuums zur Erreichung langer Speicherzeiten nicht direkt kompatibel. Für die Lösung dieses Problems gibt es verschiedene Konzepte, die im wesentlichen alle auf einer räumlichen Trennung von Quelle und magnetooptischer Falle beruhen (siehe z. B. [Mya96, For98, Gha99, Gre01]).

Ein häufig verwendetes Konzept ist das Laden aus einem Atomstrahl in einem differentiell gepumpten Zwei-Kammer-System. In einer Ofenkammer wird in einem Ofen ein ausreichend hoher Dampfdruck erzeugt, wofür ein schlechtes Vakuum in Kauf genommen wird. Der austretende Atomstrahl wird über eine differentielle Pumpstrecke in die Experimentierkammer mit sehr gutem Vakuum geführt. Durch Unterbrechen des Atomstrahls ist die Speicherzeit der Atome nur durch das vorhandene Restgas begrenzt. Dieses Konzept bietet darüberhinaus die Möglichkeit, die Laderate und damit die erreichbare Gleichgewichtsteilchenzahl durch die Verwendung eines Zeeman-Abbremsers [Phi82, Pro85] zu erhöhen. Dieser erzeugt entlang der Strahlachse ein magnetisches Gradientenfeld. Die resultierende ortsabhängige Zeeman-Verschiebung kompensiert die geschwindigkeitsabhängige Doppler-Verschiebung auf die Weise, daß bei Einstrahlung eines dem Atomstrahl gegenläufigen, zirkular polarisierten Laserstrahls geeigneter Frequenz die Resonanzbedingung erfüllt werden kann. Somit können Atome, die eine bestimmte Geschwindigkeit nicht überschreiten, auf der Abbremsstrecke zwischen Ofenkammer und Experimentierkammer auf die Einfanggeschwindigkeit der magnetooptischen Falle abgebremst werden, und der Anteil an einfangbaren Atomen am Gesamtfluß kann erhöht werden. (Eine ausführliche Darstellung der Zeeman-Abbremsstechnik findet sich in [Eng97]).

Für Lithium bietet sich dieses Konzept an, da der Dampfdruck bei Raumtemperatur sehr gering ist. Teilchendichten, die einen effizienten Ladevorgang ermöglichen, lassen sich erst bei Temperaturen von einigen Hundert Grad erreichen. Dies legt das Laden aus einem Atomstrahl, ausgehend von einem von der Hauptkammer getrennten Ofen, nahe. Da bei den erforderlichen hohen Temperaturen und zudem bedingt durch die kleine Masse von Lithium der Anteil an einfangbaren Atomen am Gesamtfluß gering ist, ist die Verwendung eines Zeeman-Abbremsers angebracht. Ferner bietet das Konzept den Vorteil, daß die Falle kontinuierlich geladen werden kann, was sich später als entscheidend für die Durchführung der Experimente erwiesen hat.

Bei der Realisierung einer kombinierten magnetooptischen Falle für die beiden Lithiumisotope müssen neben den besonderen Eigenschaften von Lithium auch die speziellen Anforderungen an die simultane Kühlung und Speicherung beachtet werden. Als Atomstrahlquelle kann aufgrund der ähnlichen Eigenschaften der beiden Isotope ein gemeinsamer Ofen mit anschließendem Zeeman-Abbremsers verwendet

werden. Dieses Konzept wird auch in den beiden anderen Experimenten mit einem kalten ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ -Gemisch verfolgt [Sch02b, Tru01].

Eine Gesamtansicht der Vakuumanapparatur ist in Abb. 3.1 zu sehen. Die Vakuumanapparatur besteht aus einer Ofenkammer und einer Experimentierkammer, die über ein Strahlrohr miteinander verbunden sind. Dieses dient als differentielle Pumpstrecke und liegt auf der Achse des Zeeman-Abbremsers. Bei der Konzeption der Vakuumanapparatur wurde viel Wert auf einen einfachen und kompakten Aufbau gelegt. Charakteristisch für diesen Aufbau sind ein miniaturisierter Ofen und im Vakuum befindliche MOT-Spulen. Durch die Konzeption des Zeeman-Abbremsers als σ^+ -Abbremsers, dessen Magnetfeld nahtlos in das Magnetfeld der magnetooptischen Falle übergeht, kann die Gesamtlänge der Apparatur klein gehalten werden.

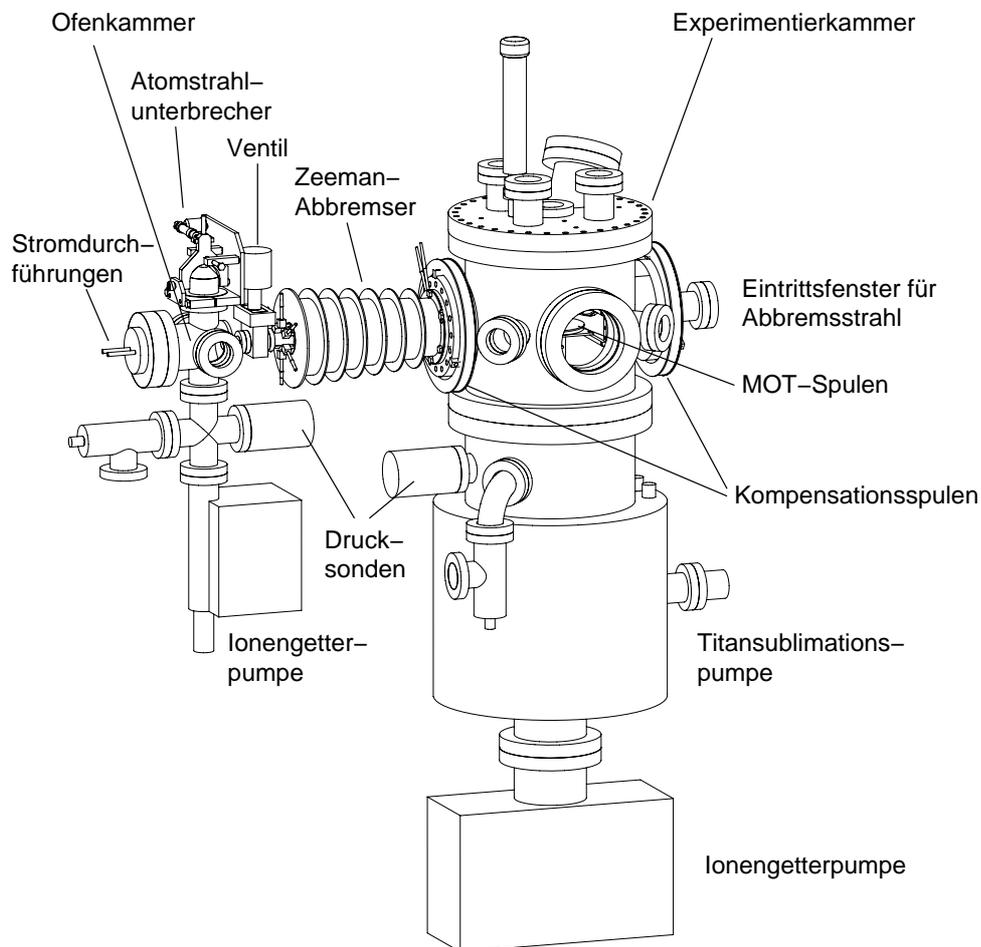


Abbildung 3.1: Gesamtansicht der Vakuumanapparatur.

Ofenkammer

Die Ofenkammer wird durch ein CF63-Rohrstück mit verschiedenen Rohransatzstücken gebildet. Der darin befindliche Ofen ist in einer einfachen und miniaturisierten Bauweise gehalten und direkt auf die beiden Stromdurchführungen des am hinteren Ende abschließenden Blindflansches montiert. Er besteht aus zwei runden Keramikheizplatten (tectra, Boralectric Heizelemente HT-02, \varnothing 19 mm), zwischen denen sich ein kurzes Stück Kupferrohr befindet. Der aus der Mittelachse verschobene zylindrische Hohlraum ist mit Lithium in natürlichem Isotopenverhältnis und isotonenreinem ${}^6\text{Li}$ zu etwa gleichen Teilen befüllt. Eine als Düse wirkende Bohrung (\varnothing 2.5 x 7 mm) dient als Austrittsöffnung für den beide Lithium-Isotope enthaltenden Atomstrahl. Aufgrund dieser kompakten Bauweise können Temperaturen im Bereich von 400–500 °C bereits mit Heizleistungen von 20 W und innerhalb von Thermalisierungszeiten von etwa 1/2 h erreicht werden.

Mit einem mechanischen Unterbrecher, realisiert durch einen druckluftgesteuerten, beweglichen Stahlstab, kann der Atomstrahl abgeblockt werden. Zwei einander gegenüberliegende, in horizontaler Richtung angebrachte Fenster ermöglichen eine genaue Fokussierung des Abbremslaserstrahls auf die Ofenöffnung. Die Ofenkammer wird mit einer Ionengetterpumpe (Diodenpumpe, Saugvermögen 25 l/s) gepumpt, die einen Druck von $3 \cdot 10^{-9}$ mbar ohne Ofenbetrieb herstellt.

Die Ofenkammer ist über ein 39 cm langes, segmentiertes Rohr mit der Experimentierkammer verbunden. Die Abmessungen der Segmente (\varnothing 4 x 105 mm, \varnothing 6 x 120 mm, \varnothing 8 x 120 mm, \varnothing 10 x 45 mm) sind bezüglich eines möglichst hohen Strömungswiderstands bei gleichzeitig ungehindertem Durchgang des Atomstrahls optimiert. Der Strömungswiderstand beträgt 19 s/l. Die Ofenkammer läßt sich mit einem vor dem Strahlrohr befindlichen, ausheizbaren Schieberventil (Caburn-MDC, Kalrez Dichtungsring) von der Experimentierkammer trennen. Dadurch ist es möglich, den Ofen zu befüllen ohne dabei die Experimentierkammer zu belüften.

Experimentierkammer

Die Experimentierkammer wird durch eine zylinderförmige UHV-Kammer ($\varnothing_{\text{innen}}$ 250 x 270 mm) gebildet, die in radialer Richtung acht Flansche verschiedener Größe besitzt. An dem zur Ofenkammer gewandten Flansch ist das Strahlrohr mit dem Zeeman-Abbremsler angeschlossen. Das gegenüberliegende Fenster dient als Eintrittsfenster für den Abbremslaserstrahl. Es besteht aus Saphir und wird mit einigen Wicklungen Heizdraht auf ca. 60 °C geheizt, um ein Bedampfen mit Lithium aus dem Atomstrahl gering zu halten. Vier antireflexbeschichtete CF40-Fenster stehen für die horizontalen MOT-Laserstrahlen zur Verfügung. Zwei CF100-Fenster, eines davon antireflexbeschichtet, bieten ausreichend optischen Zugang für die Absorptions- und Photoassoziationslaserstrahlen und eine CCD-Kamera (ippi, CP-4002). Der Kammerdeckel ist versehen mit dem Eintrittsfenster für den vertikalen MOT-Strahl, ei-

nem schrägen Beobachtungsfenster, einem Blindflansch mit Stromdurchführungen und einer höhenverstellbaren Blende.

Innenseitig ist am Kammerdeckel ein Kupfergestänge angebracht, das zur Halterung der MOT-Spulen und der Kombination aus $\lambda/2$ -Plättchen und Spiegel für den rückreflektierten vertikalen MOT-Strahl dient (vgl. Kap. 3.1.2). Unterhalb der Experimentierkammer befindet sich eine Titansublimationspumpe mit Kaltwand (Vab, eff. Saugvermögen für Stickstoff bei Kühlung mit flüssigem Stickstoff: 1200 l/s) und eine Ionengetterpumpe (Triodenpumpe, Saugvermögen 80 l/s). Nach einmaligem Ausheizen auf 180 °C herrscht in der Kammer ohne Ofenbetrieb ein Vakuum von $3 \cdot 10^{-11}$ mbar.

Magnetfeldverlauf

Der Zeeman-Abbremsers ist als σ^+ -Abbremsers konzipiert. Er besteht aus einem 35 cm langen, wassergekühlten, 11-segmentigen Solenoid. Bei den 7 äußeren Segmenten, die alle in Reihe mit einem Strom von 2.78 A durchflossen werden, wird der Magnetfeldgradient durch eine stufenweise abnehmende Wicklungszahl erzeugt. Die 4 inneren Segmente befinden sich in einem in die Hauptkammer ragenden Einsatz, um den Anschluß an das MOT-Feld zu ermöglichen, und besitzen annähernd gleiche Wicklungszahl. Hier wird das Gradientenfeld durch abnehmende Stromstärke (Maximalstrom: 3.44 A) mittels entsprechend parallelgeschalteter Widerstände erzeugt. Das Magnetfeld am vorderen Ende des Abbremsers beträgt 600 Gauss, was einer Geschwindigkeit der resonanten Atome von etwa 600 m/s entspricht.

Zur Erzeugung des Quadrupolfelds für die magnetooptische Falle dienen zwei in der Hauptkammer befindliche flache Spulen in näherungsweise Anti-Helmholtz-Konfiguration (ϕ_{innen} 4 cm, $\phi_{\text{außen}}$ 10 cm, 5 mm Höhe, 3.4 cm Abstand). Sie bestehen jeweils aus etwa 200 Wicklungen mit ausheizbarem, Kapton-isoliertem Kupferdraht. Bei einem Betrieb mit einem Strom von 0.8 A erzeugen sie ein Feld mit einem Gradienten von 8 G/cm in radialer und von 16 G/cm in axialer Richtung. Die Ströme in den beiden Spulen sind unabhängig voneinander regelbar und erlauben somit eine geringfügige Verschiebung des Feldnullpunkts.

Da das Magnetfeld des Zeeman-Abbremsers über das Zentrum der Hauptkammer hinausragt, befindet sich die Magnetfeldnull nicht im Kammerzentrum, sondern dahinter. Zur Verschiebung werden zwei Kompensationsspulen verwendet, die sich außerhalb der Kammer am Eintrittsfenster des Zeeman-Abbremsstrahls und des gegenüberliegenden Befestigungsflansches für den Zeeman-Abbremsers befinden. Bei einem Strom von 3.8 A erzeugen sie im Fallenzentrum ein homogenes Feld von etwa 13 Gauss.

3.1.2 Lasersystem

Der Betrieb der kombinierten magnetooptischen Falle erfordert Laserlicht mit insgesamt zehn verschiedenen Frequenzen im Bereich des optischen Übergangs von Lithium bei 670 nm (vgl. Abb. 3.2).

Zum magnetooptischen Einfang der Atome eines Isotops sind zunächst jeweils zwei Frequenzen erforderlich, die des Kühlübergangs und die des Rückpumpübergangs. Der Kühlübergang ist für ${}^6\text{Li}$ der Übergang $2^2S_{1/2} (F = 3/2) \rightarrow 2^2P_{3/2} (F' = 5/2)$ und für ${}^7\text{Li}$ der Übergang $2^2S_{1/2} (F = 2) \rightarrow 2^2P_{3/2} (F' = 3)$. Dieser Kühlübergang ist nicht geschlossen, da die Atome aufgrund der nicht-aufgelösten Hyperfeinstruktur des angeregten Zustands in die jeweils unteren Hyperfeinniveaus des Grundzustands ($F = 1/2$ für ${}^6\text{Li}$ und $F = 1$ für ${}^7\text{Li}$) gepumpt werden können. Dies erfordert einen etwa gleich starken Laser auf dem Rückpumpübergang $2^2S_{1/2} (F = 1/2) \rightarrow 2^2P_{3/2} (F' = 3/2)$ für ${}^6\text{Li}$ bzw. $2^2S_{1/2} (F = 1) \rightarrow 2^2P_{3/2} (F' = 2)$ für ${}^7\text{Li}$.

Für den Betrieb des Zeeman-Abbremsers werden pro Isotop je zwei weitere Frequenzen benötigt. Der Zeeman-Abbremsler ist so konzipiert, daß diese gegenüber dem entsprechenden Kühl- und Rückpumpübergang jeweils um einige 10 MHz rotverschoben sein müssen.

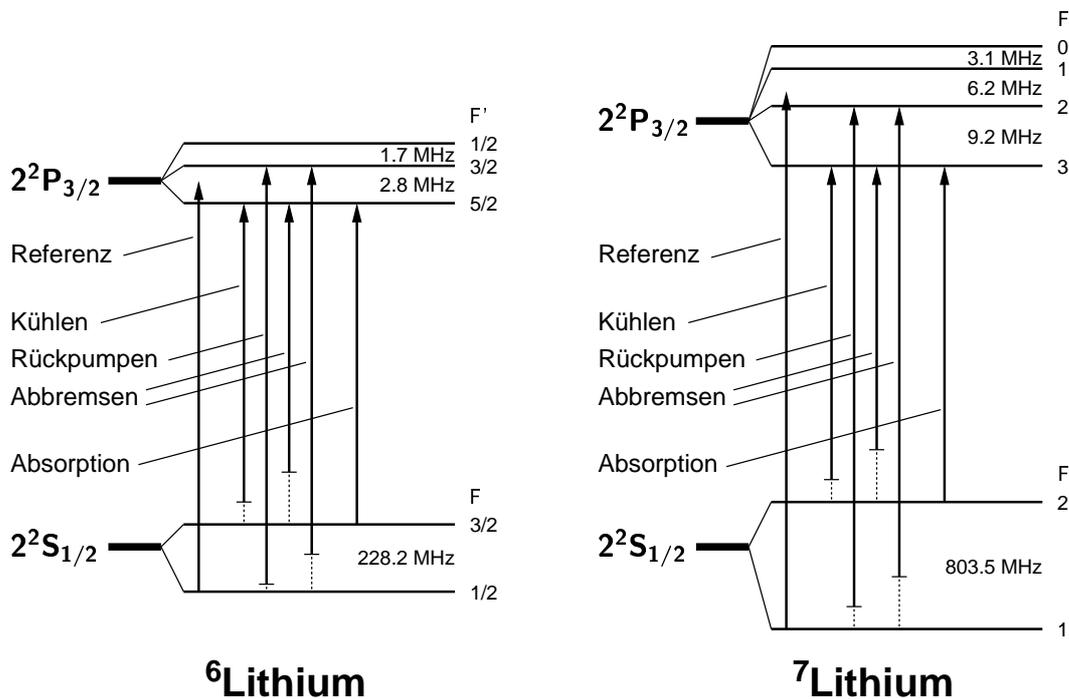


Abbildung 3.2: Erforderliche Frequenzen für die Erzeugung und Detektion eines kalten ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Gemisches in der kombinierten magnetooptischen Falle. Die gestrichelten Linien markieren jeweils die verschiedenen Verstimmungen. Eingezeichnet sind ferner die Frequenzen der beiden zur Stabilisierung verwendeten Referenzlaser.

Die Detektion der gespeicherten Atome erfolgt durch isotopenspezifische resonante Absorption auf dem Kühlübergang (vgl. Kap. 3.1.3). Dies macht jeweils eine weitere Frequenzkomponente erforderlich.

Bezüglich der Erzeugung der verschiedenen Laserfrequenzen ist zu beachten, daß sich die $D2$ -Linien der beiden Isotope um 10 GHz unterscheiden. Diese Frequenzdifferenz ist zu groß, als daß sie sich auf einfache Weise mit elektro- oder akustooptischen Modulatoren überbrücken ließe. Aus diesem Grund werden zwei separate Lasersysteme verwendet. Diese sind ausschließlich aus Diodenlasern aufgebaut, wodurch das Lasersystem kompakt und zuverlässig ist. Die beiden bauähnlichen Systeme bestehen jeweils aus einem festfrequenten Referenzlaser, einem MOT-Lasersystem und einem Absorptionslaser. Das für das Experiment benötigte Licht wird über optische Fasern auf einen zweiten optischen Tisch geleitet, auf dem die Strahlüberlagerung und -aufteilung stattfindet. Dabei können für das Licht beider Isotope die gleichen optischen Elemente verwendet werden und aufwendige Doppelbeschichtungen wie in Experimenten mit binären Mischungen unterschiedlicher Elemente sind nicht erforderlich.

Laserquellen

Eine schematische Darstellung der verwendeten Laser und deren Stabilisierung ist in Abb. 3.3 gezeigt. Die verwendeten Laserdioden sind in Tab. 3.1 zusammengestellt. Jedes der beiden Lasersysteme enthält zunächst einen Referenzlaser, der fest auf den Übergang vom unteren Hyperfeinniveau des Grundzustands ($2^2S_{1/2}$ ($F = 1/2$) für ${}^6\text{Li}$ und $2^2S_{1/2}$ ($F = 1$) für ${}^7\text{Li}$) in die Hyperfeinmannigfaltigkeit des angeregten Zu-

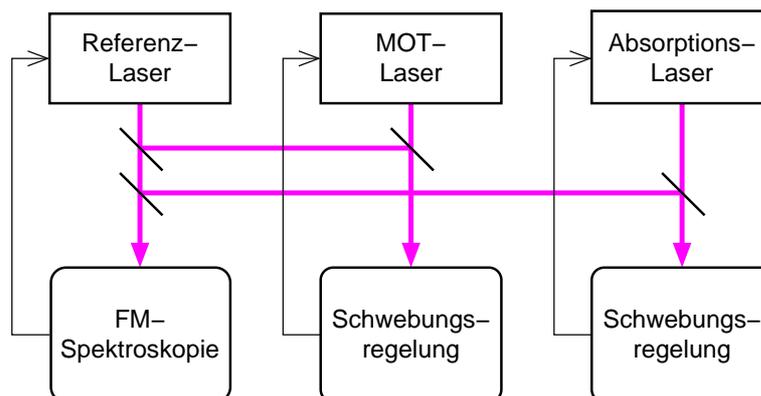


Abbildung 3.3: Laserquellen und Stabilisierungsschema. Der MOT-Laser und der Absorptionslaser sind jeweils mit einer Schwebungsregelung auf den Referenzlaser stabilisiert. Dieser ist mittels Frequenzmodulations (FM)-Spektroskopie auf eine beheizte Li-Zelle stabilisiert.

stands geregelt ist. Dazu wird jeweils ein gitterstabilisierter Diodenlaser [Ric95] eingesetzt, der nach der Methode der Frequenzmodulationsspektroskopie [Bjo83, Dre83] stabilisiert ist. Als Spektroskopiezelle dient je eine entsprechend befüllte Glaszelle (isotopenreines ${}^6\text{Li}$ bzw. natürliches Isotopengemisch für ${}^7\text{Li}$). Zur Erzeugung eines ausreichenden Dampfdrucks wird diese auf ca. $400\text{ }^\circ\text{C}$ geheizt. Von dem geregelten Laserstrahl werden schwache Teilstrahlen zur Stabilisierung der weiteren Laser abgezweigt.

Die verschiedenen Frequenzen, die zum Betrieb der magnetooptischen Falle nötig sind, werden unter Verwendung von elektro- und akustooptischen Modulatoren jeweils aus einer Laserfrequenz abgeleitet. Für diesen sogenannten MOT-Laser wird ein Breitstreifensystem verwendet, das nach der Methode der optischen Injektionsstabilisierung als Master-Slave-System [Pra98] aufgebaut ist. Der frequenzgenaue Master-Laser wird durch einen gitterstabilisierten Diodenlaser realisiert. Dieser ist mit einer Schwebungsregelung [Vul96] auf den jeweiligen Kühlübergang geregelt. Durch Verschieben des Regelpunktes ($150\text{--}330\text{ MHz}$ für ${}^6\text{Li}$, $680\text{--}950\text{ MHz}$ für ${}^7\text{Li}$) läßt sich die Verstimmung über einen Bereich von $200\text{--}300\text{ MHz}$ variieren. Die Schwebungsfrequenz wird mit einem Spektrumanalysator gemessen und erlaubt damit eine kontrollierte Einstellung der Verstimmung des Lasers gegenüber der atomaren Resonanz. Da die Leistung eines Diodenlasers zum Betrieb einer magnetooptischen Falle nicht ausreicht, erfolgt eine Nachverstärkung durch eine Breitstreifendiode mit hoher Ausgangsleistung. Um das Strahlprofil zu säubern und eine Trennung von Lasertisch und Experimentiertisch zu ermöglichen, wird der Austrittsstrahl in eine 8 m lange, polarisationserhaltende, einmodige Faser (Thorlabs, FS-PM-3021) eingekoppelt. Nach der Faser stehen $35\text{--}40\text{ mW}$ zur Verfügung. Die für das Rückpumpen und Abbremsen erforderlichen Frequenzen werden nach Faseraustritt (Auskopplung mit einem $f = 11\text{ mm}$ -Objektiv) erzeugt (vgl. nächster Abschnitt).

Die Absorption erfolgt auf dem Übergang vom oberen HFS-Grundzustand in den angeregten Zustand. Dazu wird je ein gitterstabilisierter Diodenlaser verwendet, der ebenfalls mit einer Schwebungsregelung stabilisiert ist.

Lasertyp	Hersteller, Typ	Ausgangsleistung (mW)	Freilaufwellenlänge (nm)
Referenz, ${}^6\text{Li}$	Toshiba, TOLD9225	10	668
Referenz, ${}^7\text{Li}$	Philips, CQL806/30	30	675
Master, ${}^6\text{Li}$	SDL, SDL-7311-G1	30	673
Master, ${}^7\text{Li}$	SDL, SDL-7311-G1	30	673
Slave, ${}^6\text{Li}$	Coherent, S-67-500C-100-C	500	673.6
Slave, ${}^7\text{Li}$	Coherent, S-67-500C-100-C	500	673.1
Absorption, ${}^6\text{Li}$	Philips, CQL806/20	20	670
Absorption, ${}^7\text{Li}$	Philips, CQL806/20	20	670

Tabelle 3.1: Zusammenstellung der verwendeten Laserdioden.

Frequenzkomponenten und Strahlengang

Die Erzeugung der Rückpumpfrequenzen sowie die Strahlüberlagerung und -aufteilung finden auf einem gesonderten optischen Tisch statt. Der Strahlengang ist schematisch in Abb. 3.4 dargestellt.

Für ${}^6\text{Li}$ wird die erforderliche Rückpumpfrequenz mit einem geringfügig durchstimmbaren akustooptischen Modulator (AOM, A.A Opto-electronic, AA.ST.235/B40/A0.5-vis, Trägerfrequenz 235 ± 20 MHz) erzeugt. Die eingestellte Frequenz kann sich vom Betrag der gesamten Hyperfeinaufspaltung von 231 MHz (Hyperfeinaufspaltung des Grundzustands von 228.2 MHz und Aufspaltung der angeregten Zustände $F' = 5/2$ und $F' = 3/2$ von 2.8 MHz) unterscheiden. Dann ist die Rückpumpfrequenz um einen festen Wert zusätzlich zu der durch den Kühlaser bestimmten Verstimmung gegenüber dem Rückpumpübergang verstimmt. Zur Erzielung einer guten Beugungseffizienz befindet sich der AOM im Fokus eines 1:1-Teleskops, das durch zwei Linsen mit einer Brennweite von je $f=200$ mm realisiert ist. Durch eine vorangestellte Kombination aus $\lambda/2$ -Plättchen und Polarisationsstrahlteiler (PBS) kann das Intensitätsverhältnis von Kühl- und Rückpumpstrahl variiert werden. Beide Strahlen werden mit einem 50:50-Strahlteiler in zwei Strahlen aufgespalten, die beide Frequenzkomponenten enthalten und von annähernd gleicher Intensität sind. Für ${}^7\text{Li}$ wird zur Erzeugung der Rückpumpfrequenz ein elektrooptischer Modulator (EOM, New Focus, Model 4421, Resonanzfrequenz 826 MHz) verwendet. Dieser

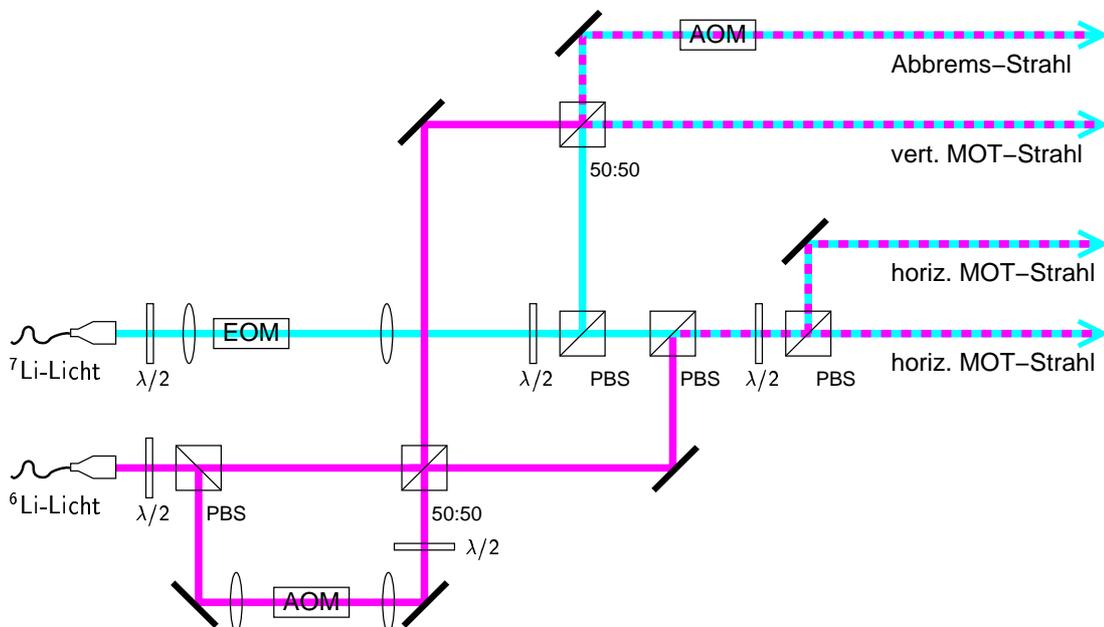


Abbildung 3.4: Strahlüberlagerung und -aufteilung nach Austritt aus den optischen Fasern.

wird bei 812.7 MHz als Summe der Hyperfeinaufspaltung des Grundzustandes von 803.5 MHz und der Aufspaltung der angeregten Zustände $F' = 2$ und $F' = 3$ von 9.2 MHz betrieben. Somit werden durch eine Änderung der Schwebungsfrequenz zwischen Kühlfrequenz und Referenzfrequenz (vgl. vorhergehender Abschnitt) der Kühlaser und der Rückpump Laser jeweils um den gleichen Betrag verstimmt. Das Intensitätsverhältnis der beiden Frequenzen kann durch die eingekoppelte Radiofrequenzleistung variiert werden. Diese beträgt 1–2 W, resultierend in einem Intensitätsverhältnis von Träger zu Seitenband von etwa 3:2. Der EOM wird möglichst weit aus dem Fokus eines langen 1:1-Teleskops, gebildet durch zwei $f = 500$ mm-Linsen, gestellt. Dadurch wird der photorefraktive Effekt [Ash66] klein gehalten. Nach dem Durchgang durch den EOM wird der Strahl mittels eines $\lambda/2$ -Plättchens und eines Polarisationsstrahlteilers variabel in zwei Teilstrahlen mit jeweils beiden Frequenzkomponenten aufgespalten.

Einer der beiden Teilstrahlen wird mittels eines 50:50-Strahlteilers mit einem der beiden ${}^6\text{Li}$ -Teilstrahlen überlagert. Von den beiden resultierenden Strahlen, die alle vier erforderlichen Frequenzkomponenten enthalten, dient einer als Abbremsstrahl, der andere als vertikaler MOT-Strahl. Für die beiden horizontalen MOT-Strahlen werden die beiden verbleibenden Teilstrahlen, die zueinander senkrechte Polarisation aufweisen, mittels eines Polarisationsstrahlteilers und nachgestellter Kombination aus $\lambda/2$ -Plättchen und Polarisationsstrahlteiler überlagert und aufgeteilt. Somit sind vier Strahlen, die jeweils die erforderlichen vier Frequenzkomponenten enthalten, generiert.

Die drei MOT-Strahlen werden jeweils mit einem 1:8-Teleskop auf einen $1/e^2$ -Durchmesser von 16 mm aufgeweitet, mittels eines $\lambda/4$ -Plättchens zirkular polarisiert und durch die Kammer gestrahlt. Nach nochmaligem Durchlaufen eines $\lambda/4$ -Plättchens werden sie in sich zurückgespiegelt, wobei sich das $\lambda/4$ -Plättchen und der Spiegel für den vertikalen Strahl in der Fallenkammer befinden.

Die verschiedenen Frequenzen des Abbremsstrahls werden durch einen AOM (IntraAction Corp., ADM-40) um 52.2 MHz rotverschoben. Mittels eines 1:6-Teleskops wird der Abbremsstrahl aufgeweitet und anschließend mit einer $f = 1000$ mm-Linse, die sich unmittelbar vor dem Kammerfenster befindet, auf die Ofenöffnung fokussiert. Ein $\lambda/4$ -Plättchen dient zur Kompensation der Doppelbrechung des Saphirfensters.

3.1.3 Detektion

Da die Wellenlängen der beiden Lithium-Isotope sehr dicht beieinanderliegen, ist bei simultaner Speicherung eine getrennte Teilchenzahlbeobachtung durch Fluoreszenzmessung nicht möglich. Stattdessen erfolgt der Nachweis durch isotopenselektive Absorption aus zwei auf den jeweiligen Kühlübergang stabilisierten Lichtfeldern. Diese Methode ist zwar aufwendiger als eine Fluoreszenzmessung, ermöglicht aber gleichzeitig eine vergleichsweise einfache Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses

durch Verwendung einer phasenempfindlichen Nachweisteknik. Das entsprechende Detektionsschema ist in Abb. 3.5 dargestellt.

Die beiden Strahlen der jeweils auf den Kühlübergang stabilisierten Absorptionslaser werden unter Verwendung einer rotierenden Schlitzscheibe mit unterschiedlichen Frequenzen ($\omega_6 = 875 \text{ Hz}$, $\omega_7 = 1050 \text{ Hz}$) unterbrochen. Anschließend werden die beiden Strahlen überlagert und mit paralleler Polarisation in eine 8 m lange, polarisationserhaltende, einmodige Faser (Thorlabs, FS-PM-3021) eingekoppelt. Der aus der Faser austretende Strahl wird mit einem $f = 4.5 \text{ mm}$ -Objektiv kollimiert und mit einem 1:10-Teleskop auf einen $1/e^2$ -Durchmesser von 6 mm aufgeweitet. Damit ist der Absorptionsstrahl groß gegenüber den gespeicherten Atomwolken (vgl. Kap. 3.1.4) und infolgedessen ist das Absorptionssignal unempfindlich gegenüber geringfügigen Fluktuationen in den Positionen der gespeicherten atomaren Ensembles. Die Leistung des Absorptionsstrahls wird für jedes Isotop auf etwa einige μW abgeschwächt.

Nach Durchgang durch die Experimentierkammer und Absorption durch die gespeicherten Atome der jeweiligen Sorte wird das Licht auf eine Photodiode (EG&G, FFD-100) fokussiert. Das detektierte Signal wird von einem vor der Absorption ab-

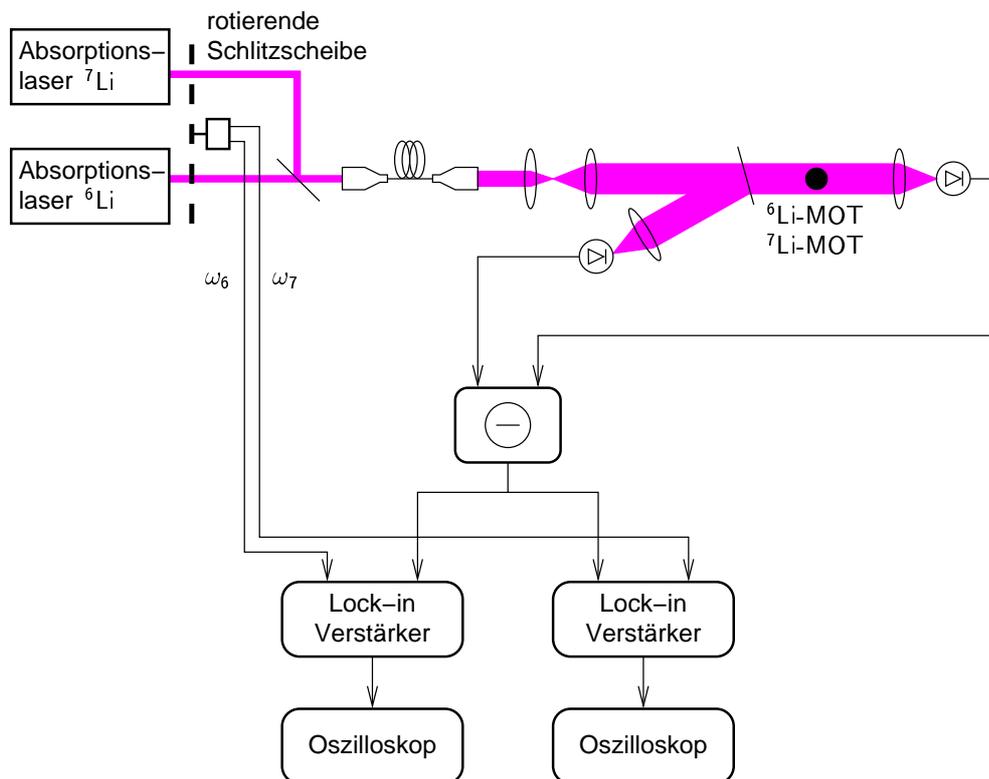


Abbildung 3.5: Detektionsschema. Der getrennte Nachweis der gespeicherten ${}^6\text{Li}$ - und ${}^7\text{Li}$ -Atome erfolgt durch isotopenselektive Absorption.

gezweigten und detektierten Teilstrahl elektronisch subtrahiert. Die Schaltung ist mit Hilfe von gegen Masse geschalteten Widerständen an den Photodioden sowie einem Potentiometer am Eingang derart eingestellt, daß im Fall von keinen gespeicherten Atomen das Signal auf Null abgeglichen ist. Damit ist das Differenzsignal unabhängig von Intensitätsschwankungen des verwendeten Lichts. Dieses abgeglichene Differenzsignal wird zusammen mit den jeweiligen Referenzfrequenzen aus der rotierenden Schlitzscheibe auf zwei getrennte phasenempfindliche Verstärker (Stanford Research Systems, SR510 Lock-in Amplifier; Ortec Brookdeal, Lock-in Amplifier 9501) gegeben. Dadurch wird aus dem Differenzsignal die jeweils isotopenspezifische Absorptionskomponente herausgefiltert und gleichzeitig unempfindlich gegenüber Änderungen im Streulicht nachgewiesen. Über die beiden Ausgangsspannungen, die digital aufgezeichnet werden, können die beiden Teilchenzahlen getrennt nachgewiesen werden.

3.1.4 Simultane Speicherung

Als Grundlage für die heteronuklearen Photoassoziationsexperimente sowie für weitere Experimente mit dem kalten ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ -Gemisch ist es wichtig, die Abhängigkeit der Teilchenzahlen von den verschiedenen experimentellen Parametern zu kennen. Da die Teilchenzahl jeweils durch das Verhältnis von Laderate zu Verlustrate bestimmt ist, bedeutet eine Optimierung der Teilchenzahl im wesentlichen eine Maximierung der Laderate und eine Minimierung der Verlustrate. Die Charakterisierung der kombinierten magnetooptischen Falle wurde in zwei Schritten durchgeführt. Zuerst wurde die Falle für die separate Speicherung jedes Isotops optimiert, mit besonderem Schwerpunkt auf ${}^7\text{Li}$. Anschließend wurde die simultane Speicherung untersucht.

Separate Speicherung

Für die Optimierung bei separater Speicherung wurde die Teilchenzahl in Abhängigkeit der verschiedenen Parameter untersucht. Dazu wurde die Fluoreszenz der gespeicherten Atome mit Hilfe einer kalibrierten, verstärkten Photodiode (EG&G, FND-100) detektiert.

Zur Optimierung hinsichtlich der Ofentemperatur wurde die Gleichgewichtsteilchenzahl als Funktion des Betriebsstroms gemessen. Dabei erwies sich ein Strom im Bereich von 2.3 A, entsprechend einer Temperatur von etwa 500 °C, als optimal. Bei niedrigeren Temperaturen ist die Gleichgewichtsteilchenzahl durch Stöße mit dem Restgas begrenzt. Bei höheren Temperaturen führen Stöße mit schnellen Atomen aus dem Atomstrahl und eine gleichzeitige Abnahme des Anteils an langsamen Atomen in der Geschwindigkeitsverteilung zu einer Teilchenzahlbegrenzung.

Die Abhängigkeit der Teilchenzahl von der Ladeverstimung wurde untersucht, in-

dem die Falle bei den verschiedenen Verstimmungen geladen wurde und anschließend die Fluoreszenz bei einer festen Referenzverstimmung von -3Γ gemessen wurde. Bei einer Ladeverstimmung von -4Γ wurden die höchsten Teilchenzahlen erzielt.

Die Aufteilung der Laserstrahlen in das Paar aus horizontalen Strahlen und in das Paar aus vertikalem Strahl und Abbremslaserstrahl (vgl. Abb. 3.4) erwies sich bei einem eingestellten Verhältnis von 2:3 als optimal. Die Einstellung des Intensitätsverhältnisses von Kühl- und Rückpumplaser und deren Relativverstimmung kann durch die Leistung und Frequenz des in den EOM eingekoppelten Radiofrequenzsignals erfolgen. Eine umfassende systematische Untersuchung war jedoch durch die lange Relaxationszeit des EOMs aufgrund des photorefraktiven Effekts nicht möglich.

Die bei diesen Parametern maximal erreichbare Teilchenzahl beträgt $5 \cdot 10^8$ Atome. Hieraus ergibt sich eine maximale Dichte von $1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, bei einem gemessenen $1/e^2$ -Durchmesser von 3.2 mm.

Bei der Maximierung der separat gespeicherten ${}^6\text{Li}$ -Teilchenzahl ergaben sich bezüglich der Ofentemperatur und der Ladeverstimmung die gleichen Werte, d. h. ein Betriebsstrom von 2.3 A und eine annähernd gleiche Ladeverstimmung des Kühl- und des Rückpumpasers von -4Γ . Dazu wurde der AOM zunächst mit einer Frequenz von 232.5 MHz betrieben. Das Intensitätsverhältnis von Kühl- zu Rückpumpfrequenz konnte durch den dem AOM vorangestellten variablen Strahlteiler auf einfache Weise verändert werden. Ein Verhältnis von etwa 3:2 stellte sich als optimal heraus.

Neben der erreichbaren Teilchenzahl ist die Speicherzeit das zweite wichtige Kriterium für die Qualität einer magnetooptischen Falle. Zu deren Bestimmung wurden

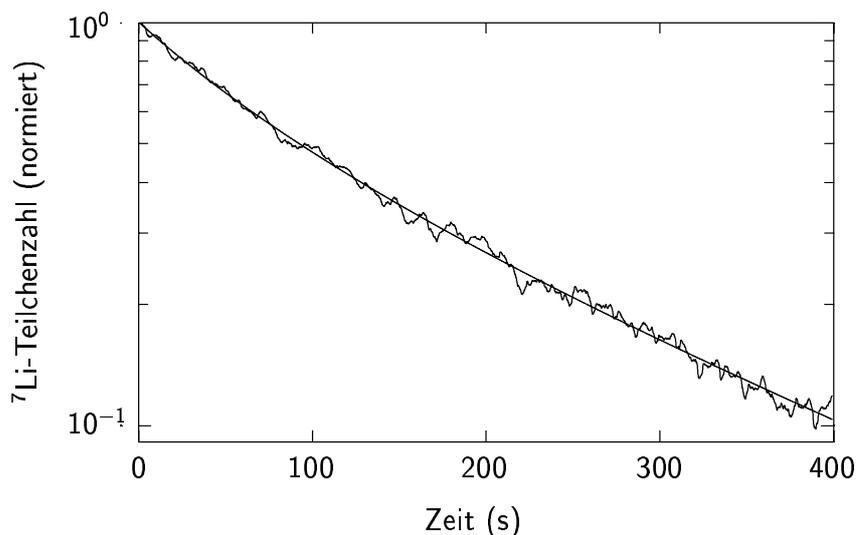


Abbildung 3.6: Zerfallskurve der ${}^7\text{Li}$ -MOT in logarithmischer Darstellung. Die Lebensdauer läßt sich als Parameter aus der angepassten Funktion (durchgezogene Linie) bestimmen. Sie beträgt 260 s.

Zerfallskurven der magnetooptisch gespeicherten Atomwolke bei kleinen Teilchenzahlen und unterbrochenem Atomstrahl aufgenommen. Durch Anpassung der Daten mit einer geeigneten Funktion [Sil00] läßt sich die Speicherzeit bestimmen. Bei einem Druck von $9 \cdot 10^{-11}$ mbar ergibt sich eine Zeit von 155 s. Durch Kühlung der Kammer mit flüssigem Stickstoff läßt sich der Druck auf $2.5 \cdot 10^{-11}$ mbar reduzieren und die Speicherzeit auf 260 s erhöhen. Die entsprechende Zerfallskurve ist in Abb. 3.6 gezeigt.

Simultane Speicherung

Bei der simultanen Speicherung muß berücksichtigt werden, daß die jeweiligen Teilchenzahlen nicht unabhängig voneinander erreichbar sind. Durch inelastische heteronukleare Stöße im Lichtfeld der MOT (vgl. Kap. 2.3.4) können zusätzliche Verlustprozesse auftreten, die die Teilchenzahlen reduzieren. Bei der simultanen Speicherung von ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ tritt ein weiterer wichtiger Aspekt hinzu: die $D2$ -Linie von ${}^6\text{Li}$ fällt annähernd mit der $D1$ -Linie von ${}^7\text{Li}$ zusammen (vgl. Abb. 2.9). Dies hat zwei Konsequenzen für die erreichbare ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl:

- Einfluß des ${}^6\text{Li}$ -Rückpumpasers auf den magnetooptischen Einfang von ${}^7\text{Li}$: Der ${}^6\text{Li}$ -Rückpumpübergang ist um 7Γ blauverstimmt gegenüber dem ${}^7\text{Li}$ - $D1$ -Übergang $F = 2 \rightarrow F' = 1$. Eine Rotverstimmung der ${}^6\text{Li}$ -Rückpumpfrequenz gegenüber dem ${}^6\text{Li}$ -Rückpumpübergang entspricht somit einer reduzierten Blauverstimmung gegenüber dem ${}^7\text{Li}$ - $D1$ -Übergang $F = 2 \rightarrow F' = 1$. Werden gespeicherte ${}^7\text{Li}$ -Atome auf diesem Übergang der $D1$ -Linie angeregt, so werden sie beschleunigt und aus der Falle geheizt.

Die beste Lösung zur Reduktion dieses störenden Einflusses wäre es, als Rückpumpübergang für die ${}^6\text{Li}$ -MOT die ${}^6\text{Li}$ - $D1$ -Linie zu verwenden, wie es im Experiment in der Gruppe von C. Salomon inzwischen realisiert wird [Sch02b]. Dies würde den Aufbau eines zusätzlichen Lasers erfordern. Für die Photoassoziationsexperimente kann jedoch zunächst auf diesen Aufwand verzichtet werden, da diese hohe Teilchenzahlen nicht voraussetzen. Dieser Effekt kann stattdessen dadurch begrenzt werden, daß für die Rückpumpfrequenz eine geringe Rotverstimmung gegenüber dem ${}^6\text{Li}$ -Rückpumpübergang, also eine möglichst große Blauverstimmung gegenüber dem ${}^7\text{Li}$ - $D1$ -Übergang, und eine geringe Intensität gewählt werden. Die Parameter wurden so eingestellt, daß die Teilchenzahl der ${}^7\text{Li}$ -MOT nicht wesentlich reduziert wurde und gleichzeitig die Teilchenzahl der ${}^6\text{Li}$ -MOT ausreichend hoch war.

- Einfluß des ${}^6\text{Li}$ -Kühlasers auf den Abbremsvorgang von ${}^7\text{Li}$: Im Magnetfeld des Zeeman-Abbremsers werden die magnetischen Unterzustände des $P_{1/2}$ -Niveaus derart aufgespalten, daß es Übergänge gibt, bei denen die entsprechenden Übergangsfrequenzen mit zunehmendem Abstand vom Fallenzentrum nicht zu- sondern abnehmen. Diese σ^- -Übergänge können durch

einen gegenüber der atomaren Resonanz blauverstimmten Laser mit entsprechender Zirkularpolarisation angeregt werden. Durch unvollständige Polarisation des Abbremsstrahls ist solch eine Anregung durch den ^6Li -Kühlaser möglich. Infolgedessen werden Atome mit kleiner Geschwindigkeit vor Eintritt in das Einfangvolumen der MOT angeregt, der Abbremsvorgang gestört und die Anzahl an speicherbaren ^7Li -Atomen reduziert.

Dieses Problem kann in zukünftigen Experimenten, bei denen ein kontinuierliches Laden nicht Voraussetzung ist, durch ein gepulstes Ladeschema, ähnlich wie in [Tru01] umgangen werden. Für die Photoassoziationsexperimente sind keine hohen ^7Li -Teilchenzahlen erforderlich, so daß sich dieser Effekt nicht als störend erweist. Durch Reduktion der Gesamtleistung des ^6Li -Lichts durch einen variablen Abschwächer vor der Fasereinkopplung kann er, allerdings unter Verminderung der ^6Li -Teilchenzahl, begrenzt werden.

Eine Verstimmung des Kühlasers von -5Γ und des Rückpumpers von -2Γ haben sich insgesamt als ideal herausgestellt. Die Reduktion der Leistung des Kühlasers auf 5 mW stellt eine gute Kompromißlösung dar.

3.2 Photoassoziationsspektrometer

Zur Induzierung des Photoassoziationsprozesses wird ein durchstimmbarer Farbstofflaser verwendet (Kap. 3.2.1). Dessen Frequenz wird unter Verwendung eines Etalons, eines Wellenlängenmeßgeräts und eines Jodspektrometers bestimmt (Kap. 3.2.2). Für die verschiedenen Experimente wird der Laserstrahl auf zwei unterschiedliche Weisen fokussiert (Kap. 3.2.3).

3.2.1 Laser

Als Photoassoziationslaser eignet sich ein weit durchstimmbarer und leistungsstarker Laser. Wir setzen einen Farbstofflaser (Coherent CR-699-21) ein. Dieser wird mit einem Festkörperlaser bei 532 nm gepumpt (Coherent, Verdi V-10, max. Leistung 10 W). Als Farbstoff wird DCM, gelöst in einer Mischung aus Benzylalkohol und Ethylenglykol, verwendet.¹ Bei einer Pumpleistung von 6 W werden Ausgangsleistungen bis zu 500 mW im Wellenlängenbereich um 670 nm erzielt.

Der Laser ist auf ein temperaturstabilisiertes Etalon frequenzstabilisiert. Mittels eines im Etalon befindlichen, galvo-betriebenen Brewsterplättchens kann der Regelpunkt in einem Bereich von 10 GHz (laut Herstellerangaben 30 GHz) durchgestimmt

¹Es wurden ferner DCM spezial und Cresyl Violett getestet. Beide haben sich jedoch als für unsere Anwendungen ungeeignet erwiesen. Erster Farbstoff emittiert bei zu niedrigen Wellenlängen, letzterer weist insgesamt eine niedrige Effizienz auf.

werden. Für das Experiment ist es essentiell, möglichst geringe, reproduzierbare Durchstimmraten zu haben. Daher erfolgt das Durchstimmen mit Hilfe eines externen digitalen Funktionsgenerators (Hewlett Packard, HP 33120A). Dieser erlaubt Sägezahnspannungen mit einer minimalen Frequenz von $100 \mu\text{Hz}$.

3.2.2 Frequenzeichung

Zur Messung der Relativfrequenz des Farbstofflasers wird ein Fabry-Perot-Etalon verwendet. Dieses ist auf den ^7Li -Referenzlaser stabilisiert, um unempfindlich gegenüber Längenänderungen durch thermische Driften zu sein. Beim Durchstimmen des Farbstofflasers erhält man Transmissionssignale im Abstand des freien Spektralbereichs (FSR) des Etalons. Damit kann beim Durchstimmen die Zeitachse in eine Frequenzachse umgerechnet werden. Im frühen Stadium des Experiments wurde ein Etalon mit einem FSR von 3 GHz eingesetzt, später wurde eines mit einem um einen

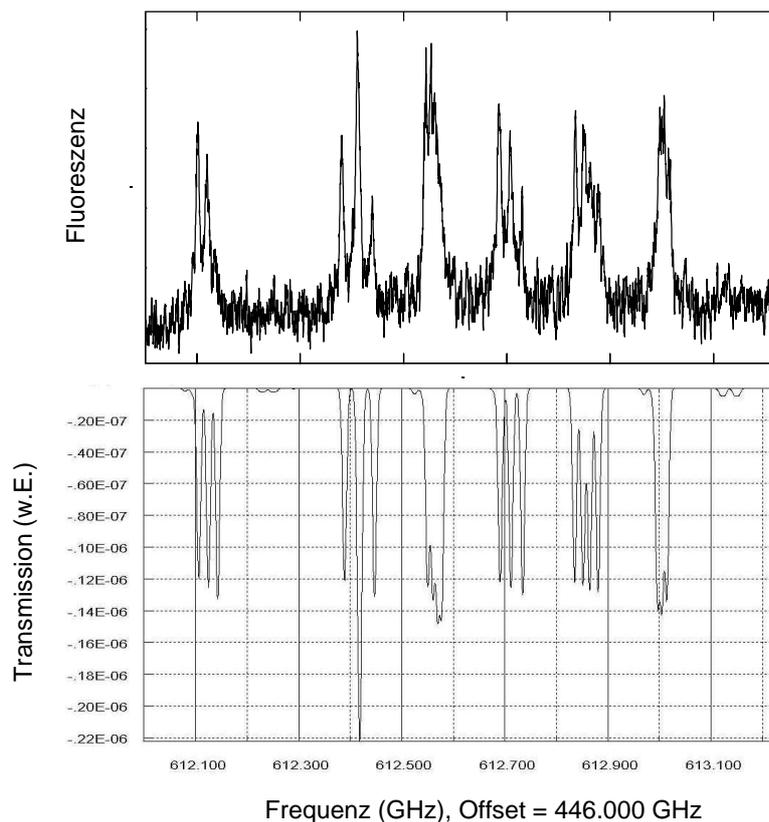


Abbildung 3.7: Vergleich von gemessenem (oben) und berechnetem (unten) Jodspektrum anhand des R_{83} -Übergangs im (4,6)-Band im Wellenlängenbereich von 671.07 nm. Das Spektrum wurde mit einer Durchstimmrate von 1.25 MHz/s und einer Leistung von ca. 5 mW aufgenommen.

Faktor 10 kleineren freien Spektralbereich verwendet. Dieser wurde durch mehrfaches Bestimmen der Schwebungsfrequenz von zwei eingekoppelten und im Abstand von Vielfachen des freien Spektralbereiches frequenzmäßig überlagerten Laserstrahlen zu 297.8 MHz bestimmt.

Für die grobe Bestimmung der Absolutfrequenz steht ein Wellenlängenmeßgerät (Burleigh Instruments, WA-1000VIS Wavemeter) zur Verfügung. Dadurch ist eine Absoluteichung mit etwa 500 MHz Genauigkeit möglich. Im späteren Stadium wurde zusätzlich ein Jodspektrometer aufgebaut. Dieses basiert auf der Methode der dopplerfreien Fluoreszenzspektroskopie [Sor72] und wird detailliert in [Deu02] beschrieben. Soweit uns bekannt ist, gelang hiermit erstmals die Beobachtung eines dopplerfreien, hyperfeinaufgelösten Jodspektrums im Bereich um 670 nm. Durch Vergleich mit dem kommerziell erhältlichen Computerprogramm IodineSpec (Topica Photonics) ist eine Bestimmung der Absolutfrequenzen der Jodlinien mit einer Genauigkeit von 10 MHz möglich. Die Genauigkeit ist dabei durch Angaben des Computerprogramms begrenzt. Die exzellente Übereinstimmung von gemessenem und berechnetem Jodspektrum wird in Abb. 3.7 anhand eines Übergangs im Wellenlängenbereich von 671.07 nm (*R83*-Übergang im (4,6)-Band) verdeutlicht.

3.2.3 Fokussierung

An die Strahlfokussierung gibt es je nach Ziel der Messung unterschiedliche Anforderungen. Für die Untersuchung der Spektren über einen weiten Verstimmungsbereich (vgl. Kap. 4–Kap. 6) ist ein moderat fokussierter Laserstrahl geeignet, um möglichst große und ungesättigte Signale zu erhalten. Für die Sättigungsmessungen (vgl. Kap. 7) hingegen ist es wichtig, möglichst stark sättigende Signale zu erzielen, weshalb ein stark fokussierter Laserstrahl verwendet wurde.

Für die Messungen ist es entscheidend, die Intensität des Photoassoziationslaserstrahls ändern zu können, ohne die Strahlage zu beeinflussen. Dies wird mittels eines Polarisationsstrahlteilers mit vorangestelltem $\lambda/2$ -Plättchen realisiert.

Moderate Fokussierung

Zur Realisierung der moderaten Fokussierung (vgl. Abb. 3.8) hat es sich experimentell als am geeignetsten erwiesen, einen gekrümmten Spiegel (Krümmungsradius $r = -3000$ mm) unter 45° einzusetzen. Mit Hilfe von polarisationsoptischen Elementen wird der Strahl insgesamt viermal durch die Kammer gespiegelt. Dazu wird der anfangs waagrecht polarisierte Strahl unter Verwendung eines hinter der Fallenkammer befindlichen $\lambda/4$ -Plättchens mit senkrechter Polarisation zurückgespiegelt, mit einem Polarisationsstrahlteiler (PBS) ausgekoppelt und anschließend wieder in sich zurückreflektiert. Um den Farbstofflaser vor Rückkopplung zu schützen, werden die Strahlen jeweils geringfügig gegeneinander verkippt und außerdem ein optischer

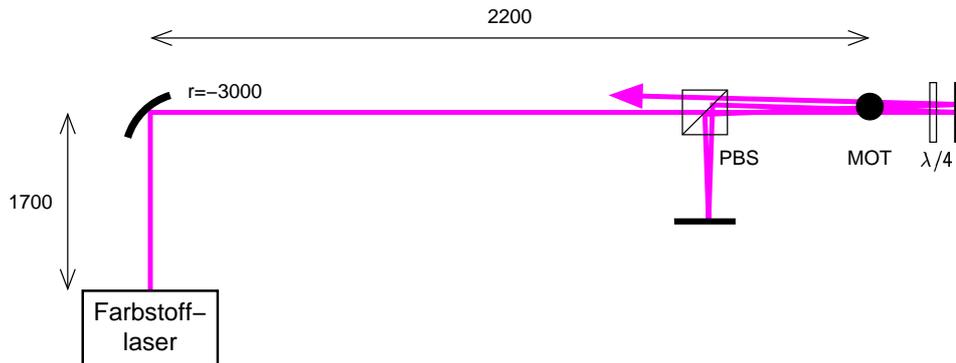


Abbildung 3.8: Moderate Fokussierung des Photoassoziationslaserstrahls. Die Position und der Krümmungsradius des zur Fokussierung verwendeten Spiegels sind ersichtlich (Angaben in mm). Ferner ist der Strahlengang für den vierfachen Durchgang durch die Fallenkammer dargestellt.

Isolator (LINOS, FR670-40dB) verwendet.

Aufgrund des Einsatzes des gekrümmten Spiegels unter einem großen Winkel ist der Strahl stark astigmatisch. Die entsprechenden $1/e^2$ -Strahldurchmesser am Ort der gespeicherten Atomwolke bei den verschiedenen Durchgängen wurden am herausgespiegelten Strahl in den entsprechenden Abständen mittels einer CCD-Kamera bestimmt. Sie betragen beim ersten Durchgang 2.70 mm in vertikaler Richtung und 1.2 mm in horizontaler Richtung und sind nach dem vierten Durchgang um etwa 40 % aufgeweitet. Aus den verschiedenen Durchmessern und der relativen Leistung nach den jeweiligen Durchgängen kann ein Kalibrierfaktor für die Intensität I berechnet werden.² Es ergibt sich:

$$I [\text{W}/\text{cm}^2] = 0.127 \text{ cm}^{-2} \cdot P [\text{mW}], \quad (3.1)$$

wobei P die gemessene Leistung vor dem ersten Durchgang ist.

Starke Fokussierung

Für die starke Fokussierung werden zwei Linsen, wie in Abb. 3.9 skizziert, verwendet. Zur Vermeidung von systematischen Fehlern durch leicht veränderte Strahljustage wird in diesem Fall der Strahl nur einmal durch die Kammer geführt. Der $1/e^2$ -Strahldurchmesser am Ort der gespeicherten Atomwolke wurde aus den Brennweiten und Positionen der verwendeten Linsen zu $300 \mu\text{m}$ berechnet. Für den konfokalen Parameter des Ausgangslaserstrahls wurde dabei ein gemessener Wert von 2000 mm

²Diese Berechnung sowie alle darauf basierenden Intensitätsangaben beziehen sich auf die Spitzenintensität.



Abbildung 3.9: Starke Fokussierung des Photoassoziationslaserstrahls. Die Brennweiten und Positionen der für die starke Fokussierung verwendeten Linsen sind in mm angegeben.

zugrundegelegt. Für die Intensität I ergibt sich:

$$I [\text{W}/\text{cm}^2] = 2.8 \text{ cm}^{-2} \cdot P [\text{mW}]. \quad (3.2)$$

Bei einer Ausgangslaserleistung von 500 mW können somit Spitzenintensitäten bis zu $1400 \text{ W}/\text{cm}^2$ erzielt werden.

4 ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Spektren

Die heteronukleare Photoassoziation von kalten ${}^6\text{Li}$ - und ${}^7\text{Li}$ -Atomen führt zu einer Reduktion in der Teilchenzahl der gespeicherten ${}^6\text{Li}$ -Atome und der gespeicherten ${}^7\text{Li}$ -Atome. Zur Detektion genügt es, die Gleichgewichtsteilchenzahl einer Spezies, hier ${}^7\text{Li}$, als Funktion der Frequenz des Photoassoziationslasers zu beobachten. Die Signatur für eine heteronukleare Photoassoziationsresonanz ist eine Reduktion in der ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl, die nur in Anwesenheit von ${}^6\text{Li}$ auftritt.

Für die Aufnahme der heteronuklearen Photoassoziationsspektren ist es von entscheidender Bedeutung, daß die experimentellen Parameter geeignet gewählt sind. Die simultane Speicherung muß möglich sein, die Spektren sollen ein gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis aufweisen, und die quantitative Beschreibung soll einfach sein. Die Wahl der experimentellen Parameter wird in Kap. 4.1 erklärt. Dieses beschreibt darüberhinaus das Verfahren zur Überlagerung der beiden Atomwolken, des Absorptionslaserstrahls und des Photoassoziationslaserstrahls. In Kap. 4.2 wird exemplarisch der experimentelle Nachweis für die heteronukleare Photoassoziation von ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ erbracht. Die Methode der massenreduzierten Quantenzahlen erlaubt nicht nur eine Zuordnung der entsprechenden Quantenzahlen, sondern auch eine Vorhersage der Positionen der Linien über einen weiten Verstimmungsbereich. Heteronukleare Photoassoziationsspektren der Singulett- und der Triplettsreihe sind über einen Bereich von etwa 3000 GHz beobachtet worden. Diese werden in Kap. 4.3 präsentiert, und die entsprechenden Linienpositionen werden tabelliert.

4.1 Meßverfahren

Wahl der experimentellen Parameter

Die Durchführung der heteronuklearen Photoassoziationsexperimente erfordert eine sehr sorgfältige Wahl der experimentellen Parameter, d.h. der Laserverstimmungen, und -intensitäten und der Ofentemperatur. Diese müssen so gewählt sein, daß folgende Anforderungen erfüllt sind:

- Der Einfluß der für die Speicherung von ${}^6\text{Li}$ erforderlichen Lichtfelder auf die Speicherung von ${}^7\text{Li}$ muß so gering sein, daß eine simultane Speicherung möglich ist. Dieser Aspekt und die Konsequenzen bezüglich Verstimmung und Intensität wurden bereits in Kap. 3.1.4 diskutiert.

- Um die quantitative Beschreibung der Meßdaten so einfach wie möglich zu halten, sind folgende Bedingungen zu erfüllen (vgl. Kap. 2.3.4):
 - Die ⁷Li-Teilchenzahl soll klein gegenüber der ⁶Li-Teilchenzahl sein.
 - Die optische Anregung durch das Lichtfeld der MOT-Laser und die Teilchendichten sollen klein sein.
 - Die beiden MOTs sollen im temperaturlimitierten Regime betrieben werden.
- Für ein gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis der Photoassoziationsspektren sind folgende Aspekte entscheidend:
 - Die ⁷Li-Teilchenzahl soll ausreichend groß gegenüber Nullpunktschwankungen im Absorptionssignal sein.
 - Die Verlustrate α_{AS} durch Stöße mit schnellen Atomen aus dem Atomstrahl soll klein gegenüber der Photoassoziationsrate β_{PA} sein, um möglichst große relative Signalhöhen zu erzielen.
 - Die Verlustrate α_{AS} durch Stöße mit schnellen Atomen aus dem Atomstrahl soll ausreichend groß sein, um experimentell realisierbare Durchstimmraten bei der Datenaufnahme zu ermöglichen.
 - Die ⁶Li-Dichte soll groß sein. Daraus resultiert eine große Photoassoziationsrate β_{PA} und damit verbunden eine große relative Signalhöhe.

Über die Verstimmungen und Intensitäten der Laser können die beiden MOTs in einem gewissen Rahmen unabhängig voneinander betrieben werden. Dabei kommen die Parameter, bei denen die simultane Speicherung am besten funktioniert, auch denen sehr nahe, bei denen die verschiedenen Anforderungen für die heteronukleare Photoassoziation am besten erfüllt werden. Die ⁷Li-Teilchenzahl wird durch den Einfluß der ⁶Li-Laser reduziert und ist kleiner als die ⁶Li-Teilchenzahl. Dieses Teilchenzahlverhältnis kann durch Abschwächen der ⁶Li-Gesamtlaserleistung geringfügig eingestellt werden. Die großen Verstimmungen der MOT-Laser begünstigen ferner eine geringe optische Anregung und geringe Dichten. Mit der Ofentemperatur wird der Teilchenfluß in dem Atomstrahl geregelt. Die resultierenden Absolutteilchenzahlen und die Verlustrate durch Stöße mit schnellen Atomen sind entscheidend für das Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Ferner hängen die Dichten und die Gewährleistung des temperaturlimitierten Regimes von den Absolutteilchenzahlen ab.

Experimentell hat sich für die diversen Photoassoziationsexperimente folgende Parameterkombination als günstig herausgestellt: die ⁷Li-MOT wurde bei einer Kühl- und Rückpumpverstimmung von -3.5Γ betrieben, bei der ⁶Li-MOT betrug die Kühllaserverstimmung -5Γ und die Rückpumplaserverstimmung -2Γ . Die Leistung des Rückpumplasers wurde typischerweise auf 3 mW reduziert. Für den Ofen erwies sich ein Betriebsstrom von 1.6 A als ausreichend. Die dazu erforderlichen niedrigen

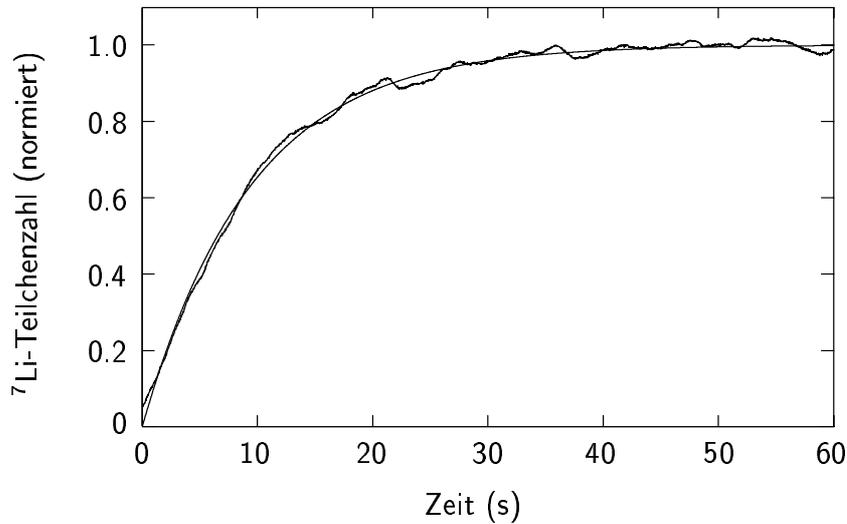


Abbildung 4.1: Ladekurve der ${}^7\text{Li}$ -MOT in Anwesenheit von ${}^6\text{Li}$. Das Ladeverhalten ist durch Stöße mit schnellen Atomen aus dem Atomstrahl mit einer Verlustrate von $\alpha_{AS}=0.11\text{ s}^{-1}$ bestimmt.

Ofentemperaturen begünstigen ferner eine lange Verwendungszeit des Lithiumvorrats. Dieser reichte für die gesamten Photoassoziationsexperimente, die über ein Jahr durchgeführt wurden.

Bei den gewählten experimentellen Parametern betrug die ${}^6\text{Li}$ -Teilchenzahl etwa das Zehnfache der ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl. Die absoluten Teilchenzahlen lagen im Bereich von 10^6 – 10^7 Atomen. Unter diesen Bedingungen liegt das temperaturlimitierte Regime vor, wie aus [Sch98b] folgt. Die Tatsache, daß die optische Anregung und die Dichte der gespeicherten ${}^7\text{Li}$ -Atomwolke ausreichend klein sind, so daß homonukleare Verlustprozesse durch die Emission eines rotverschobenen Photons vernachlässigbar sind, wurde durch die Aufnahme von Ladekurven überprüft. In Abb. 4.1 ist eine exemplarische Kurve dargestellt. Sie wird durch die Anpassung mit einer Funktion, die ein exponentielles Verhalten zugrundeliegt, exzellent beschrieben. Daraus läßt sich schließen, daß oben genannte Prozesse, die nicht zu einer derartigen Zeitabhängigkeit führen würden, vernachlässigbar sind. Ferner läßt sich aus der Anpassungsfunktion die Ladezeit bestimmen. Diese beträgt 9.0 s, was einer Verlustrate von 0.11 s^{-1} gleichkommt. Dieser Wert entspricht der Verlustrate α_{AS} durch Stöße mit schnellen Atomen aus dem Atomstrahl, wenn man davon ausgeht, daß heteronukleare Verlustprozesse durch die Emission eines rotverschobenen Photons nicht auftreten. Diese Größe ist von zentraler Bedeutung für die quantitative Interpretation der Photoassoziationsspektren.

Überlagerung

Für die Durchführung der Experimente ist eine gute Überlagerung der beiden Atomwolken, des Absorptionslaserstrahls und des Photoassoziationslaserstrahls entscheidend. Die Atomwolken werden dazu stereoskopisch durch das im Kammerdeckel schräg eingebaute Fenster und mittels der Kamera, die an einem horizontalen Kammerfenster befestigt ist, beobachtet.

Die Güte der Überlagerung der beiden Atomwolken ist in erster Linie durch eine gute Überlagerung der MOT-Laserstrahlen bestimmt. Dabei erwiesen sich Inhomogenitäten im Strahlprofil des Lichts zum Betrieb der ${}^7\text{Li}$ -MOT aufgrund des photorefraktiven Effekts des EOMs als kritisch. Die resultierenden Verschiebungen der Atomwolken gegeneinander werden durch Korrekturen in der Strahlüberlagerung und durch Verkippen der MOT-Laserstrahlen ausgeglichen.

Zur zusätzlichen Überlagerung des Absorptionslaserstrahls wird dieser abgeschwächt im Bereich des Absorptionsübergangs durchgestimmt. Im Fall einer guten Überlagerung von MOT und Absorptionslaserstrahl werden die Atome durch den Strahlungsdruck aus der Falle geheizt.

Der Farbstofflaserstrahl wird bei der schwachen Fokussierung (vgl. Kap. 3.2.3) nach einer entsprechenden Methode überlagert. Dazu wird er abgeschwächt und im Bereich der ${}^7\text{Li}$ - D_2 -Resonanz durchgestimmt. Anschließend werden die mehrfach reflektierten Strahlen diesem Strahl überlagert. Zur Überlagerung bei der starken Fokussierung kann man sich die Lichtverschiebung zunutze machen. Die Intensitäten sind ausreichend stark, um auch bei einer Verstimmung von einigen GHz gegenüber der atomaren Resonanz eine Lichtverschiebung im Bereich von einigen MHz zu induzieren. Dadurch geraten die gespeicherten Atome im Bereich des Fokus des Farbstofflaserstrahls je nach dessen Verstimmung stärker in oder aus der Resonanz und es entsteht ein heller oder dunkler Bereich in der gespeicherten Atomwolke. Befindet sich dieser im Zentrum der Atomwolke, ist eine gute Überlagerung gewährleistet.

Datenaufnahme

In Abb. 4.2 ist das Prinzip der Datenaufnahme schematisch dargestellt. Die beiden Spezies ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ werden in der kombinierten magnetooptischen Falle simultan im dynamischen Gleichgewicht gespeichert. Die experimentellen Parameter sind so gewählt, daß die verschiedenen Anforderungen bezüglich der simultanen Speicherung, eines guten Signal-zu-Rausch-Verhältnisses und einer einfachen quantitativen Beschreibung erfüllt sind. Die Detektion der ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl erfolgt durch Absorption aus einem schwachen resonanten Laserstrahl. Zur Aufnahme eines Photoassoziationsspektrums wird die ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl in Abhängigkeit von der Frequenz des eingestrahlten Photoassoziationslasers aufgezeichnet. Heteronukleare Photoassoziationsresonanzen äußern sich in einer Reduktion in der ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl, die nur in Anwesenheit von ${}^6\text{Li}$ auftritt. Die Kalibrierung der Frequenzachse erfolgt mit Hilfe

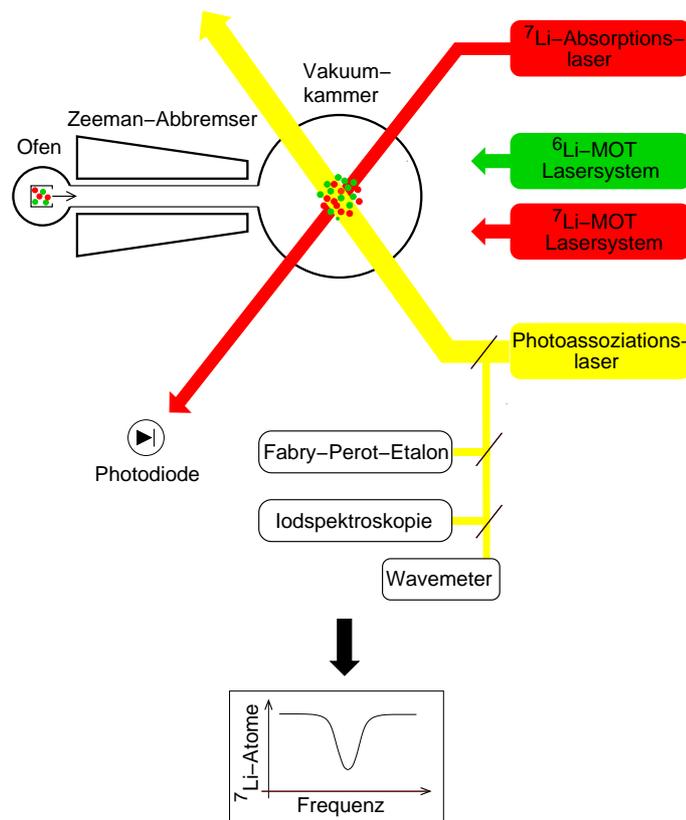


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung der Datenaufnahme.

der gleichzeitig aufgenommenen Transmissionssignale des Etalons oder der Jodspektroskopie. Zur Grobeinstellung der Frequenz dient ein Wellenlängenmeßgerät.

4.2 Nachweis der heteronuklearen Photoassoziation

In Abb. 4.3 ist die ${}^7\text{Li}$ -Gleichgewichtsteilchenzahl als Funktion der Frequenz des Photoassoziationslasers dargestellt, und zwar einmal in Abwesenheit von ${}^6\text{Li}$ (oberes Bild) und einmal in Anwesenheit von ${}^6\text{Li}$ (unteres Bild). Abgebildet ist jeweils der gleiche Frequenzbereich mit einer Rotverstimmung von -179 GHz bis -171 GHz relativ zur $D1$ -Linie von ${}^6\text{Li}$.¹ Der Photoassoziationslaser wurde mit einer Rate von 10 MHz/s durchgestimmt. Die Transmissionssignale des 3-GHz-Etalons dienen zur Kalibrierung der Frequenzachse. Die Gleichgewichtsteilchenzahl ohne Einfluß des Photoassoziationslasers ist jeweils auf 100% normiert.

Im ersten Fall, bei dem nur ${}^7\text{Li}$ -Atome gespeichert sind, tritt eine deutliche Abnahme in der ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl in einem Verstimmungsbereich um -172.5 GHz auf. Diese

¹Im Folgenden ist die Verstimmung des Photoassoziationslasers immer relativ zur $D1$ -Linie von ${}^6\text{Li}$ angegeben.

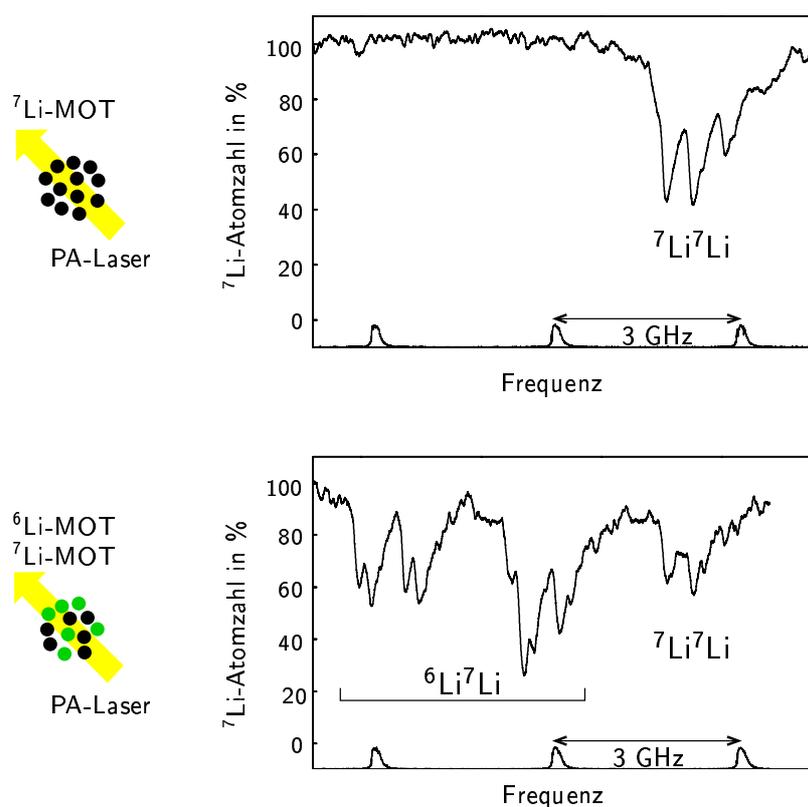


Abbildung 4.3: ${}^7\text{Li}$ -Gleichgewichtsteilchenzahl als Funktion der Frequenz des Photoassoziationslasers für einen Verstimmungsbereich von -179 GHz bis -171 GHz. Zwei verschiedene Situationen sind dargestellt: das Spektrum im oberen Bild wurde in Abwesenheit von ${}^6\text{Li}$ aufgenommen, das Spektrum im unteren Bild in Anwesenheit von ${}^6\text{Li}$. Die in letzterem Fall auftretenden zusätzlichen Resonanzen sind eine eindeutige Signatur für die Photoassoziation von ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$.

ist auf eine homonukleare Photoassoziationsresonanz von ${}^7\text{Li}$ zurückzuführen, die als Übergang in das Triplett-niveau $v_T = 78$ identifiziert werden kann [Abr95b]. Im zweiten Fall, bei dem ${}^6\text{Li}$ - und ${}^7\text{Li}$ -Atome gespeichert sind, ist eine zusätzliche Reduktion in der ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl im Verstimmungsbereich von -178 bis -174 GHz sichtbar. Diese Abnahme in der ${}^7\text{Li}$ -Teilchenzahl tritt nur in Anwesenheit von ${}^6\text{Li}$ auf und ist damit eine eindeutige Signatur für eine heteronukleare ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Photoassoziationsresonanz.

Das heteronukleare Signal scheint doppelt so breit wie das homonukleare zu sein. Dies ist darauf zurückzuführen, daß es sich tatsächlich um zwei Übergänge handelt, und zwar um einen der Singulettserie und einen der Triplettserie, die in diesem Verstimmungsbereich wenig separiert sind. Im weiteren Fortgang des Experiments konnte die Resonanz bei größerer Verstimmung als Singulettresonanz mit der Vibrationsquantenzahl $v_S = 83$ und die Resonanz bei kleinerer Verstimmung als Triplettresonanz mit der Vibrationsquantenzahl $v_T = 75$ identifiziert werden.

4.3 Singulett- und Triplettserien

Anwendung der Methode der massenreduzierten Quantenzahlen

Für die Zuordnung der Vibrationsquantenzahlen und die Vorhersage der absoluten Lage der Vibrationslinien des Singulett- und des Triplettspektrums kann man sich die Methode der massenreduzierten Quantenzahlen zunutze machen (vgl. Kap. 2.3.3). Die mittels dieser Methode für das heteronukleare Isotopomer ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ berechneten Abstände zwischen benachbarten Vibrationsniveaus sind in Tab. 4.1 aufgelistet.

Die Bezifferung mit Quantenzahlen sowie die Identifizierung der Singulett- und der Triplettserie gelang nun folgendermaßen: das erste heteronukleare Photoassoziationssignal wurde in einem Verstimmungsbereich um -86 GHz beobachtet, in dem die beiden Serien sehr dicht beieinander zu liegen schienen (vgl. Abb. 4.4). Der Bereich zunehmender Rotverstimmung wurde kontinuierlich durchfahren und im Bereich von -110 GHz wurden zwei weitere Linien gefunden. Diese schienen etwas stärker voneinander separiert zu sein. Aus dem Relativabstand von ca. 24 GHz konnte auf das jeweils mögliche Paar von Vibrationsquantenzahlen der beiden Serien geschlossen werden, und zwar auf $v_S = 85$ bzw. $v_S = 86$ und auf $v_T = 77$ bzw. $v_T = 78$. Die Tatsache, daß für die Singulettserie etwas größere Relativabstände als für die Triplettserie vorausgesagt waren, legte eine Zuordnung des Linienpaares mit größerem Abstand zur Singulettserie und des Paares mit kleinerem Abstand zur Triplettserie nahe. Die richtige Zuordnung der Linien zu den entsprechenden Serien wurde später durch die Hyperfeinstruktur bestätigt (vgl. Kap. 5).

Eine Vorhersage der absoluten Lage der Vibrationslinien des Singulett- und des Triplettspektrums war nun unter Kenntnis der absoluten Lage und der entsprechenden Vibrationsquantenzahl je einer Linie des Spektrums und der berechneten Relativabstände möglich. Das Singulettpektrum konnte über einen Verstimmungsbereich von 4000 GHz direkt berechnet werden, das Triplettspektrum über einen Verstimmungsbereich von 2500 GHz.

Gesamtübersicht

Die Vorhersage der Lage der verschiedenen heteronuklearen Photoassoziationsresonanzen erleichtert die Datenaufnahme erheblich. Dadurch ist es zur Aufnahme eines Gesamtspektrums nicht erforderlich, den Photoassoziationslaser über den gesamten Verstimmungsbereich durchzustimmen. Dies würde bei einer minimalen Durchstimmrate von 20 MHz/s eine reine Datenaufnahmezeit von etwa 40 Stunden für ein Gesamtspektrum von 3000 GHz bedeuten. Stattdessen ist es ausreichend, jeweils einen Bereich von einigen GHz um die vorhergesagte Linienposition zu untersuchen. Eine Gesamtübersicht über alle beobachteten Linien ist in Abb. 4.4 und Abb. 4.5 dargestellt. In Abb. 4.4 sind jeweils Ausschnitte von 10 GHz gezeigt. Für den dargestellten Bereich kleiner Verstimmungen des Photoassoziationslasers wurde zusätzlich

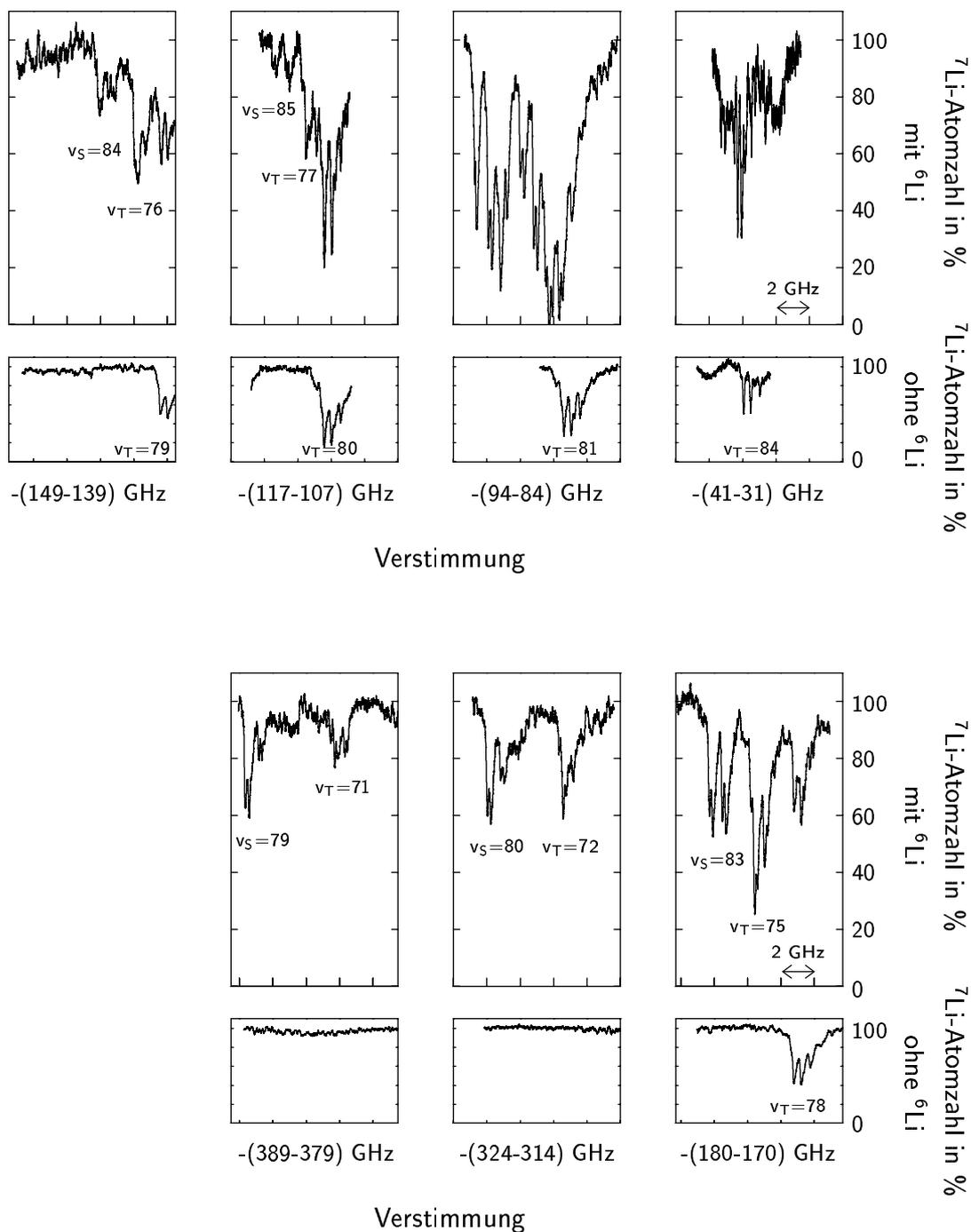


Abbildung 4.4: Übersicht über die beobachteten ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Photoassoziationsresonanzen im Verstimmungsbereich von -31 GHz bis -389 GHz. Abgebildet sind jeweils Ausschnitte von 10 GHz. Zur eindeutigen Identifikation der heteronuklearen Resonanzen wurde jeweils ein ${}^7\text{Li}$ -Vergleichsspektrum in Abwesenheit von ${}^6\text{Li}$ aufgenommen.

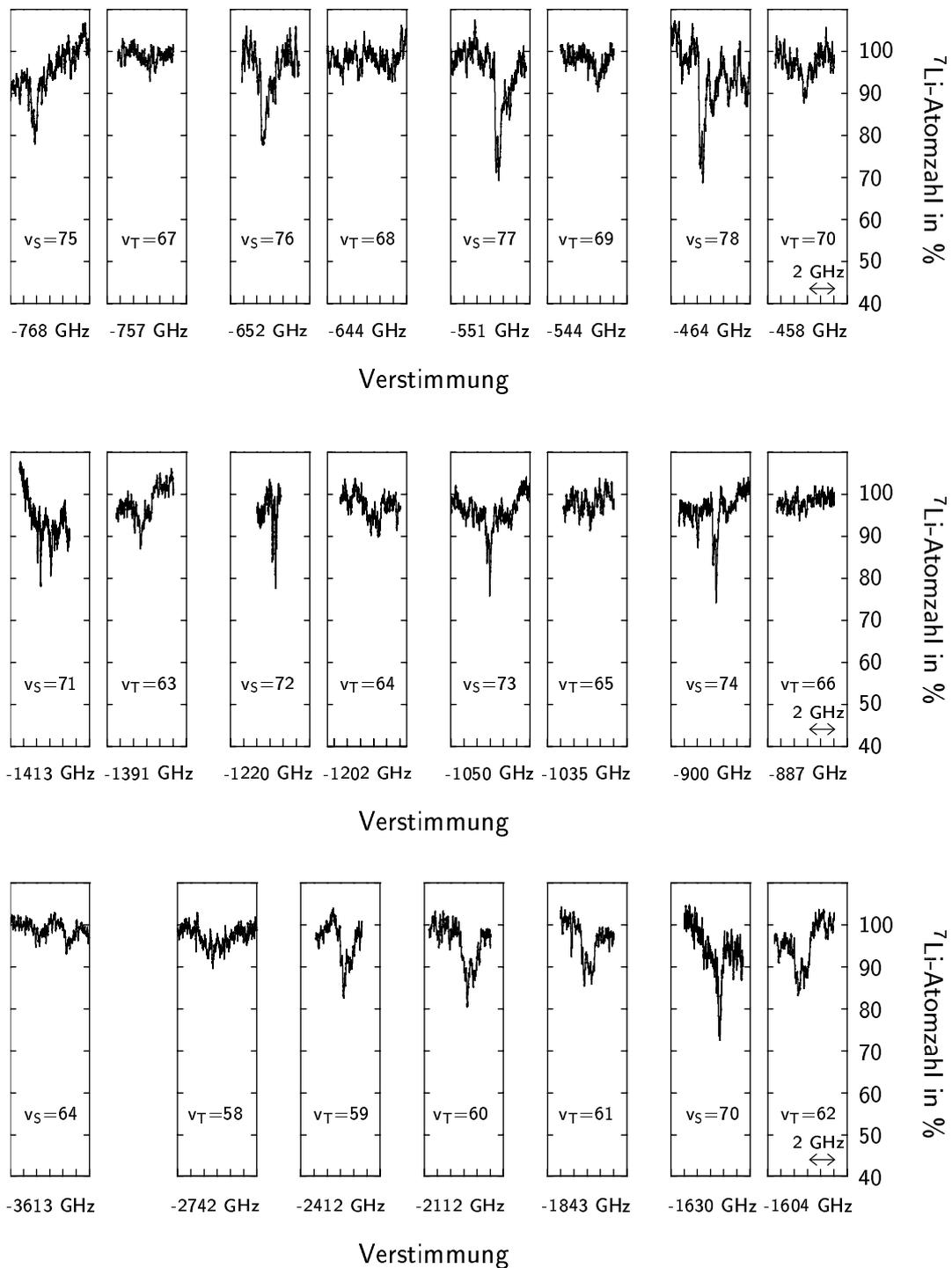


Abbildung 4.5: Übersicht über die beobachteten ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Photoassoziationsresonanzen im Verstimmungsbereich von -458 GHz bis -3613 GHz. Abgebildet sind jeweils Ausschnitte von 6 GHz, mit Ausnahme des Spektrums $v_S=64$.

jeweils ein ${}^7\text{Li}$ -Vergleichsspektrum aufgenommen, um die eindeutige Identifikation der heteronuklearen Resonanzen zu ermöglichen. In Abb. 4.5 sind jeweils Ausschnitte von 6 GHz präsentiert. Eine Ausnahme stellt das letzte Bild dar, bei dem der Frequenzbereich 600 MHz beträgt. Die Daten wurden an verschiedenen Meßtagen innerhalb von insgesamt 10 Monaten aufgenommen. Für den Photoassoziationslaser war bis auf die Messung im Bereich von -41 GHz bis -31 GHz immer die schwache Fokussierung gewählt, die Durchstimmraten lagen im Bereich von 1.8 bis 20 MHz/s. Dadurch und durch geringfügig unterschiedliche experimentelle Bedingungen (Laserleistung, Justage) an den verschiedenen Meßtagen treten Schwankungen in den Gleichgewichtsteilchenzahlen ohne Photoassoziationslaser sowie in den Photoassoziationssignalen auf. In der Übersicht ist die ${}^7\text{Li}$ -Gleichgewichtsteilchenzahl ohne Photoassoziationslaser jeweils auf 100 % normiert. Somit macht diese Darstellung keine Aussage über die relativen Signalhöhen.

Für die Singulettserie konnten Linien im Bereich von -38 GHz bis -1630 GHz, entsprechend den Vibrationsquantenzahlen $v_S = 89$ bis $v_S = 70$, beobachtet werden, ferner die Linie $v_S = 64$ bei der extrem großen Verstimmung von -3613 GHz. Für die Triplettsreihe wurden Linien im Bereich von -38 GHz bis -2749 GHz, entsprechend den Vibrationsquantenzahlen $v_T = 81$ bis $v_T = 58$, aufgenommen. Im Laufe des Experiments erwies sich die Übereinstimmung von vorhergesagter und gemessener Linienposition als exzellent. Die Werte stimmen innerhalb von etwa 1 GHz über das gesamte Spektrum überein. Aus diesem Grund wurde darauf verzichtet, alle vorhergesagten Linien experimentell zu bestätigen.

Die Messung der Linienpositionen ist durch die Genauigkeit des Wellenlängenmeßgeräts von 500 MHz und durch die Ablesegenauigkeit bei der Bestimmung der Linienmitte begrenzt. Zu dem Zeitpunkt der Aufnahme des Großteils der Daten stand das wesentlich genauere Jodspektrometer noch nicht zur Verfügung. Eine halbexperimentelle Bestimmung der Linienpositionen mittels einer genau vermessenen Linie und der durch Massenskalierung berechneten Relativabstände erscheint jedoch prinzipiell genauer. Für die Singulettserie konnte die Absolutfrequenz der Resonanz $v_S = 83$ im weiteren Fortgang der Experimente durch Messung gegen ein Jodvergleichsspektrum auf 20 MHz genau bestimmt werden (vgl. Kap. 5). Die verschiedenen Singulettlinien könnten also relativ zu dieser Linie mit der durch die Massenskalierung begrenzten Genauigkeit von etwa 150 MHz (vgl. Kap. 2.3.3) angegeben werden. Für experimentelle Zwecke ist wiederum eine Angabe der Linienpositionen relativ zum atomaren $D1$ -Übergang von ${}^6\text{Li}$ praktischer. Dieser ist jedoch bislang nur mit einer Genauigkeit von 0.001 nm, entsprechend 660 MHz, bekannt. Unter der Annahme eines exakten Wertes von 679.977 nm für die $D2$ -Linie entspricht die Lage der $v_S = 83$ -Resonanz einer Verstimmung von -177.0 GHz. Die übrigen Singulettlinien werden relativ zu der $v_S = 83$ -Resonanz berechnet. Für das Triplettspektrum ist keine am Jodspektrum geeichte Linie vorhanden. Aus diesem Grund wurde ein für das $v_T = 75$ -Niveau abgelesener Verstimmungswert von -175.0 GHz als fester Referenzwert eingesetzt und die weiteren Linien relativ dazu berechnet. Die resul-

tierenden Werte sind in Tab. 4.1 angegeben.

Singulett			Triplet		
v_S	Verstimmung (GHz)	Abstand (GHz)	v_T	Verstimmung (GHz)	Abstand (GHz)
63	4088.4	475.15	58	2741.9	329.57
64	3613.3	427.78	59	2412.3	300.61
65	3185.5	384.04	60	2111.7	268.28
66	2801.5	344.15	61	1843.4	239.42
67	2457.3	307.81	62	1603.9	213.05
68	2149.5	274.72	63	1390.9	189.03
69	1874.8	244.61	64	1201.9	167.24
70	1630.2	217.35	65	1034.7	147.51
71	1412.8	192.57	66	887.2	129.76
72	1220.3	170.22	67	757.4	113.70
73	1050.0	149.91	68	643.7	99.29
74	900.1	131.93	69	544.4	86.40
75	768.2	116.22	70	458.0	74.89
76	652.0	100.71	71	383.1	64.64
77	551.3	87.62	72	318.5	55.54
78	463.7	75.89	73	262.9	47.51
79	387.8	65.49	74	215.4	40.41
80	322.3	56.22	75	175.0	34.21
81	266.1	48.10	76	140.8	28.72
82	218.0	40.96	77	112.1	24.14
83	177.0	34.61	78	87.9	20.04
84	142.4	29.16	79	67.9	16.46
85	113.2	24.34	80	51.4	13.45
86	88.9	20.21	81	38.0	10.92
87	68.7	16.65	82	27.1	8.71
88	52.0	13.59	83	18.3	6.83
89	38.4	10.95	84	11.5	5.23
90	27.5	8.71	85	6.3	3.84
91	18.8	6.81	86	2.4	
92	12.0	5.18			
93	6.8				

Tabelle 4.1: Lage und Abstände der Vibrationsniveaus der Singulett- und der Tripletserie. Die (negative) Verstimmung ist relativ zur $D1$ -Linie von ${}^6\text{Li}$ angegeben.

5 Hyperfeinaufgelöste Spektren

Die Photoassoziation stellt eine höchstauflösende Spektroskopiemethode dar. Die Auflösung ist im allgemeinen nur durch die natürliche Linienbreite der angeregten Niveaus begrenzt. In den hochaufgelösten Spektren kann die Hyperfeinstruktur des angeregten Molekülzustands sichtbar werden. Ebenso können Übergänge in verschiedene Rotationsniveaus beobachtet werden, die auf verschiedene Partialwellenbeiträge der Grundzustandswellenfunktion zurückzuführen sind. Mit Hilfe der Photoassoziationsspektroskopie lassen sich somit präzise Informationen über den angeregten Zustand erhalten, wie z. B. Kopplungskonstanten oder Rotationskonstanten [Abr96b, Rat94, Wan98b]. In diesem Zusammenhang ist das Molekül ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ von besonderem Interesse, da die Hyperfeinstruktur durch den heteronuklearen Charakter geprägt sein sollte [Li02].

Dieses Kapitel beginnt mit einer kurzen Einführung in die zu erwartende Struktur der hyperfeinaufgelösten Spektren (Kap. 5.1). Anschließend werden hyperfeinaufgelöste Spektren der Singulettserie (Kap. 5.2) und der Triplettserie (Kap. 5.3) präsentiert und diskutiert.

5.1 Vorbetrachtung

Zur Klärung der Struktur der hyperfeinaufgelösten Photoassoziationsspektren muß sowohl die Aufspaltung des asymptotischen Grundzustands als auch die Aufspaltung des angeregten Zustands betrachtet werden.

Grundzustand

Bezüglich der Grundzustandsasymptote muß beachtet werden, daß der atomare Grundzustand von ${}^6\text{Li}$ und von ${}^7\text{Li}$ jeweils hyperfeinaufgespalten ist. Für ${}^6\text{Li}$ ist der $S_{1/2}$ -Zustand aufgespalten in die beiden Niveaus $f_6 = 1/2$ und $f_6 = 3/2$ mit einer Aufspaltungsenergie von 228.5 MHz, für ${}^7\text{Li}$ gibt es die beiden Niveaus $f_7 = 1$ und $f_7 = 2$ mit einer Aufspaltungsenergie von 803.5 MHz (vgl. Abb. 2.9).¹ Diese Hyperfeinzustände lassen sich zu vier verschiedenen heteronuklearen Grundzustandsasymptoten kombinieren: $1/2 + 1$, $3/2 + 1$, $1/2 + 2$, $3/2 + 2$, in der Darstellung $f_6 + f_7$. Die verschiedenen Hyperfeinaufspaltungsenergien der einzelnen Atome spiegeln sich in

¹Zur Unterscheidung werden hier atomare Quantenzahlen mit Kleinbuchstaben und molekulare Quantenzahlen mit Großbuchstaben bezeichnet.

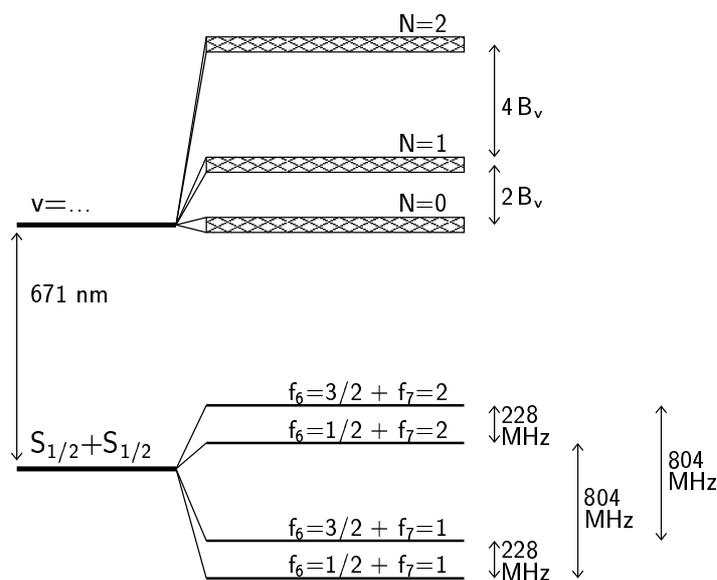


Abbildung 5.1: Aufspaltung der Grundzustandsasymptote $S_{1/2} + S_{1/2}$ in vier Hyperfeinasymptoten und Aufspaltung des angeregten Vibrationsniveaus in verschiedene Rotationsniveaus N . Die Hyperfeinstruktur des angeregten Zustands ist nicht eingezeichnet.

der Energieaufspaltung der vier Asymptoten wider, wie Abb. 5.1 verdeutlicht. Bei dieser Beschreibung geht man davon aus, daß ohne Magnetfeld die magnetischen Unterzustände der verschiedenen atomaren Hyperfeinzustände f_i sowie des Bahndrehimpulses \vec{l} der Relativbewegung entartet sind. Für eine umfassendere Behandlung der Eintrittskanäle, auch unter Berücksichtigung der Kopplung der atomaren Drehimpulse und des Bahndrehimpulses der Relativbewegung, siehe z. B. [Jul02b].

Angeregter Zustand

Die Struktur des angeregten Zustands ist durch die Rotationsstruktur und die Hyperfeinstruktur geprägt.

Es sei ein angeregtes Vibrationsniveau v mit dem Drehimpuls \vec{J} der Kernrotation², dem Gesamtbahndrehimpuls \vec{L} der Elektronen und dem Gesamtelektronenspin \vec{S} betrachtet. Für Lithium als leichtes Molekül ist eine Kopplung des Gesamtelektronenspins \vec{S} an den Gesamtbahndrehimpuls \vec{L} vernachlässigbar. Aus diesem Grund ist eine Beschreibung nach dem Hundschen Kopplungsfall (b) [Her50] adäquat.

Zunächst koppeln die Projektion des Gesamtbahndrehimpulses \vec{L} auf die internukleare Achse, Λ , und der Drehimpuls \vec{J} der Kernrotation zu einem resultierenden Drehimpuls \vec{N} . Es ergeben sich verschiedene Rotationsniveaus N . Für den speziel-

²In der Literatur wird in diesem Zusammenhang der Drehimpuls der Kernrotation üblicherweise mit \vec{O} oder \vec{N} bezeichnet.

len Fall von Σ -Zuständen ($\Lambda = 0$) entspricht der resultierende Drehimpuls \vec{N} dem Drehimpuls \vec{J} der Kernrotation. Dann gilt für die Energie der Rotationsniveaus N in Analogie zu Gl. 2.12:

$$E(N) = B_v N(N + 1). \quad (5.1)$$

Dabei ist B_v die Rotationskonstante, die von dem jeweiligen Vibrationsniveau abhängig ist. Für den Abstand zwischen zwei benachbarten Rotationsniveaus ergibt sich näherungsweise:

$$E(N + 1) - E(N) = 2B_v(N + 1). \quad (5.2)$$

Die Rotationsniveaus des angeregten Zustands sind in Abb. 5.1 exemplarisch dargestellt.

Die weiteren Wechselwirkungen werden nun störungstheoretisch behandelt. Im allgemeinen Hundschen Kopplungsfall (*b*) koppelt der Drehimpuls \vec{N} mit dem Gesamtspin \vec{S} . Für die hier betrachteten Niveaus mit niedrigem N ist diese Kopplung jedoch sehr schwach. Stattdessen dominiert die Fermi-Kontakt-Wechselwirkung. Diese beschreibt die Wechselwirkung von Elektronenspin und Kernspin. Unter der Annahme, daß die Spin-Spin-Kopplung zum Gesamtelektronenspin \vec{S} bestehen bleibt, setzt sich die gesamte Fermi-Kontakt-Wechselwirkung aus den Wechselwirkungen des Gesamtspins \vec{S} mit dem jeweiligen atomaren Kernspin \vec{i}_6 und \vec{i}_7 ,

$$H_{\text{Fermi}} = b_6 \vec{i}_6 \vec{S} + b_7 \vec{i}_7 \vec{S}, \quad (5.3)$$

zusammen. Die beiden Kopplungskonstanten sind b_6 und b_7 . Ihre Werte betragen etwa ein Viertel der atomaren Werte, also $b_6 \approx 75$ MHz und $b_7 \approx 200$ MHz. Durch diese Fermi-Kontakt-Wechselwirkung ergeben sich für den Singulett- und den Triplettzustand jeweils charakteristische Aufspaltungen.

Auswahlregeln

Wie bei der herkömmlichen Molekülspektroskopie gelten für die optischen Übergänge Auswahlregeln, die halbklassisch mit der Drehimpulserhaltung verstanden werden können. Bei der Absorption (oder Emission) eines Photons muß der Eigendrehimpuls des Photons durch eine Änderung des Bahndrehimpulses kompensiert werden. Da bei Übergängen zwischen Σ -Zuständen, wie sie hier ausschließlich betrachtet werden, die Projektion Λ des Bahndrehimpulses erhalten bleibt, muß eine Änderung des Bahndrehimpulses der Kerne stattfinden. Dieser Bahndrehimpuls ist für den Grundzustand in der Relativbewegung und für den angeregten Zustand in der Rotationsbewegung enthalten. Somit ergeben sich für die verschiedenen Partialwellen (vgl. Kap. 2.2.4) folgende mögliche Übergänge:

$$s\text{-Wellen} \rightarrow N = 1 \quad (5.4)$$

$$p\text{-Wellen} \rightarrow N = 0, N = 2 \quad (5.5)$$

$$d\text{-Wellen} \rightarrow N = 1, N = 3. \quad (5.6)$$

5.2 Singulettenspektrum

Ein hyperfeinaufgelöstes Singulettenspektrum ist in Abb. 5.2 präsentiert. Dargestellt ist der $v_S = 83$ -Zustand in einem Verstimmungsbereich des Photoassoziationslasers von -179 GHz bis -176 GHz. Zur Erzielung einer guten Auflösung wurde der Photoassoziationslaser extrem langsam durchgestimmt. Die Rate betrug 1.25 MHz/s. Das Spektrum wurde mit der schwachen Laserstrahlfokussierung bei einer Laserleistung von 336 mW aufgenommen.

Deutlich zu sehen sind vier tiefe Resonanzen (a)–(d), bei denen die Teilchenzahl bis auf etwa 20% zurückgeht. Der Frequenzabstand zwischen den Resonanzen (a) und (b) und zwischen den Resonanzen (c) und (d) beträgt jeweils etwa 228 MHz. Die Resonanzen (a) und (c) bzw. (b) und (d) haben einen Frequenzabstand von je ca. 804 MHz.

Diese Struktur läßt sich folgendermaßen erklären: für den Singulettzustand ist der Gesamtelektronenspin $S = 0$. Infolgedessen gibt es keine Fermi-Kontakt-Wechselwirkung und damit auch keine Hyperfeinaufspaltung. Jedes Rotationsniveau N besteht aus einem energetischen Zustand. Es ergeben sich Quartette von Übergängen von den vier Eintrittskanälen in die jeweiligen Rotationsniveaus. Die energetischen Abstände der vier Eintrittskanäle, die sich durch die unterschiedlichen Kombinationen von atomaren Hyperfeinzuständen ergeben, werden in den Energieabständen der

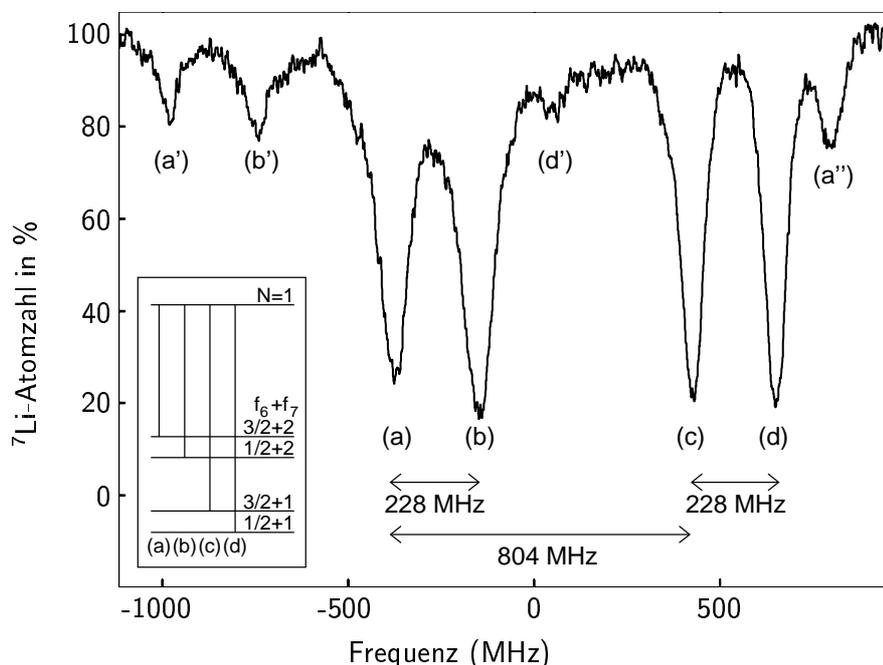


Abbildung 5.2: Hyperfeinaufgelöstes Singulettenspektrum. Abgebildet ist das $v_S = 83$ -Niveau mit einem Linienschwerpunkt von 14897.4015 cm^{-1} (Frequenzskala relativ dazu). Das kleine Bild dient zur Erklärung der verschiedenen Hyperfeinübergänge.

Hyperfeinlinien unmittelbar sichtbar. Damit ist diese Hyperfeinstruktur ein weiterer Beweis für den heteronuklearen Charakter der Resonanz. Die Resonanzen (a)–(d) sind auf Übergänge von den vier Grundzustandsasymptoten $f_6 = 1/2 + f_7 = 1$ bis $f_6 = 3/2 + f_7 = 2$ (vgl. Abb. 5.1 bzw. Abb. 5.2) in ein Rotationsniveau des angeregten Zustands zurückzuführen. Dies muß das $N = 1$ -Niveau sein, da der s -Wellenbeitrag dominierend ist.

Die absolute Frequenz des Übergangs, gemessen vom Schwerpunkt der vier Eintrittskanäle, beträgt $14897.4015(7) \text{ cm}^{-1}$. Dieser Messung liegen die in Kap. 7 verwendeten Daten zugrunde, wobei die Linienpositionen auf verschwindende Intensität extrapoliert wurden und ferner die thermische Verschiebung durch Verwendung eines geeigneten Anpassungsverfahrens berücksichtigt wurde. Der Fehler von 0.0007 cm^{-1} , entsprechend 20 MHz, ergibt sich als Summe aus der Ungenauigkeit der Angabe der Linienpositionen des Jodspektrums und Meßfehlern.

Außer den vier starken Übergängen in das Rotationsniveau $N = 1$ sind auch einige

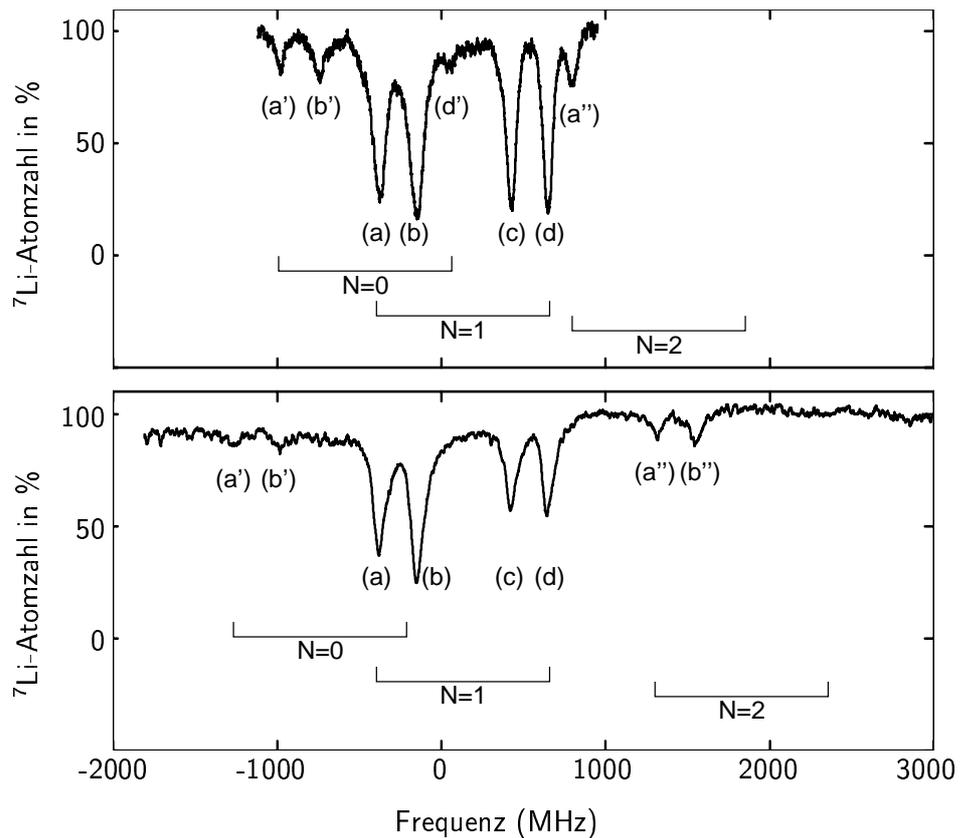


Abbildung 5.3: Hyperfeinaufgelöstes Singulettenspektrum des $v_S = 83$ -Niveaus (oberes Spektrum) und des $v_S = 80$ -Niveaus (unteres Spektrum) zur Demonstration der Schwingungsdehnung. Die entsprechenden Rotationskonstanten betragen $B_{83}/h = 301 \text{ MHz}$ und $B_{80}/h = 423 \text{ MHz}$.

schwächere Übergänge sichtbar. Die Linien (a'), (b'), (d') sind auf Übergänge in das Rotationsniveau $N=0$ zurückzuführen (die entsprechende Linie (c') ist nicht sichtbar, da sie mit der Linie (b) zusammenfällt). Die Linie (a'') gehört zu einem Übergang in das Niveau $N=2$. Die Abhängigkeit der Rotationskonstanten B_v vom Vibrationsniveau aufgrund der Schwingungsdehnung (vgl. Kap. 2.1.2) ist aus Abb. 5.3 ersichtlich. Zusätzlich zu dem Spektrum des $v_S = 83$ -Niveaus aus Abb. 5.2 ist ein Spektrum des $v_S = 80$ -Niveaus abgebildet. Dieses wurde unter ähnlichen experimentellen Bedingungen wie das erstere aufgenommen, d.h. mit einer Durchstimmrate von 4 MHz/s und einer Laserleistung von 400 mW. Deutlich sichtbar sind bei beiden Spektren neben den starken Übergängen (a)–(d) in das $N=1$ -Niveau schwächere Übergänge in das $N=0$ und $N=2$ Niveau. Bei dem $v_S = 80$ -Spektrum weisen die Übergänge in die verschiedenen Rotationsniveaus einen größeren Frequenzabstand voneinander auf als bei dem Spektrum des $v_S = 83$ -Niveaus. Die entsprechenden Rotationskonstanten lassen sich aus den Abständen der Linien bestimmen. Aus einer Bestimmung der Linienmitten durch Anpassung einer geeigneten Funktion (vgl. Gl. 7.3) an mehrere Spektren ergibt sich für das $v_S = 83$ -Niveau ein mittlerer Wert von $B_{83}/h = 301(2)$ MHz und für das $v_S = 80$ -Niveau von $B_{80}/h = 423(2)$ MHz. Ein Vergleich der beiden Werte mit den homonuklearen Daten aus [Abr95b] kann mittels der Methode der massenreduzierten Quantenzahlen erfolgen. In Abb. 5.4 sind die entsprechenden massenreduzierten Werte dargestellt. Die reduzierten Rotationskonstanten B_ξ stimmen sehr gut überein.

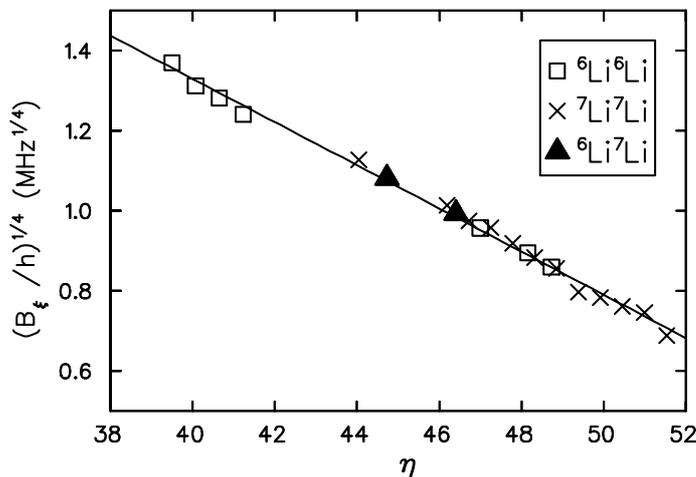


Abbildung 5.4: Massenreduzierte Rotationskonstante B_ξ als Funktion der massenreduzierten Vibrationsquantenzahl η . Dargestellt sind die den heteronuklearen Rotationskonstanten B_{83} und B_{80} entsprechenden Werte, sowie die aus den homonuklearen Daten [Abr95b] bestimmten Werte.

5.3 Triplettenspektrum

Zwei hochaufgelöste Triplettenspektren sind in Abb. 5.5 gezeigt, und zwar für das $v_T = 75$ -Niveau (oberes Spektrum) und für das $v_T = 72$ -Niveau (unteres Spektrum). Das obere Spektrum wurde mit einer Durchstimmrate von 1.25 MHz/s bei 280 mW, aber mit starker Laserstrahlfokussierung aufgenommen. Das untere Spektrum stammt aus der gleichen Serie wie das oben abgebildete Singulettenspektrum $v_S = 80$.

Die Interpretation des Triplettenspektrums birgt nun bereits für den homonuklearen Fall größere Schwierigkeiten in sich als die des Singulettenspektrums. Aufgrund des heteronuklearen Charakters treten zusätzliche Komplikationen auf. Dies sei im Folgenden kurz erläutert: Für den Triplettzustand ist der Gesamtelektronenspin $S = 1$. Im homonuklearen Fall sind die Fermi-Kontakt-Wechselwirkungen zwischen dem Elektronenspin \vec{S} und den beiden Kernspins identisch, so daß sich die gesamte Kontakt-Wechselwirkung als Kopplung zwischen dem Gesamtelektronenspin \vec{S} und dem Gesamtkernspin \vec{I} zu einem Gesamtspin \vec{G} ($\vec{G} = \vec{I} + \vec{S}$) verstehen läßt (Hundscher Kopplungsfall ($b_{\beta S}$) [Fro52]). Damit reduziert sich Gl. 5.3 zu $H_{\text{Fermi}} = b\vec{I}\vec{S}$

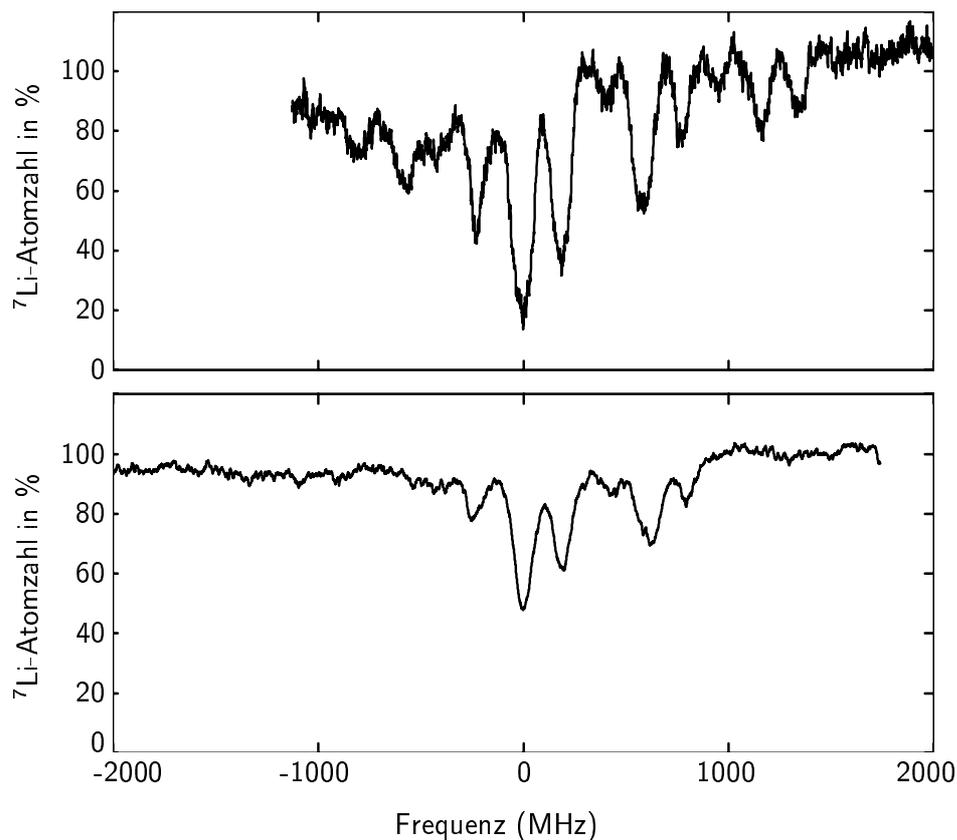


Abbildung 5.5: Hyperfeinaufgelöstes Triplettenspektrum des $v_T = 75$ -Niveaus (oberes Spektrum) und des $v_T = 72$ -Niveaus (unteres Spektrum).

mit einer einzigen Kopplungskonstanten b . Unter Berücksichtigung der Austauschsymmetrie ergeben sich bei ${}^6\text{Li}$ drei und bei ${}^7\text{Li}$ fünf Hyperfeinniveaus [Abr96b]. Im Gegensatz dazu ist die Kopplung im heteronuklearen Fall wesentlich komplizierter. Eine Kopplung der beiden Kernspins \vec{i}_6 und \vec{i}_7 zu einem Gesamtkernspin \vec{I} ist sehr unwahrscheinlich, da in diesem Fall die magnetische Dipolwechselwirkung $\vec{i}_6\vec{i}_7$ stärker sein müßte als alle anderen Kernspinwechselwirkungen, einschließlich der Fermi-Kontakt-Wechselwirkung. Anstelle des Hundschen Kopplungsfall ($b_{\beta S}$) muß nach alternativen Kopplungsschemata gesucht werden, in deren Basisfunktionen die Hyperfeinaufspaltung berechnet und mit dem Experiment verglichen werden kann [Li02]. Darüberhinaus ist fraglich, inwieweit die Näherung, daß die Spin-Spin-Kopplung bestehen bleibt, gerechtfertigt ist [Tie01].

Eine Analyse des Triplettpektrums steht noch aus. Die Abbildung kann jedoch dazu dienen, die entsprechenden Hyperfeinlinien zu den verschiedenen Rotationsniveaus zu identifizieren.

6

Bestimmung der Tripletstreu­länge

Die Streulänge stellt eine charakteristische Größe in der Beschreibung der Wechselwirkungen kalter Atome dar. Der Stoßquerschnitt, der für das evaporative oder sympathetische Kühlen von entscheidender Bedeutung ist, ist für sehr tiefe Temperaturen proportional zum Quadrat der Streulänge. Der attraktive bzw. repulsive Charakter der Wechselwirkung, der beispielsweise die Stabilität eines Bose-Einstein-Kondensats bestimmt, kommt in dem negativen bzw. positiven Vorzeichen der Streulänge zum Ausdruck.

Die experimentelle Bestimmung der Streulänge kann nach verschiedenen Methoden erfolgen (ausführliche Übersicht in [Cru99]). Ein direktes und hochpräzises Verfahren stellt die Photoassoziationsspektroskopie dar. In der herkömmlichen Ein-Farben-Photoassoziationsspektroskopie werden aus den Signalstärken Rückschlüsse auf die Grundzustandswellenfunktion und damit auf die Streulänge gezogen [Abr96a, Dra00b]. Eine andere Möglichkeit besteht darin, in erweiterten Zwei-Farben-Photoassoziationsexperimenten die Lage des letzten gebundenen Niveaus des Grundzustands zu messen und daraus die Streulänge zu bestimmen [Abr95a, Abr97].

In diesem Kapitel wird die experimentelle Bestimmung der Tripletstreu­länge von ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ beschrieben. Für den Fall einer positiven Streulänge, wie es für die zu bestimmende Streulänge vorhergesagt ist, kann die Bestimmung nach einer einfachen Variante der herkömmlichen Photoassoziationsspektroskopie erfolgen. Diese Methode wird zunächst beschrieben (Kap. 6.1) Die anschließenden Abschnitte beschäftigen sich mit der Datenaufnahme (Kap. 6.2) und der Auswertung (Kap. 6.3).

6.1 Bestimmung positiver Streulängen

Die Streulänge a ist über die Phasenverschiebung der asymptotischen Wellenfunktion gegenüber der freien Lösung definiert (vgl. Kap. 2.1.3). Ist der Verlauf der Grundzustandswellenfunktion bekannt, kann man auf die Größe der Streulänge schließen. Die Grundzustandswellenfunktion läßt sich im Bereich der Condon-Punkte der spektroskopierten Vibrationsniveaus direkt ausmessen. Das Betragsquadrat der Grundzustandswellenfunktion ψ_g bestimmt den Franck-Condon-Faktor F_{eg} . Dieser ist proportional zur Übergangsrate Γ vom Grundzustand in den angeregten Zustand. Diese Übergangsrate Γ wiederum ist für kleine Intensitäten des Photoassoziationslasers proportional zur Photoassoziationsrate β_{PA} . Der Verlauf der Signalstärken eines aufgenommenen Photoassoziationsspektrums spiegelt folglich den Verlauf der

Franck-Condon-Faktoren wider. Unter Verwendung eines geeigneten Modells für den Franck-Condon-Faktor läßt sich die Strelänge a bestimmen.

Im Fall einer positiven Strelänge wird der Einfluß der Grundzustandswellenfunktion auf die Photoassoziationsrate besonders deutlich. Die Grundzustandswellenfunktion weist einen Nulldurchgang bei relativ großen internuklearen Abständen auf und verläuft in dessen Umgebung linear mit kleiner Steigung (vgl. Abb. 2.4). Im Bereich des Nulldurchgangs entspricht der Verlauf der Grundzustandswellenfunktion annähernd dem Verlauf der asymptotischen Wellenfunktion. Damit gibt die Lage des Nulldurchgangs annähernd die Strelänge an. Dies manifestiert sich in einem Minimum des Photoassoziationssignals bei den Übergängen mit den entsprechenden Condon-Punkten (vgl. Abb. 2.3).

Modell für den Franck-Condon-Faktor

Zwischen dem Franck-Condon-Faktor F_{eg} und der Grundzustandswellenfunktion ψ_g besteht nach Gl. 2.32 der folgende Zusammenhang:

$$F_{\text{eg}} = \frac{\partial E}{\partial v} \frac{1}{D_C} |\psi_g(R_C)|^2. \quad (6.1)$$

Hierbei bezeichnet $\partial E/\partial v$ die Vibrationsabstandsfunktion und D_C die Steigung des Differenzpotentials zwischen angeregtem Zustand und Grundzustand. Diese beiden Vorfaktoren sind durch Gl. 2.33 und Gl. 2.34 näherungsweise gegeben.

In einem ersten Schritt läßt sich unter Annahme eines R^{-3} -Potentials folgende Proportionalität aus Gl. 6.1 herleiten:

$$F_{\text{eg}} \propto \frac{1}{\sqrt{\Delta_v}} |\psi_g(R_C)|^2. \quad (6.2)$$

Dieser Ausdruck für den Franck-Condon-Faktor enthält nur noch die Laserverstimmung Δ_v und die Grundzustandswellenfunktion $\psi_g(R_C)$. Dabei wird der Zusammenhang zwischen der Laserverstimmung und der Lage des Condon-Punkt R_C durch Gl. 2.24 beschrieben. Diese Proportionalität in Gl. 6.2 ergibt sich aus den Abhängigkeiten $\partial E/\partial v \propto \Delta^{5/6}$ und $D_C \propto \Delta^{4/3}$, die sich auf einfache Weise herleiten lassen.¹ In einem zweiten Schritt muß ein Modell für die Grundzustandswellenfunktion ψ_g gefunden werden. Die Beschreibung der Grundzustandswellenfunktion ψ_g kann in einem einfachsten Modell durch eine phasenverschobene ebene Welle erfolgen, $\psi_g \propto \sin(k(R-a))$. Nähert man diese im Bereich um den Nulldurchgang, so nimmt Gl. 6.2 folgende einfache Form an:

$$F_{\text{eg}} \propto \frac{1}{\sqrt{\Delta_v}} (R_C - a)^2. \quad (6.3)$$

¹Der gleiche Zusammenhang folgt nach dem Modell von P. Pillet [Pil97] aus der Normierung der für den angeregten Zustand angenommenen Airyfunktionen.

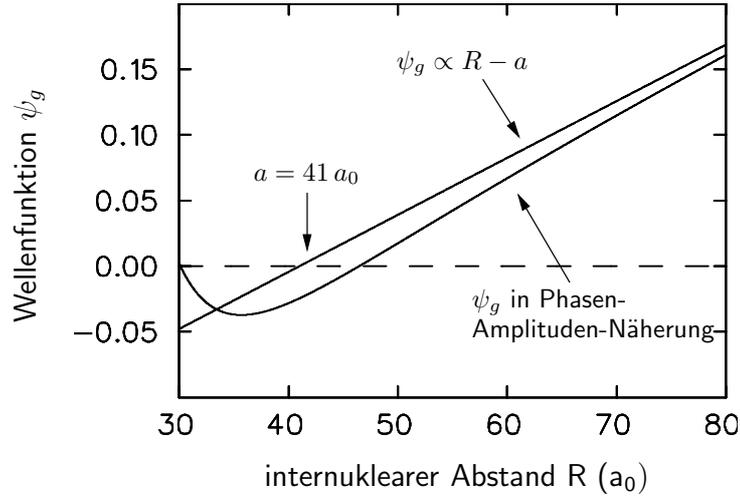


Abbildung 6.1: Grundzustandswellenfunktion ψ_g im Bereich um den Nulldurchgang. Der tatsächliche Nulldurchgang liegt bei etwas größeren internuklearen Abständen als die Streulänge a . Dies wird in der Darstellung der Wellenfunktion in der Phasen-Amplituden-Näherung gemäß Gln. 6.5–6.7 berücksichtigt.

In einem verfeinerten Modell muß die Abweichung vom sinusförmigen Verhalten durch den Einfluß des Grundzustandspotentials mitberücksichtigt werden. Im Gegensatz zur asymptotischen Lösung mit konstantem Wellenvektor k wird durch das Grundzustandspotential der Wellenvektor ortsabhängig. Infolgedessen liegt der letzte Nulldurchgang bei einem größeren internuklearen Abstand als der der asymptotischen Lösung, also als die Streulänge a (vgl. Abb. 6.1). Dies wird in einem Näherungsansatz für die Grundzustandswellenfunktion von [Jul96] berücksichtigt. Dieser gilt für einen mittleren internuklearen Abstandsbereich mit $R \gg R_B$, wobei

$$R_B = \left(\frac{\mu C_6}{10 \hbar^2} \right)^{1/4}. \quad (6.4)$$

Der kritische Radius R_B kann für ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ mit den entsprechenden Werten für die reduzierte Masse μ und den C_6 -Koeffizienten zu $30 a_0$ berechnet werden. Für die Grundzustandswellenfunktion in Phasen-Amplituden-Form,

$$\psi_g(R) \propto \alpha_g(R) \sin \beta_g(R), \quad (6.5)$$

ergeben sich durch Lösung genäherter Milne'scher Gleichungen die Koeffizienten α_g und β_g wie folgt:

$$\alpha_g(R) = \frac{1}{\sqrt{k}} \left(1 - \left(\frac{R_B}{R} \right)^4 \right), \quad (6.6)$$

$$\beta_g(R) = k \left(R - a - \frac{2}{3} \left(\frac{R_B}{R} \right)^4 R \right). \quad (6.7)$$

Durch Einsetzen dieser genäherten Wellenfunktion in Gl. 6.2 erhält man einen Ausdruck für den Franck-Condon-Faktor F_{eg} , der von der Laserverstimmung Δ_v und der Lage des Condon-Punkts R_C abhängt. Für praktische Anwendungen ist es günstig, die Lage des Condon-Punkts R_C unter Verwendung der Beziehung 2.24 in eine entsprechende Laserverstimmung Δ_v umzurechnen. Damit ergibt sich folgende Formel für die Abhängigkeit des Franck-Condon-Faktors F_{eg} von der Laserverstimmung Δ_v :

$$F_{\text{eg}} \propto \frac{1}{\sqrt{\Delta_v}} \left(1 - \frac{R_B^4}{(C_3/h)^{4/3}} \Delta_v^{4/3} \right)^2 \sin^2 \left(k \left(\left(\frac{C_3}{h\Delta_v} \right)^{1/3} - a - \frac{2}{3} \frac{R_B^4}{C_3/h} \Delta_v \right) \right). \quad (6.8)$$

6.2 Datenaufnahme

Für die experimentelle Bestimmung der Tripletstrelänge nach dem beschriebenen Verfahren sind Daten für das Triplettspektrum in einem großen Verstimmungsbereich um das Minimum im Photoassoziationssignal erforderlich. Damit anschließend über den gesamten Verstimmungsbereich aus den Signalen die Franck-Condon-Faktoren ohne systematischen Fehler bestimmt werden können, sind bei der Datenaufnahme zwei wichtige Aspekte zu beachten:

Erstens muß gewährleistet sein, daß bei den starken Übergängen die Photoassoziationsraten nicht gesättigt sind, damit die Proportionalität zum Franck-Condon-Faktor jeweils erfüllt ist. Gleichzeitig sollte die Laserintensität aber ausreichend groß sein, so daß die schwachen Übergänge gut sichtbar sind. Diese Anforderung kann dadurch erfüllt werden, daß der Photoassoziationslaser bei hoher Leistung betrieben wird, dafür aber der spektroskopierte Bereich eingeschränkt wird. Dazu wurde für den als Grenze angestrebten Übergang ein Photoassoziationsspektrum bei verschiedenen Laserintensitäten aufgenommen. Verließ die Signalhöhe annähernd proportional zur Intensität, konnten Spektren dieses Übergangs verwendet werden. Es stellte sich heraus, daß dies für Übergänge mit $\nu_T \leq 72$, also in einem Verstimmungsbereich bis etwa -300 GHz, erfüllt ist.

Zweitens müssen möglichst konstante experimentelle Bedingungen vorliegen. Veränderungen in der Justage, z.B. im Überlapp der beiden Atomwolken und des Photoassoziationslaserstrahls, in der Photoassoziationslaserintensität oder in der ${}^6\text{Li}$ -Teilchenzahl würden die Photoassoziationsrate beeinflussen. Damit würde sich ein veränderter Proportionalitätsfaktor zwischen Photoassoziationsrate und Franck-Condon-Faktor ergeben und eine Messung der relativen Franck-Condon-Faktoren würde vereitelt. Dieses Problem kann durch die Aufnahme von jeweils kompletten Serien möglichst klein gehalten werden. Dann allerdings erfordert die Datenaufnahme einen extrem hohen Zeitaufwand (pro Serie etwa 10 Stunden!) und eine extrem hohe Stabilität der Apparatur. Insgesamt wurden mehrere Versuche unternommen,

die Triplettsreihe komplett aufzunehmen. Aufgrund der oben erwähnten Schwierigkeiten lieferten aber nur zwei Serien ausreichend gute Daten, die im folgenden diskutiert werden.

Die erste Serie wurde ohne Auflösung der Hyperfeinstruktur des Tripletzustands aufgenommen. Der untersuchte Bereich lag zwischen einer Verstimmung von -319 GHz (entsprechend $v_T = 72$) und -2742 GHz (entsprechend $v_T = 58$). Die Spektren wurden mit der schwachen Fokussierung bei einer Laserleistung von 560 mW aufgenommen, was einer Laserintensität von 70 W/cm² entspricht. Die Durchstimmrate betrug 20 MHz/s. Eine Darstellung dieser Spektren ist in der Gesamtübersicht (vgl. Abb. 4.5) enthalten.

Für die zweite Serie wurde die Durchstimmrate auf 1.25 MHz/s reduziert, so daß diese Serie eine aufgelöste Hyperfeinstruktur aufweist. Um die Experimentierzeit trotz dieser kleinen Durchstimmrate im Rahmen zu halten, wurde darauf verzichtet, jeweils das gesamte hyperfeinaufgelöste Triplettspektrum aufzunehmen. Stattdessen wurden jeweils nur die ersten drei niederfrequenten Hyperfeinlinien untersucht. Der untersuchte Verstimmungsbereich entsprach annähernd dem aus der ersten Serie, die Laserleistung wurde auf 300 mW, entsprechend einer Intensität von 38 W/cm², reduziert. Einige exemplarische Spektren dieser Serie sind in Abb. 6.2 präsentiert.

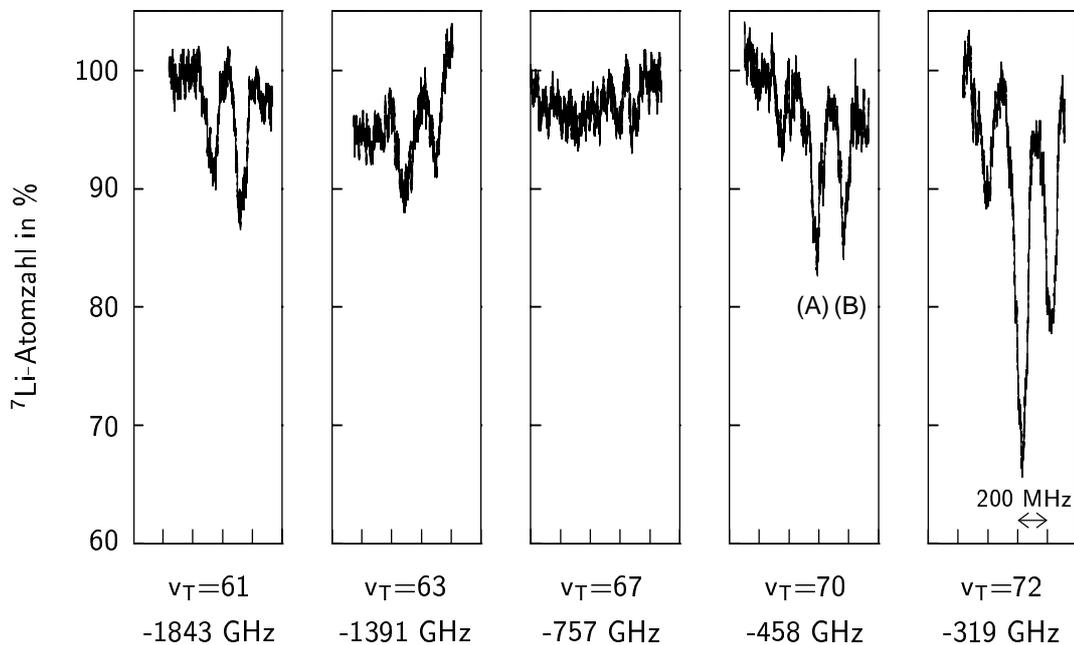


Abbildung 6.2: Hyperfeinaufgelöstes Triplettspektrum (Ausschnitt) für verschiedene Vibrationsniveaus.

6.3 Datenanalyse

In beiden Serien ist deutlich sichtbar, daß das Photoassoziationssignal mit zunehmender Laserverstimmung zunächst abnimmt, im Bereich von -600 GHz bis -1100 GHz verschwindet und anschließend dann im fernverstimmten Bereich ab -1100 GHz wieder auftritt. Bis zu einer Verstimmung im Bereich von -2000 GHz nimmt es nochmals zu und dann wieder ab, bis es unterhalb einer Verstimmung von -3000 GHz nicht mehr zu beobachten ist.

Die quantitative Datenanalyse erfolgt in zwei Schritten. Zunächst werden aus den Signalhöhen die relativen Franck-Condon-Faktoren extrahiert (Kap. 6.3.1). Anschließend wird die Streulänge als Anpassungsparameter bestimmt (Kap. 6.3.2).

6.3.1 Extraktion der relativen Franck-Condon-Faktoren

Bei der Extraktion der Franck-Condon-Faktoren aus den Signalhöhen wird berücksichtigt, daß die Teilchenzahl eine nichtlineare Abhängigkeit von der Photoassoziationsrate β_{PA} (vgl. Gl. 2.59) aufweist. Diese ist im ungesättigten Fall proportional zum Franck-Condon-Faktor F_{eg} .

Für die erste Serie ohne aufgelöste Hyperfeinstruktur wird folgendermaßen vorgegangen: für jede Resonanz wird die relative Signalhöhe P_{rel} , d.h. die maximale Si-

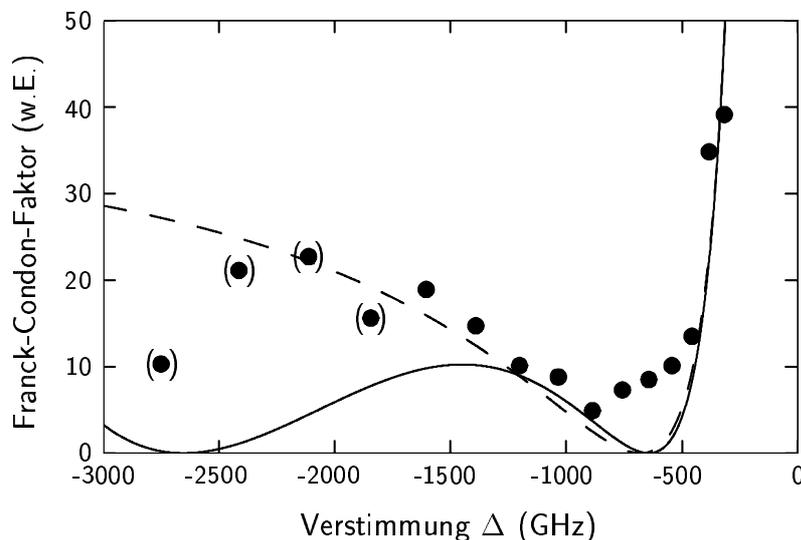


Abbildung 6.3: Franck-Condon-Faktoren (in willkürlichen Einheiten) aus den Daten ohne aufgelöste Hyperfeinstruktur für die Photoassoziationsübergänge im Verstimmungsbereich von -3000 bis -300 GHz. Die durchgezogene Linie repräsentiert eine Anpassung gemäß Gl. 6.8, die gestrichelte gemäß Gl. 6.3. Die dabei unberücksichtigten Datenpunkte sind eingeklammert.

gnalhöhe dividiert durch die Gleichgewichtsteilchenzahl ohne Photoassoziationslaser, ausgemessen. Schwankungen in der Gleichgewichtsteilchenzahl werden dabei als linear zugelassen. Zwischen der relativen Signalhöhe P_{rel} und der Photoassoziationsrate β_{PA} besteht folgender Zusammenhang (folgt aus Gl. 2.59):

$$P_{\text{rel}} = \frac{\beta_{\text{PA}}}{\alpha + \beta_{\text{PA}}}. \quad (6.9)$$

Damit gilt für den Condon-Faktor F_{eg} folgende Proportionalität:

$$F_{\text{eg}} \propto \frac{P_{\text{rel}}}{1 - P_{\text{rel}}}, \quad (6.10)$$

wobei der Proportionalitätsfaktor für alle Vibrationsniveaus identisch sein sollte. Die auf diese Weise erhaltenen Werte für die relativen Franck-Condon-Faktoren sind in Abb. 6.3 als Funktion der Verstimmung des Photoassoziationslasers dargestellt. Für die Verstimmung wurden dabei die Werte aus Tab. 4.1 eingesetzt. Im Gegensatz zu der ersten Messung, bei der es aufgrund der nicht- oder nur teilweise aufgelösten Hyperfeinstruktur nicht möglich ist, eine geeignete Funktion an die Daten anzupassen, kann bei der zweiten Serie eine Anpassung an die Spektren der einzelnen Hyperfeinkomponenten erfolgen. Dazu wird die quasi-Lorentzförmige Funktion aus Gl. 7.3 verwendet und der zum Franck-Condon-Faktor F_{eg} proportionale Anpassungsparameter (a/α_7 in Gl. 7.3) extrahiert. In Abb. 6.4 sind die Ergebnisse

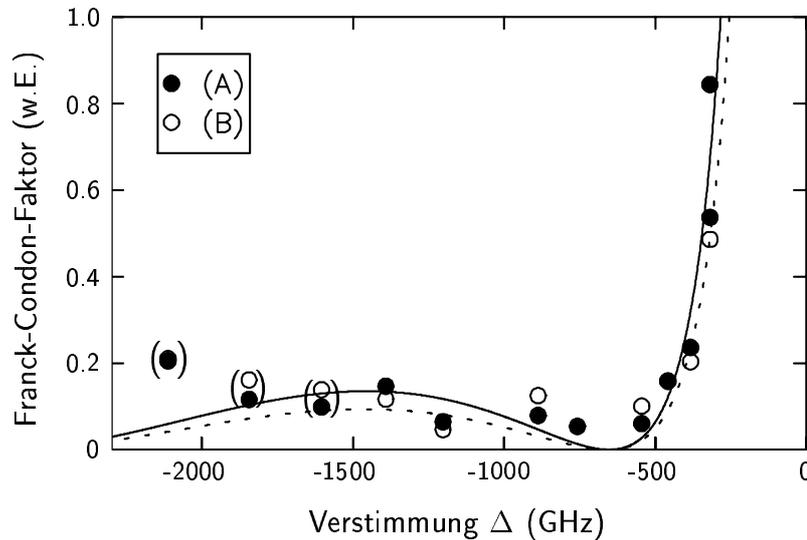


Abbildung 6.4: Franck-Condon-Faktoren (in willkürlichen Einheiten) für die Hyperfeinübergänge (A) und (B) im Verstimmungsbereich von -2300 bis -300 GHz. Die Linien (durchgezogen für (A), gepunktet für (B)) repräsentieren eine Anpassung gemäß Gl. 6.8. Die dabei unberücksichtigten Datenpunkte sind eingeklammert.

für die beiden stärksten Hyperfeinkomponenten (A) und (B) (vgl. Abb. 6.2) dargestellt.

6.3.2 Streulänge als Anpassungsparameter

Als letzter Schritt zur Bestimmung der Streulänge erfolgt eine Anpassung der Funktion 6.8 an die Daten. Die beiden Anpassungsparameter sind die zu bestimmende Streulänge a und ein Proportionalitätsfaktor. Für den Wellenvektor k wird der einer mittleren Energie von $E/k_B = 0.5$ mK entsprechende Wert von $0.00435 a_0^{-1}$ angenommen.

Bei der Anpassung muß man beachten, daß Gl. 6.8 strenggenommen nur eine gute Näherung für internukleare Abstände mit $R \gg R_B$ ist. Dieser Abstand entspricht einer Verstimmung von -2680 GHz. Aus diesem Grund werden für die Anpassung Datenpunkte erst ab einer Verstimmung von -1500 GHz berücksichtigt. Die resultierenden Anpassungsfunktionen sind in Abb. 6.3 und Abb. 6.4 eingezeichnet. Die bei der Anpassung unberücksichtigten Datenpunkte sind jeweils eingeklammert.

Aus dem Datensatz ohne Auflösung der Hyperfeinstruktur (vgl. Abb. 6.3) ergibt sich für die Streulänge ein Wert von $43.4 a_0$. Aus der Serie mit aufgelöster Hyperfeinstruktur (vgl. Abb. 6.4) wird die Streulänge für die beiden Hyperfeinkomponenten (A) und (B) separat bestimmt. Für den Übergang (A) resultiert für die Streulänge ein Wert von $43.1 a_0$ und für den Übergang (B) von $42.9 a_0$. Wir geben deshalb als Ergebnis für die Tripletstreuung a_T den Mittelwert aus den drei Werten von

$$a_T = 43.1 a_0$$

an.

Aufgrund der Tatsache, daß die drei bestimmten Werte für die Streulänge innerhalb von $0.5 a_0$ übereinstimmen, ist der statistische Fehler klein. Er ist von derselben Größenordnung wie die Anpassungsfehler der einzelnen Bestimmungen. Diese betragen etwa $1.5 a_0$. Diese kleinen Fehler sprechen für eine gute Qualität der Daten. Das Ergebnis für die Streulänge ist unkritisch auf die genauen Werte der einzelnen Datenpunkte. Bei Nichtberücksichtigung von ein bis drei Datenpunkten in der Anpassung variiert das Ergebnis nur um etwa $1 a_0$. Die Abhängigkeit des Ergebnisses von dem genauen Wert des Wellenvektors k liegt weit unterhalb dieser Fehlertoleranz. Eine Variation des abgeschätzten Werts von $0.00435 a_0^{-1}$ um einen Faktor $1/2$ bzw. 2 führt zu einer Änderung des Werts für die Streulänge von weniger als $0.1 a_0$.

Diskussion

Die Tripletstreuung ist theoretisch recht genau bekannt. Eine Berechnung der heteronuklearen ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ -Streulängen mit Hilfe der aus Photoassoziationsexperimenten bestimmten homonuklearen Werten liefert $a_T = (40.9 \pm 0.2) a_0$ [Abr97]. Die

	${}^6\text{Li}$	${}^7\text{Li}$	${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$
a_T	-2160 ± 250	-27.6 ± 0.5	40.9 ± 0.2
a_S	45.5 ± 2.5	33 ± 2	-20 ± 10

Tabelle 6.1: Singulett- und Triplettstreu­längen in Einheiten von a_0 nach [Abr97]. Die Werte für die homonuklearen Kombinationen sind experimentell bestimmt, die Werte für die heteronukleare Kombination ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ sind berechnet.

Streu­längen für die verschiedenen Li-Isotopomere sind in Tab. 6.1 zusammenge­faßt. Eine Berechnung von V. Venturi [Jul02a] ergibt einen sehr ähnlichen Wert von $a_T = 40.8 a_0$. Diese Rechnung liefert ferner, in Ergänzung zu [Abe97], die Streu­längen für die verschiedenen Kombinationen von magnetischen Hyperfeinzuständen. Die Werte sind im Anhang in Tab. B.1 zusammengestellt.

Unser experimentell bestimmter Wert für die Triplettstreu­länge zeigt eine gute Übereinstimmung mit dem theoretisch vorhergesagten. Die Abweichung beträgt lediglich $2.2 a_0$ zu einem größeren Wert. Damit wird das theoretische Ergebnis für die Triplettstreu­länge erstmals direkt bestätigt.

Die Hauptursache für die Abweichung zwischen dem experimentellen und dem theoretischen Wert ist vermutlich auf einen systematischen Fehler in der Auswertung zurückzuführen. In der vereinfachten Modellannahme für die Grundzustandswellenfunktion ist der Einfluß des Grundzustandspotentials auf die Wellenfunktion nur näherungsweise enthalten. Wie bereits im vorhergehenden Abschnitt erklärt, führt eine Berücksichtigung des tatsächlichen Verlaufs der Wellenfunktion gegenüber der Annahme einer phasenverschobenen ebenen Welle um eine Korrektur der Streu­länge zu einem kleineren Wert. Zum Vergleich: bei Anpassung der Daten mit der Funktion aus Gl. 6.3 ergibt sich unter Berücksichtigung der gleichen Datenpunkte für die Streu­länge ein mittlerer Wert von $47.3 a_0$. Die entsprechende Anpassungsfunktion ist in Abb. 6.3 gestrichelt eingezeichnet. Dies legt die Vermutung nahe, daß durch das verwendete Modell die Streu­länge noch weiterhin überschätzt wird. Eine exaktere Bestimmung ließe sich wahrscheinlich durch Anpassung der vorliegenden Daten mit einem verbesserten Modell erzielen.

7 Sättigung

Die Photoassoziation stellt eine vielversprechende Methode zur kohärenten Kopplung von einem Kontinuumszustand eines freien Atompaars mit einem gebundenen Molekülzustand dar. Eine derartige Kopplung setzt Anregungsraten voraus, die auf einer Zeitskala ablaufen, die kurz ist im Vergleich zur Kohärenzzeit des Systems. Die Kohärenzzeit ist beispielsweise durch Stöße oder durch spontane Emission von Photonen bestimmt. Ein Hinweis für das Erreichen ausreichend hoher Anregungsraten ist das Auftreten von Sättigung in der Photoassoziationsrate. In diesem Fall ist die Anregungsrate von der Größenordnung der spontanen Zerfallsrate. Bislang sind verschiedene Experimente zur Sättigung durchgeführt worden [Dra00a, McK02]. Eine eindeutige Sättigung der Photoassoziationsrate konnte allerdings erst in der vorliegenden Arbeit beobachtet werden.

Die Grundlage für die Untersuchung der Sättigung bilden hyperfeinaufgelöste Photoassoziationsspektren des Übergangs $v_S = 83$ der Singulettserie von ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$, die bei verschiedenen Intensitäten bis zu 1000 W/cm^2 aufgenommen wurden (Kap. 7.1). Es zeigt sich, daß durch die Photoassoziation die in der magnetooptischen Falle gespeicherte Atomwolke nicht vollständig entvölkert werden kann, selbst im Grenzfall für sehr hohe Intensitäten. Aus einem Vergleich der auftretenden Zeitskalen kann geschlossen werden, daß die Ursache für dieses Verhalten in der Intensitätsabhängigkeit der Photoassoziationsrate liegen muß (Kap. 7.2). Für eine quantitative Analyse wird eine Funktion an die Daten angepaßt, der eine lorentzförmige Frequenzabhängigkeit der Photoassoziationsrate β_{PA} zugrunde liegt. Hieraus lassen sich Linienposition, Linienbreite und die Maximalrate extrahieren (Kap. 7.3). Die Intensitätsabhängigkeit der meßbaren Photoassoziationsrate β_{PA} ist nicht nur durch die Intensitätsabhängigkeit der Anregungsrate Γ bestimmt (vgl. Kap. 2.2.3), sondern auch durch verschiedene intensitätsabhängige systematische Effekte. Die Lichtverschiebung kann zu einer intensitätsabhängigen Linienverbreiterung führen und damit die Photoassoziationsrate entscheidend beeinflussen (Kap. 7.4). Dies wird durch Einführung einer korrigierten Photoassoziationsrate $\beta_{\text{PA},0}$ berücksichtigt (Kap. 7.5). Sättigung wird für zwei der vier Hyperfeinübergänge beobachtet. Dieses Verhalten ist auf eine Sättigung des Ratenkoeffizienten gegen den Wert im unitären Limit zurückzuführen. Die Sättigungsintensitäten liegen in der Größenordnung von 40 W/cm^2 (Kap. 7.5).

7.1 Datenaufnahme

Zur Untersuchung der Sättigung wurden hyperfeinaufgelöste Spektren des Singulettübergangs $v_S = 83$ bei verschiedenen Photoassoziationslaserintensitäten aufgenommen. Das Vibrationsniveau $v_S = 83$ liegt bei einer Verstimmung von -177 GHz und die Lage des entsprechenden Condon-Punkts kann zu $74 a_0$ abgeschätzt werden (vgl. Gl. 2.24). Dieser Übergang wurde gewählt, weil in diesem Verstimmungsreich die Singulettserie von ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ ausreichend separiert von der heteronuklearen Triplettsreihe sowie von den ${}^6\text{Li}{}^6\text{Li}$ - und ${}^7\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Resonanzen ist, aber gleichzeitig die Photoassoziationsraten groß sind.

Der untersuchte Intensitätsbereich lag zwischen 5.6 W/cm^2 und 950 W/cm^2 . Zur Erzielung derartig hoher Intensitäten wurde der Photoassoziationslaserstrahl auf einen $1/e^2$ -Durchmesser von $300 \mu\text{m}$ fokussiert (vgl. Kap. 3.2.3). Die Durchstimmrate betrug jeweils 1.25 MHz/s . Zur Frequenzzeichnung wurden bei allen Spektren sowohl ein Transmissionsspektrum des 300-MHz-Etalons sowie ein Jodspektrum parallel aufgezeichnet. Die Datenaufnahme erfolgte insgesamt an drei aufeinanderfolgenden Tagen. Dabei wurden an jedem Tag Spektren bei verschiedenen Intensitäten, die über den gesamten Intensitätsbereich verteilt ausgewählt wurden, aufgenommen. Da die Experimentieranlage in diesem Zeitraum sehr stabil lief und gut reproduzierbare Daten lieferte, können die an den verschiedenen Tagen aufgenommenen Spektren zu einer Gesamtauswertung herangezogen werden.

Fünf bei verschiedenen Laserintensitäten aufgenommene Spektren aus dieser Meßserie sind in Abb. 7.1 exemplarisch zu sehen. Dargestellt ist jeweils das hyperfeinaufgelöste Spektrum der untersuchten $v_S = 83$ -Resonanz über einen Frequenzbereich von 2 GHz. Deutlich zu erkennen sind die vier Hyperfeinlinien (a)–(d) (vgl. Kap. 5) des Übergangs in das Niveau $N = 1$ des angeregten Zustands.

7.2 Qualitative Analyse

Die Spektren lassen folgende wichtige Beobachtungen zu:

- Mit zunehmender Laserintensität nimmt die Größe der Photoassoziationssignale zunächst zu und sättigt dann gegen einen konstanten Wert. Dieses Sättigen scheint für die Resonanzen (a) und (b) bei kleineren Intensitäten zu erfolgen als für die Resonanzen (c) und (d).
- Das Sättigen erfolgt gegen Werte von 40–70 % der Gesamtteilchenzahl, d. h. die MOT läßt sich durch die Photoassoziation nicht vollständig entleeren.
- Alle Linien, insbesondere die Linien (c) und (d), werden mit zunehmender Laserintensität breiter.

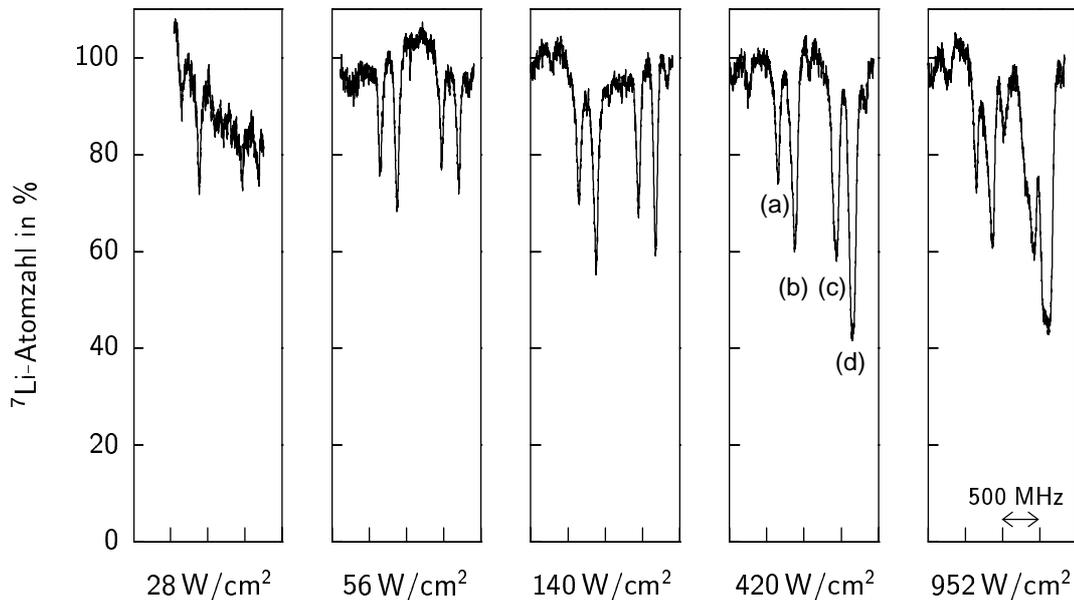


Abbildung 7.1: Spektrum des Singulettübergangs $v_S = 83$ für fünf verschiedene Intensitäten des Photoassoziationslasers. Dargestellt ist jeweils der gleiche Frequenzausschnitt von 2 GHz. Die Gleichgewichtsteilchenzahl ohne Einfluß des Photoassoziationslasers ist auf 100 % normiert.

- Die Linienmitten verschieben sich mit zunehmender Intensität zu niedrigeren Frequenzen, erscheinen also rotverschoben (in Abb.7.1 nicht direkt erkennbar).

Die Beobachtung, daß sich die gespeicherte Atomwolke im Grenzfall hoher Laserintensitäten nicht vollständig entvölkern läßt, bedeutet, daß die Teilchenzahlverluste durch Photoassoziation für hohe Intensitäten begrenzt sind. Dieses Verhalten muß in der Intensitätsabhängigkeit der Photoassoziationsrate begründet sein. Interne MOT-Prozesse können als mögliche Ursache ausgeschlossen werden, wie folgende Überlegung zeigt: Die Teilchenzahl läßt sich für hohe Intensitäten des Photoassoziationslasers nur auf etwa 50 % reduzieren. Hieraus kann gefolgert werden, daß die durch den Photoassoziationsprozeß induzierte Verlustrate etwa gleich groß sein muß wie die Verlustrate durch Stöße mit Atomen aus dem Atomstrahl, α_7 . Diese beträgt 0.11 s^{-1} (vgl. Kap. 3.1.4). Ein Atom verweilt also im Mittel etwa 10 s in der Falle, bevor es durch einen Stoß mit einem schnellen Atom aus dem Atomstrahl oder durch Photoassoziation verlorenght. Interne MOT-Prozesse könnten dann die Verluste begrenzen, wenn die durch die Photoassoziation entvölkerte Verteilung der Atome, sei es räumlich, thermisch oder von internen Zuständen, nicht schnell genug wieder aufgefüllt werden könnte. Die zugrundeliegenden Prozesse müßten dazu auf einer ähnlich langen Zeitskala von einigen Sekunden ablaufen. Bei näherer Betrachtung der möglichen internen MOT-Prozesse kann ein solcher nicht identifiziert werden:

- Die thermische Verteilung der Atome ist durch die Ankopplung an das Lichtfeld der MOT-Laserstrahlen bestimmt. Damit ist die Thermalisierungszeit von der Streurate abhängig und liegt bei $30 \mu\text{s}$, unter der Annahme, daß 1000 Zyklen zur Thermalisierung erforderlich sind.
- Die räumliche Verteilung der Atome wird durch die Geschwindigkeit der Atome bestimmt. Bei einer Geschwindigkeit von 1 m/s und einem Falldurchmesser von 1 mm braucht ein Atom 1 ms , um die Falle zu durchqueren.
- Die Besetzung der verschiedenen Hyperfeinzustände wird durch optisches Pumpen bestimmt. Die Zeitskala ist im wesentlichen durch die Streurate gegeben, liegt also im Bereich einiger Nanosekunden.

Dieser Zeitskalenvergleich zeigt, daß das beobachtete Sättigungsverhalten der Photoassoziationssignale auf die Intensitätsabhängigkeit der Photoassoziationsrate zurückzuführen ist.

7.3 Auswerteverfahren

Zur quantitativen Untersuchung des Photoassoziationsprozesses ist eine genaue Analyse der Signalgrößen und der Signalformen erforderlich. Dies soll durch Anpassung einer geeigneten Funktion an die Daten erfolgen. Durch folgende Annahmen kann für diese ein einfacher Ausdruck gefunden werden:¹

Es muß berücksichtigt werden, daß die experimentell beobachtete Gleichgewichtsteilchenzahl N_7 in nichtlinearer Weise von der Photoassoziationsrate β_{PA} abhängt. Dies wird durch Gl. 2.59 beschrieben, deren Verwendung durch obige Überlegungen gerechtfertigt ist. Wenn man in Betracht zieht, daß sich die Gleichgewichtsteilchenzahl ohne Einfluß des Photoassoziationslasers, $N_{7,0}$, als das Verhältnis aus Laderate L_7 und Verlustrate durch Stöße mit Atomen aus dem Atomstrahl, α_7 , ergibt, also $N_{7,0} = L_7/\alpha_7$, läßt sich Gl. 2.59 auch folgendermaßen schreiben:

$$N_7 = \frac{N_{7,0}}{1 + \beta_{\text{PA}}/\alpha_7}. \quad (7.1)$$

Für die Photoassoziationsrate β_{PA} nehmen wir eine lorentzförmige Abhängigkeit von der Laserfrequenz f an. Mit den Bezeichnungen f_{res} für die Resonanzfrequenz und

¹Im Rahmen dieser Arbeit wurde ferner ein Computerprogramm entwickelt, das eine Anpassung an die Daten gemäß der ausführlichen Theorie von Bohn und Julienne [Boh99, Jon99] ermöglicht. Dabei werden insbesondere auch Asymmetrien in den Signalformen aufgrund der thermischen Mittelung beschrieben. Bei der Auswertung hat sich jedoch herausgestellt, daß die gemessenen Linienformen diese Asymmetrien nicht aufweisen. Damit ist die Verwendung eines wesentlich einfacheren Modells gerechtfertigt.

γ_{Lor} für die Linienbreite und mit dem Proportionalitätsfaktor a hat die Photoassoziationsrate β_{PA} die folgende Form:

$$\beta_{\text{PA}} = \frac{a}{(f - f_{\text{res}})^2 + \gamma_{\text{Lor}}^2/4}. \quad (7.2)$$

Durch Einsetzen von Gl. 7.2 in Gl. 7.1 erhält man folgenden frequenzabhängigen Ausdruck für die Gleichgewichtsteilchenzahl N_7 :

$$N_7 = \frac{N'_{7,0}(1 - cf)}{1 + a/[\alpha_7((f - f_{\text{res}})^2 + \gamma_{\text{Lor}}^2/4)]}. \quad (7.3)$$

Für die Gleichgewichtsteilchenzahl ohne Einfluß des Photoassoziationslasers, $N_{7,0}$, wird eine lineare Abhängigkeit von der Frequenz f gemäß $N_{7,0} = N'_{7,0}(1 - cf)$ zugelassen. Dabei gehen ein Proportionalitätsfaktor c und die (hypothetische), zur Frequenz Null extrapolierte Gleichgewichtsteilchenzahl $N'_{7,0}$ ein. Dadurch werden rein formal sowohl langsame Driften in der Laderate L_7 während des Durchstimmens der Laserfrequenz als auch ein partieller Überlapp der verschiedenen Linien bei hohen Intensitäten berücksichtigt.

Insgesamt ergibt sich für die Gleichgewichtsteilchenzahl N_7 ein Ausdruck mit fünf Anpassungsparametern: $N'_{7,0}$, c , a/α_7 , f_{res} , γ_{Lor} . Zur Auswertung wurde aus den einzelnen Spektren jeweils ein geeigneter Frequenzbereich mit der zu untersuchenden Linie ausgeschnitten. In diesem Bereich wurde dann die Funktion 7.3 an die Daten angepaßt.

Für die Resonanzen (a) und (b) werden die Daten bis zu Intensitäten von 450 W/cm^2 durch die Anpassungsfunktion ausreichend gut repräsentiert, für die Resonanzen (c) und (d) bis zu Intensitäten von 600 W/cm^2 . Dies wird in Abb. 7.2 demonstriert, in der die Daten, die resultierenden Anpassungsfunktionen sowie die jeweiligen Residuen exemplarisch für die Übergänge (a) und (c) und jeweils zwei extreme Intensitäten dargestellt sind. In diesem Intensitätsbereich sind die Linien ausreichend symmetrisch, und ein partieller Überlapp der verschiedenen Linien ist klein. Für höhere Intensitäten ist dies nicht mehr gültig (vgl. Abb. 7.1), und die Daten können durch die Anpassungsfunktion nicht mehr gut beschrieben werden. Aus diesem Grund werden für die Auswertung nur die Spektren bis zu den oben erwähnten Intensitäten berücksichtigt. Für die verschiedenen Intensitäten liegen jeweils bis zu vier Spektren vor. Aus den extrahierten Werten für a/α_7 , f_{res} und γ_{Lor} werden für eine feste Intensität die jeweiligen Mittelwerte gebildet, und die entsprechenden statistischen Fehler werden berechnet. In dem Fall, daß für eine Intensität nur ein Spektrum vorliegt, wird der entsprechende Fehler als Mittelwert aus den Fehlern bei der nächstniedrigeren und nächsthöheren Intensität abgeschätzt.

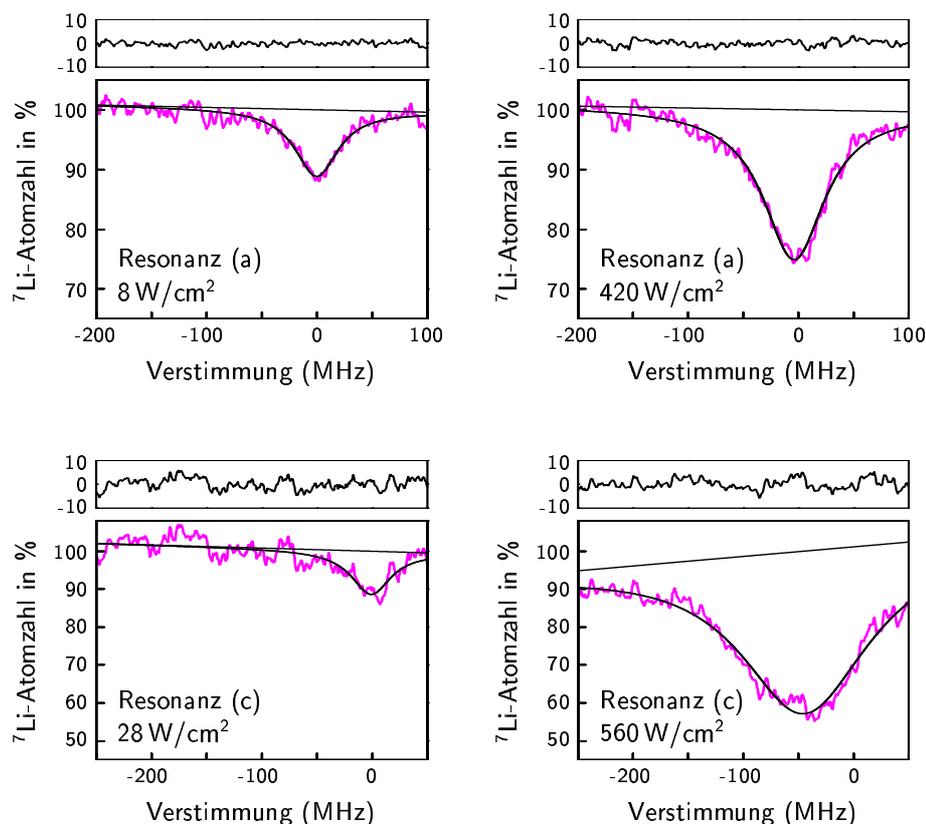


Abbildung 7.2: Spektrum, Anpassungsfunktion und Residuum für die Resonanzen (a) (obere Zeile) und (c) (untere Zeile) bei jeweils zwei extremen Intensitäten des Photoassoziationslasers. Die Frequenzachse ist relativ zu der unverschobenen Resonanzposition angegeben.

7.4 Lichtverschiebung und Linienverbreiterung

Die verschiedenen Resonanzen weisen eine Lichtverschiebung (Kap. 7.4.1) und eine Linienverbreiterung (Kap. 7.4.2) auf. Diese beiden Effekte sind durch die starke Laserstrahlfokussierung miteinander verknüpft (Kap. 7.4.3). Die Untersuchung der Lichtverschiebung und der Linienverbreiterung sowie deren Zusammenhang ist für die quantitative Auswertung von Photoassoziationsspektren allgemein von Bedeutung. Für das Studium der Sättigung der Photoassoziationsrate stellen sie nicht zu vernachlässigende systematische Effekte dar.

7.4.1 Lichtverschiebung

Die Lichtverschiebung (vgl. Kap. 2.2.3) läßt sich aus den absoluten Resonanzfrequenzen f_{res} ermitteln, die durch Vergleich mit einem Jodspektrum gemessen wurden. Für eine gegebene Intensität ist die Lichtverschiebung gleich der Differenz aus gemessener Frequenz und der Frequenz bei verschwindender Intensität. In Abb. 7.3 ist

die jeweilige Lichtverschiebung in Abhängigkeit von der Laserintensität für die vier verschiedenen Hyperfeinkomponenten dargestellt. Der Referenzwert bei verschwindender Intensität wurde nachträglich durch Extrapolation bestimmt. Es ist deutlich zu erkennen, daß für alle vier Übergänge die Lichtverschiebung mit zunehmender Intensität zunimmt, wenn auch mit unterschiedlichem Verlauf. Mit anwachsender Intensität werden die Resonanzfrequenzen rotverschoben.

Für die Resonanzen (c) und (d) verläuft diese Lichtverschiebung über den gesamten untersuchten Intensitätsbereich annähernd linear. Die Steigungen lassen sich durch Anpassung zu $-76 \text{ kHz}\cdot\text{cm}^2/\text{W}$ für die Resonanz (c) und zu $-83 \text{ kHz}\cdot\text{cm}^2/\text{W}$ für die Resonanz (d) bestimmen. Für die Resonanzen (a) und (b) scheint die Lichtverschiebung bei kleinen Intensitäten annähernd linear zu verlaufen und dann zu sättigen. Für den annähernd linearen Bereich lassen sich die Steigungen unter Berücksichtigung der Datenpunkte für Intensitäten zwischen $2.8 \text{ W}/\text{cm}^2$ und $28 \text{ W}/\text{cm}^2$ zu $-249 \text{ kHz}\cdot\text{cm}^2/\text{W}$ für die Resonanz (a) und zu $-217 \text{ kHz}\cdot\text{cm}^2/\text{W}$ für die Resonanz (b) bestimmen. Aus den Extrapolationen ergeben sich für die unverschobenen Resonanzen Frequenzabstände von 231 MHz für die Übergänge (a)-(b), 222 MHz für (c)-(d), 804 MHz für (a)-(c) und 796 MHz für (b)-(d). Diese Werte stimmen innerhalb von

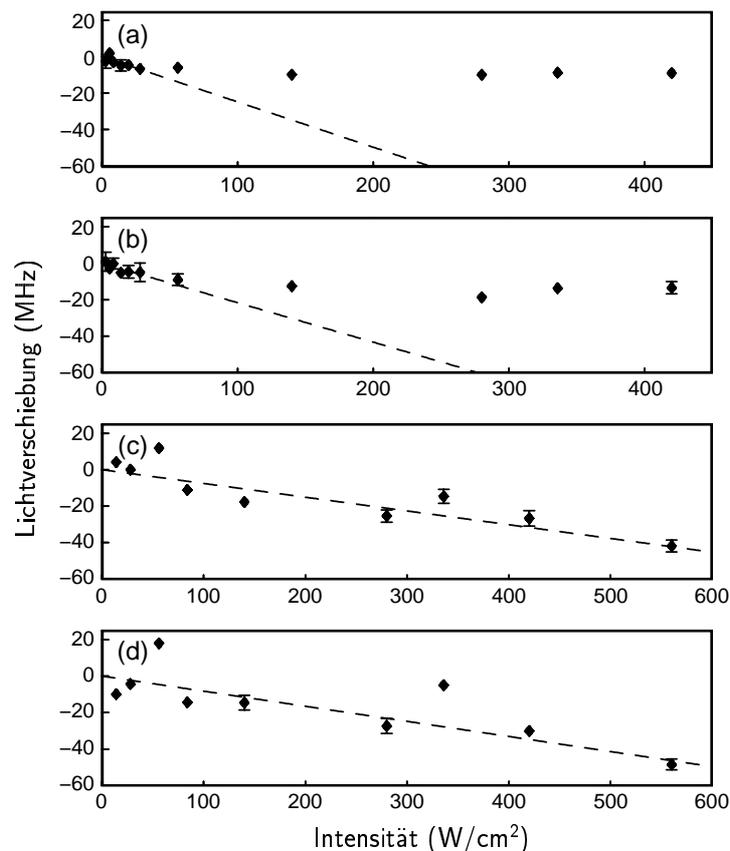


Abbildung 7.3: Lichtverschiebung als Funktion der Laserintensität für die vier Hyperfeinübergänge. Die gestrichelten Linien markieren die Anpassungen im linearen Bereich.

8 MHz mit den entsprechenden Hyperfeinaufspaltungen überein und bestätigen damit die gute Qualität von Messung und Auswertung.

Zur Erklärung dieser Intensitätsabhängigkeit müssen folgende Gesichtspunkte in Betracht gezogen werden. Für ein Zwei-Niveau-System und eine diskrete Streuenergie sollte die Lichtverschiebung gemäß Gl. 2.36 linear von der Intensität abhängen. Dieses lineare Verhalten bleibt für ausreichend symmetrische Kurven durch die thermische Mittelung erhalten, da die Lichtverschiebung näherungsweise unabhängig von der Streuenergie ist. Die Mittelung über die verschiedenen Zustände sollte an dem Verhalten ebenfalls nichts ändern, solange die Gewichtung der verschiedenen Beiträge erhalten bleibt, d. h. solange noch keine Sättigung auftritt. Eine starke Laserstrahlfokussierung jedoch kann sich entscheidend auf die Lichtverschiebung auswirken und zu einer Abweichung vom linearen Verhalten mit sättigendem Charakter führen, wie für die Übergänge (a) und (b) beobachtet. Dieser Einfluß wird im übernächsten Abschnitt ausführlich beschrieben.

7.4.2 Linienverbreiterung

Die als Anpassungsparameter bestimmten Linienbreiten γ_{Lor} sind in Abb. 7.4 in Abhängigkeit von der Laserintensität für die vier verschiedenen Hyperfeinkomponenten aufgetragen. Je nach betrachtetem Übergang ergeben sich unterschiedliche Werte für verschwindende Intensität sowie unterschiedliche Intensitätsverläufe. Alle gemessenen Linienbreiten liegen im Bereich zwischen 30 und 100 MHz.

Die Linienbreite für verschwindende Intensität erhält man durch lineare Extrapolation der Datenpunkte im Bereich kleiner Intensitäten (bis 56 W/cm^2 für (a) und (b), bis 280 W/cm^2 für (c) und bis 420 W/cm^2 für (d), jeweils unter Vernachlässigung stark abweichender Datenpunkte). Die resultierenden Werte betragen 51, 45, 33 und 40 MHz für die Resonanzen (a)–(d). Für große Intensitäten zeigen die Linienbreiten der Resonanzen (a) und (b) eine Abweichung vom linearen Verhalten zu kleineren Breiten. Die Werte für die Resonanzen (c) und (d) verlaufen annähernd linear mit einer tendenziellen Abweichung zu größeren Breiten. Die bestimmten Steigungen liegen im Bereich von $(50\text{--}100) \text{ kHz}\cdot\text{cm}^2/\text{W}$ und damit in der Größenordnung der Steigungen der Lichtverschiebung.

Die Linienbreiten für Null Intensität setzen sich aus folgenden Beiträgen zusammen:

- natürliche Linienbreite γ :
Diese kann zu etwa 12 MHz abgeschätzt werden (vgl. Kap. 2.2.3).
- thermische Verbreiterung:
Die Temperatur von 0.5 mK [Sch98b] entspricht einer Verbreiterung von ca. 10 MHz.
- nicht-aufgelöste Hyperfeinstruktur des angeregten Zustands:
Der angeregte Zustand ist 6-fach hyperfeinaufgespalten [Tie01]. Die Energie-

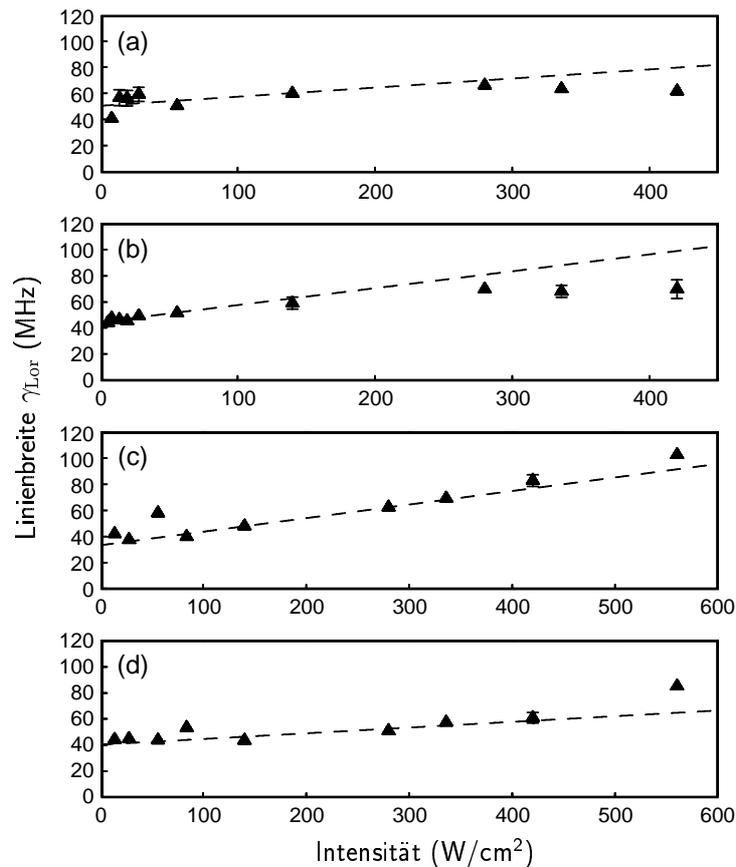


Abbildung 7.4: Linienbreite γ_{Lor} als Funktion der Laserintensität für die vier Hyperfeinübergänge. Die gestrichelten Linien markieren die Anpassungen im linearen Bereich.

abstände zwischen den verschiedenen Hyperfeinniveaus sind von der Lage der gebundenen Zustände in den jeweiligen Potentialen abhängig und bislang noch nicht berechnet. Die gesamte Hyperfeinaufspaltung sollte jedoch im Rahmen von einigen 10 MHz liegen. Für eine bestimmte Photoassoziationsresonanz ist der effektive Beitrag zur Verbreiterung durch die nicht-aufgelöste Hyperfeinstruktur von den beteiligten Hyperfeinniveaus abhängig.

Die intensitätsabhängige Linienverbreiterung ist durch folgende Effekte bestimmt:

- ortsabhängige Lichtverschiebung:
Die ortsabhängige Intensitätsverteilung innerhalb des Laserstrahlprofils führt zu einer ortsabhängigen Lichtverschiebung und damit zu einer ortsabhängigen Resonanzfrequenz. Die resultierende Linienverbreiterung ist intensitätsabhängig. Dieser Beitrag liefert vermutlich den dominierenden Anteil zur gesamten intensitätsabhängigen Linienverbreiterung. Dieser Aspekt wird im nächsten Abschnitt diskutiert.

- hyperfeinstrukturabhängige Lichtverschiebung:
Die sechs Hyperfeinzustände des angeregten Zustands können eine unterschiedliche Lichtverschiebung aufweisen. Infolgedessen können sich die Resonanzfrequenzen mit zunehmender Intensität unterschiedlich verschieben und den Übergang verbreitern.
- induzierte Prozesse:
Eine Sättigung des Übergangs aufgrund induzierter Prozesse führt zu Leistungsverbreiterung.

Der Intensitätsverlauf der gesamten Linienbreite γ_{Lor} ist von den Intensitätsverläufen der verschiedenen Beiträge abhängig. Dies kann zu einer komplizierten Abhängigkeit von der Laserintensität führen.

7.4.3 Einfluß der Laserstrahlfokussierung

Zur Erklärung der durch die Laserstrahlfokussierung entstehenden systematischen Effekte genügt es zunächst einfachheitshalber, die Photoassoziation an einem Zwei-Niveau-System mit diskreter Energie E zu betrachten. Die Intensitätsverteilung des Laserstrahls sei senkrecht zur Strahlachse als gaußförmig mit einem bestimmten $1/e^2$ -Radius w und parallel zur Strahlachse als homogen angenommen. Sowohl für die Lichtverschiebung als auch für die Linienverbreiterung ergibt sich somit eine gaußförmige Ortsabhängigkeit senkrecht zu Strahlachse. Damit erhält man für verschiedene Abstände r von der Strahlachse unterschiedliche differentielle Streuwahrscheinlichkeiten. Deren Lage und Höhe des Maximums sowie deren Breite hängen vom Ort ab. Die Streuwahrscheinlichkeit $|S|^2$ ist dann das Ortsintegral über die ortsabhängige differentielle Streuwahrscheinlichkeit. Dieses lautet:

$$|S|^2 = \frac{1}{\pi w^2} \int_0^\infty \frac{2\gamma\Gamma \exp(-2r^2/w^2)}{[E + \Delta - 2E_1 \exp(-2r^2/w^2)]^2 + [(\gamma + 2\Gamma \exp(-2r^2/w^2))/2]^2} 2\pi r dr. \quad (7.4)$$

Dabei berücksichtigen der Vorfaktor $1/\pi w^2$ und die Faktoren 2 vor der induzierten Linienbreite Γ und der Lichtverschiebung E_1 die Tatsache, daß bei gegebener Laserleistung eine homogene Intensitätsverteilung über eine Kreisscheibe mit dem Radius w einer gaußschen Intensitätsverteilung mit der doppelten Spitzenintensität und dem $1/e^2$ -Radius von w entspricht. Auf diese Weise läßt sich die integrierte ortsabhängige Streuwahrscheinlichkeit direkt mit der ortsunabhängigen vergleichen. Zur Veranschaulichung der Situation dient Abb. 7.5. Dargestellt ist für vier verschiedene Laserleistungen jeweils die Streuwahrscheinlichkeit, die sich bei Annahme einer homogenen Intensitätsverteilung ergibt (gestrichelte Linie), im Vergleich zur Streuwahrscheinlichkeit, die sich bei Annahme einer ortsabhängigen Intensitätsverteilung ergibt (durchgezogene Linie, große Kurve). Die ortsunabhängige Streuwahrscheinlichkeit bleibt mit zunehmender Intensität stets lorentzförmig, ihr Maximum verschiebt sich, und ihre Breite wird aufgrund von Leistungsverbreiterung größer. Im

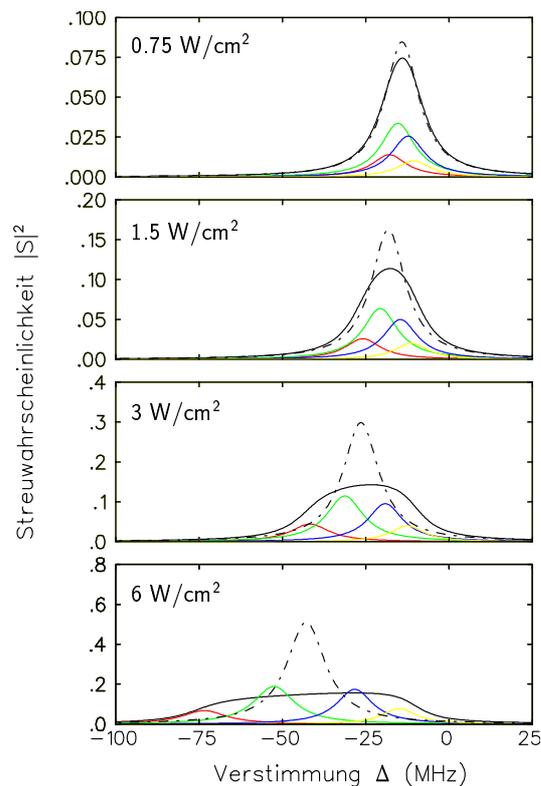


Abbildung 7.5: Simulation zur Demonstration des Einflusses der Laserstrahlfokussierung. Ortsintegrierte Streuwahrscheinlichkeit (durchgezogene Linie) und Beiträge der verschiedenen Zylinderschalen (kleine Kurven, mit $r = 20, 70, 120, 170 \mu\text{m}$ bei $w = 150 \mu\text{m}$) in Abhängigkeit von der Laserverstimmung für vier verschiedene Laserleistungen. Die Intensitätsangaben beziehen sich auf die entsprechenden mittleren Intensitäten. Die gestrichelte Linie markiert jeweils die entsprechende Streuwahrscheinlichkeit bei homogener Intensitätsverteilung. Dargestellt sind die Ergebnisse einer Rechnung für $E/k_B = 0.5 \text{ mK}$. Für die Intensitätsabhängigkeit der induzierten Rate und der Lichtverschiebung wurden die gleichen theoretischen Werte wie in Abb. 2.6 angenommen.

Gegensatz dazu weist die ortsintegrierte Streuwahrscheinlichkeit mit zunehmender Intensität Asymmetrien auf. Die Verschiebung der Maxima ist geringer und scheint mit zunehmender Intensität zu sättigen. Darüberhinaus sind die Maximalwerte kleiner, die Breiten dagegen größer.

Dieses Verhalten läßt sich durch Betrachtung der Beiträge erklären, die die verschiedenen differentiellen Streuwahrscheinlichkeiten zur gesamten Streuwahrscheinlichkeit liefern. Dazu sind für die verschiedenen mittleren Intensitäten jeweils die differentiellen Streuwahrscheinlichkeiten für vier verschiedene Orte innerhalb des Strahlprofils eingezeichnet. Die Kurven sind jeweils mit dem Abstand r gewichtet. Die einzelnen Kurven sind jeweils mit dem Abstand r gewichtet. Die einzelnen Kurven sind lorentzförmig. Für kleine Abstände r ist die Lichtverschiebung und die Verbreiterung groß, folglich sind die Lorentzkurven zu großen Verstimmungen verschoben und breit. Für größere Abstände werden die einzelnen

Lorentzkurven demzufolge weniger stark verschoben und sind weniger breit. Für eine bestimmte Intensität ergibt sich, daß die Summenkurve gegenüber der ortsunabhängigen Streuwahrscheinlichkeit verbreitert und abgeflacht erscheint, und daß bei hohen Intensitäten zusätzlich Asymmetrien auftreten können.

Bei der Betrachtung der Intensitätsabhängigkeit der integrierten Streuwahrscheinlichkeit ist es nun entscheidend, daß die relative Gewichtung der Kurven intensitätsabhängig ist. Die bei großen Abständen r liegenden differentiellen Streuwahrscheinlichkeiten sättigen erst bei höheren Intensitäten als die bei kleinen Abständen r liegenden differentiellen Streuwahrscheinlichkeiten. Dies führt dazu, daß mit zunehmender Intensität der Beitrag der bei großen Abständen liegenden Streuwahrscheinlichkeiten mit geringer Lichtverschiebung das Verhalten der integrierten Streuwahrscheinlichkeit immer stärker dominiert. Je kleiner die Sättigungsintensität ist, desto eher tritt dieses Verhalten auf. Die integrierte Streuwahrscheinlichkeit kann infolgedessen eine sättigende Lichtverschiebung aufweisen. Die Intensitätsabhängigkeit der Lichtverschiebung sollte sich in der Intensitätsabhängigkeit des Anteils an der Linienverbreiterung widerspiegeln, der durch diese ortsabhängige Lichtverschiebung verursacht wird.

Dieses Verhalten scheint sich in den Intensitätsverläufen von Lichtverschiebung und Linienbreite für die vier untersuchten Resonanzen zu bestätigen. Mit der begrenzten Lichtverschiebung für die Übergänge (a) und (b) geht eine Abweichung der Linienverbreiterung vom linearen Verhalten einher. Entsprechend scheinen für die Übergänge (c) und (d) beide Größen weitestgehend linear zu verlaufen. Aus dieser Beobachtung läßt sich schließen, daß die ortsabhängige Lichtverschiebung den dominierenden Anteil an der intensitätsabhängigen Linienverbreiterung liefert.

7.5 Sättigung der Photoassoziationsrate

Die Intensitätsabhängigkeit der Photoassoziationsrate β_{PA} ist nicht nur durch die induzierte Rate Γ bestimmt (vgl. Kap 2.2.3), sondern auch durch systematische Effekte. Diese können durch Einführung einer korrigierten Photoassoziationsrate $\beta_{\text{PA},0}$ berücksichtigt werden. Für zwei der vier Hyperfeinübergänge zeigt die korrigierte Rate Sättigung (Kap. 7.5.1). Aus dem Intensitätsverlauf der korrigierten Photoassoziationsrate können die Sättigungsintensität und der Wert des Ratenkoeffizienten im unitären Limit bestimmt werden (Kap. 7.5.2).

7.5.1 Einführung der korrigierten Rate

Bei dem Studium der Intensitätsabhängigkeit der Photoassoziationsrate muß folgendes beachtet werden: Durch die ortsabhängige Lichtverschiebung und durch die hyperfeinstrukturabhängige Lichtverschiebung kann die Frequenzabhängigkeit der Photoassoziationsrate stark beeinflusst werden. Bei gemäßigten Intensitäten wird

die näherungsweise lorentzförmige Kurve (vgl. Gl. 7.2) verbreitert und abgeflacht, bei sehr hohen Intensitäten treten zusätzlich Asymmetrien auf. Dies spiegelt sich in der Form der Photoassoziationssignale wider. Zur Untersuchung der Intensitätsabhängigkeit der Photoassoziationsrate genügt es daher nicht, die extrahierbaren Maximalraten auf Resonanz zu betrachten, da durch die Abflachung der Kurve eine Sättigung vorgetäuscht werden kann. Unter der Annahme, daß unter den systematischen Verbreiterungsmechanismen die frequenz-integrierte Photoassoziationsrate erhalten bleibt (Diskussion in Kap. 7.5.2), kann jedoch die Fläche der Photoassoziationsrate als Funktion der Laserintensität untersucht werden. Deren Intensitätsabhängigkeit ist nur durch induzierte Prozesse bestimmt.

Für den Bereich gemäßigter Laserintensitäten, in dem die Photoassoziationsrate β_{PA} näherungsweise eine lorentzförmige Abhängigkeit von der Frequenz aufweist, ist die Fläche proportional zum Produkt aus Maximalrate $4a/\gamma_{\text{Lor}}^2$ und Halbwertsbreite γ_{Lor} (vgl. Gl. 7.2). Zur besseren Veranschaulichung und zum einfacheren Vergleich ist es günstig, in Anlehnung an die Literatur [McK02] die Fläche in Form einer Rate anzugeben. Aus diesem Grund wird eine korrigierte Photoassoziationsrate $\beta_{\text{PA},0}$ eingeführt gemäß

$$\beta_{\text{PA},0} = \frac{4a}{\gamma_{\text{Lor}}^2} \frac{\gamma_{\text{Lor}}}{\gamma_{\text{I}=0}}. \quad (7.5)$$

Für die unverbreiterten Halbwertsbreiten $\gamma_{\text{I}=0}$ werden die durch Extrapolation der Linienbreiten bestimmten Werte (vgl. Kap. 7.4.2) eingesetzt. Diese korrigierte Photoassoziationsrate $\beta_{\text{PA},0}$ entspricht der Maximalrate der jeweiligen Fläche in Abwesenheit von allen intensitätsabhängigen Verbreiterungsmechanismen, sowohl aufgrund systematischer Effekte als auch aufgrund induzierter Prozesse. Infolge der Proportionalität der korrigierten Photoassoziationsrate zur Fläche ist ihre Intensitätsabhängigkeit nur durch induzierte Prozesse bestimmt.

Die auf diese Weise extrahierten korrigierten Photoassoziationsraten $\beta_{\text{PA},0}$ sind in Abb. 7.6 für die vier Hyperfeinlinien dargestellt. Für die beiden Hyperfeinübergänge (c) und (d) ist in dem betrachteten Intensitätsbereich ein linearer Anstieg der Photoassoziationsrate² mit der Intensität zu erkennen. Zum Vergleich sind zusätzlich die unkorrigierten Raten $4a/\gamma_{\text{Lor}}^2$ dargestellt, die eine Sättigung vortäuschen. Für die beiden Hyperfeinkomponenten (a) und (b) hingegen ist eine deutliche Sättigung der Photoassoziationsrate vorhanden.

Die Ursache für die Sättigung der Photoassoziationsrate könnte nun in einer Reduktion der ${}^6\text{Li}$ -Dichte n_6 oder in einer Sättigung des Ratenkoeffizienten K liegen (vgl. Gl. 2.60). Denkbar wären ein lokales Ausbleichen der ${}^6\text{Li}$ -Dichte am Ort des Photoassoziationslasers durch eine begrenzte Diffusion der Atome in das Photoassoziationsvolumen oder ein globales Ausbleichen der ${}^6\text{Li}$ -Dichte durch ein begrenztes Nachladen. Ersteres kann aufgrund der unterschiedlichen Zeitskalen der Diffusi-

²Im Folgenden wird der Einfachheit halber die korrigierte Photoassoziationsrate häufig als Photoassoziationsrate bezeichnet. Dabei wird stillschweigend angenommen, daß diese um die systematischen Effekte korrigiert wurde.

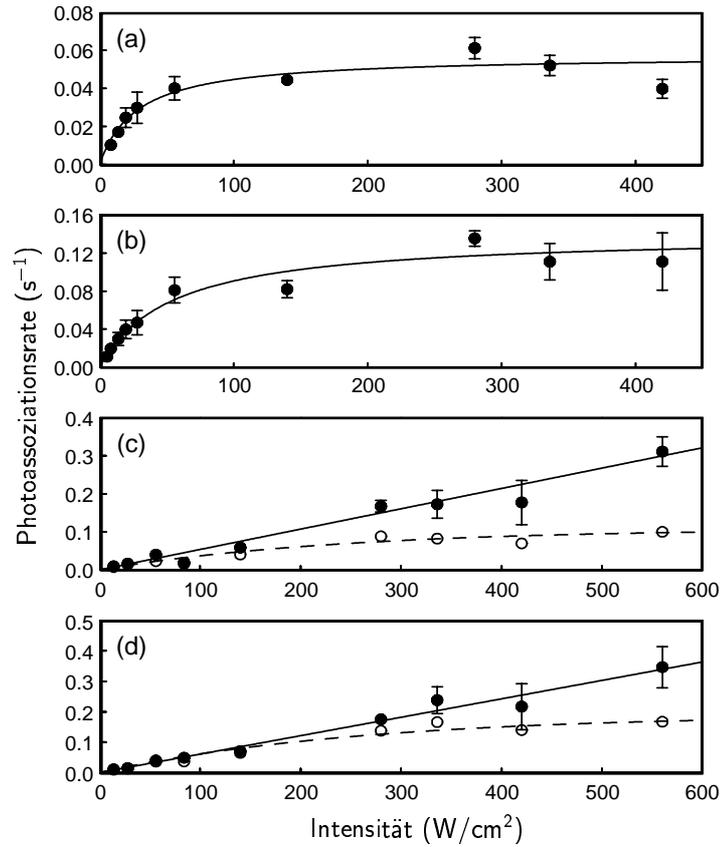


Abbildung 7.6: Photoassoziationsrate als Funktion der Laserintensität für die vier Hyperfeinübergänge. Die unausgefüllten Punkte repräsentieren die unkorrigierten Raten.

onsvorgänge und der Verluste durch Photoassoziaton ausgeschlossen werden (vgl. Kap. 7.2). Letzteres ist aufgrund der im Vergleich zur ${}^7\text{Li}$ -Dichte wesentlich höheren ${}^6\text{Li}$ -Dichte nicht möglich. Folglich muß die Sättigung der Photoassoziationsrate auf eine Sättigung des Ratenkoeffizienten K zurückzuführen sein.

7.5.2 Sättigungsintensität und unitäres Limit

Modell

Zur Beschreibung der Intensitätsabhängigkeit der korrigierten Photoassoziationsrate muß nach einem geeigneten Modell gesucht werden. Unser Modell basiert auf der Theorie von Bohn und Julienne (vgl. Kap. 2.2.3), das heißt, es nimmt ein Zwei-Niveau-System und eine diskrete Streuenergie an. Damit läßt sich zunächst ein Ausdruck für die korrigierte Streuwahrscheinlichkeit $|S|_0^2$ angeben. Diese ist analog zu Gl. 7.5 definiert. Aus Gl. 2.28 für das Maximum der Streuwahrscheinlichkeit $|S|^2$ folgt durch Multiplikation mit dem Breitenverhältnis $(\gamma + \Gamma)/\gamma$:

$$|S|_0^2 = \frac{4\Gamma}{(\gamma + \Gamma)}. \quad (7.6)$$

Die korrigierte Streuwahrscheinlichkeit $|S|_0^2$ weist folgende Intensitätsabhängigkeit auf:

$$|S|_0^2 = \frac{4}{1 + I_{\text{sat}}/I}. \quad (7.7)$$

Dabei wird die Sättigungsintensität I_{sat} als die Intensität bezeichnet, bei der die induzierte Rate Γ gleich groß wie die spontane Zerfallsrate γ ist.

Im Fall von s -Wellen-Streuung erhält man für den korrigierten Ratenkoeffizienten K_0 (vgl. Gl. 2.26):

$$K_0 = \frac{\pi v}{k^2} \frac{4}{1 + I_{\text{sat}}/I}. \quad (7.8)$$

Dabei ist v die Geschwindigkeit und k der Wellenvektor der Relativbewegung. Diese Intensitätsabhängigkeit überträgt sich auf die experimentell zugängliche korrigierte Photoassoziationsrate $\beta_{\text{PA},0}$:

$$\beta_{\text{PA},0} = \frac{\bar{\beta}_{\text{PA},0}}{1 + I_{\text{sat}}/I}, \quad (7.9)$$

mit dem Sättigungswert $\bar{\beta}_{\text{PA},0}$ gemäß

$$\bar{\beta}_{\text{PA},0} = 4\bar{K}rwn_6. \quad (7.10)$$

Dies folgt aus der Proportionalität zwischen dem Ratenkoeffizienten K und der Photoassoziationsrate β_{PA} (vgl. Gl. 2.60) und der Tatsache, daß im Grenzfall hoher Intensitäten der korrigierte Ratenkoeffizient K_0 das Vierfache des Sättigungswertes \bar{K} des unkorrigierten Ratenkoeffizienten beträgt. Ferner gehen die ${}^6\text{Li}$ -Dichte n_6 , der Faktor w , der die relative Population der Hyperfeingrundzustände beschreibt, und der Überlappfaktor r ein.

Für die Resonanzen (a) und (b) wird die Funktion 7.9 an die Daten angepaßt, und es werden die Anpassungsparameter $\bar{\beta}_{\text{PA},0}$ und I_{sat} bestimmt.

Sättigungsintensität

Für die Sättigungsintensität resultieren die Werte

$$I_{\text{sat}} = 28 \text{ W/cm}^2 \quad \text{für Übergang (a)}$$

und

$$I_{\text{sat}} = 54 \text{ W/cm}^2 \quad \text{für Übergang (b)}.$$

Eine theoretische Abschätzung von P. S. Julienne [Jul02a] für ein Zwei-Niveau-System bei einer Energie von $E/k_{\text{B}} = 0.5 \text{ mK}$ ergibt für die induzierte Rate $\Gamma = (33Id^2) \text{ kHz}$. Dabei ist I die Laserintensität in W/cm^2 und d das molekulare Dipolmoment in atomaren Einheiten ($=2.34$ für ein Atom). Unter der Annahme, daß das molekulare Dipolmoment das $\sqrt{2}$ -fache des atomaren Dipolmoments beträgt, und

unter der Annahme einer spontanen Zerfallsrate von 12 MHz, ergibt sich hieraus eine Sättigungsintensität von 33 W/cm^2 . Die gemessenen Sättigungsintensitäten stimmen mit der theoretischen Abschätzung gut überein.

Damit betragen die gemessenen Sättigungsintensitäten etwa das 10^4 -fache der Sättigungsintensität eines atomaren Übergangs. Dort liegen die Werte typischerweise bei einigen mW/cm^2 [Met99].

Unitäres Limit

Für die korrigierten Photoassoziationsraten im Grenzfall hoher Intensitäten, $\bar{\beta}_{\text{PA},0}$, ergeben sich als Anpassungsparameter Werte von 0.06 s^{-1} für Resonanz (a) und 0.14 s^{-1} für Resonanz (b).

Aus diesen Werten können gemäß Gl. 7.10 die entsprechenden Ratenkoeffizienten für hohe Intensitäten berechnet werden. Dazu nehmen wir für die ${}^6\text{Li}$ -Dichte einen Wert von 10^{10} cm^{-3} an. Zur Abschätzung des Gewichtungsfaktors w legen wir eine statistische Besetzung der atomaren Grundzustands-Hyperfeinzustände zugrunde. Die absolute Gesamtzahl an Zuständen für einen bestimmten Grundzustandskanal entspricht dann dem Produkt aus der Anzahl der beteiligten ${}^6\text{Li}$ -Hyperfeinzustände und der beteiligten ${}^7\text{Li}$ -Hyperfeinzustände. Die relative Gesamtzahl an Zuständen ergibt den Gewichtungsfaktor w . Es resultieren Werte von 0.42 für den Übergang (a) und von 0.21 für den Übergang (b) (vgl. Tab. 7.1). Der Überlappfaktor r ergibt sich durch Faltung der gaußförmigen Dichteverteilungen der atomaren Wolken mit der des Laserstrahls. Aus den gemessenen $1/e^2$ -Durchmessern für die ${}^6\text{Li}$ -Dichteverteilung von $r_6 = 1.7 \text{ mm}$, für die ${}^7\text{Li}$ -Dichteverteilung von $r_7 = 1.1 \text{ mm}$ und für den Laserstrahl von $r_L = 0.3 \text{ mm}$ berechnet sich der Korrekturfaktor zu $r = 0.22$.³ Somit erhalten wir für den gesättigten Ratenkoeffizienten K einen Wert von $2 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ für den Übergang (a) und von $8 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ für den Übergang (b).

Das unitäre Limit ist durch eine Streuwahrscheinlichkeit von $|S|^2 \rightarrow 1$ gekennzeichnet (gesättigter Fall). In diesem Grenzfall ist der Ratenkoeffizient K als Produkt aus dem Streuquerschnitt π/k^2 und der Relativgeschwindigkeit v gegeben. Bei einer Temperatur von 0.5 mK ergibt sich der Streuquerschnitt zu $2.4 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^{-2}$ und die Relativgeschwindigkeit zu 230 cm/s , wodurch sich der Ratenkoeffizient zu $5 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ abschätzen läßt. Damit sind die gemessenen Werte für den Ratenkoeffizienten zwar kleiner, aber bereits in der Nähe des theoretischen Werts für das unitäre Limit.

³Unter Annahme von drei dreidimensionalen Gaußschen Verteilungen berechnet sich der Korrekturfaktor näherungsweise gemäß folgender Formel:

$$r = \frac{r_6}{\sqrt{r_7^2 + r_6^2}} \cdot \frac{r_L}{\sqrt{r_7^2 + r_L^2}}. \quad (7.11)$$

Übergang	Anzahl Zustände ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$	w
(a)	$4 \cdot 5 = 20$	0.42
(b)	$2 \cdot 5 = 10$	0.21
(c)	$4 \cdot 3 = 12$	0.25
(d)	$2 \cdot 3 = 6$	0.13

Tabelle 7.1: Gewichtungsfaktoren w und deren Berechnung für die Übergänge (a)–(d).

Diskussion

Das Modell stellt hinsichtlich dreier Aspekte eine starke Vereinfachung dar. Diese werden im Folgenden kurz diskutiert.

- Energieabhängigkeit:

Der Ausdruck 7.8 beschreibt die Intensitätsabhängigkeit des korrigierten Ratenkoeffizienten K_0 für eine diskrete Streuenergie E . Er beinhaltet nicht die eigentlich erforderliche thermische Mittelung gemäß Gl. 2.41 aufgrund der tatsächlichen Energieverteilung. Die verschiedenen Energiebeiträge weisen jeweils einen spezifischen Sättigungswert und eine spezifische Sättigungsintensität auf, die durch die thermische Mittelung in gemittelten Werten resultieren. Zur Untersuchung des Einflusses der thermischen Mittelung wurden für den korrigierten Ratenkoeffizienten zahlreiche numerische Rechnungen durchgeführt. Die Ergebnisse wurden mit denen des obigen Modells, unter Annahme einer entsprechenden Energie $E = k_B T$, verglichen. Es stellt sich heraus (vgl. Abb. 7.7, links), daß die Fläche des korrigierten Ratenkoeffizienten, also entsprechend die korrigierte Photoassoziationsrate, das gleiche typische Sättigungsverhalten mit annähernd der gleichen Sättigungsintensität aufweist. Für den Sättigungswert stellt sich ein um den Faktor 1.5 höherer Wert ein, der jedoch im Folgenden vernachlässigt wird.

- Ortsabhängigkeit:

In dem Modell wird eine homogene Intensitätsverteilung angenommen. Experimentell treten jedoch starke Inhomogenitäten aufgrund der Fokussierung des Laserstrahls auf. Die durch diese ortsabhängige Intensitätsverteilung entstehenden systematischen Effekte wurden bereits in Kap. 7.4 ausführlich behandelt. In diesem Zusammenhang ist nun die Intensitätsabhängigkeit der Fläche bei fokussiertem Laserstrahl im Vergleich zu unfokussiertem Laserstrahl unter der Annahme von gleicher Leistung entscheidend. In diesem Fall ist zwar die Sättigungsintensität selbst ortsunabhängig, doch sind die verschiedenen Zylinderschalen aufgrund der ortsabhängigen Intensität unterschiedlich stark gesättigt. Bei gegebener Spitzenintensität ist die Intensität an achsenahen Orten größer als an achsenfernen Orten und folglich der Sättigungsgrad ebenfalls größer. Mit zunehmender Spitzenintensität wird somit der Beitrag der achsenfernen Schalen immer größer. In verschiedenen Simulationen zeigt

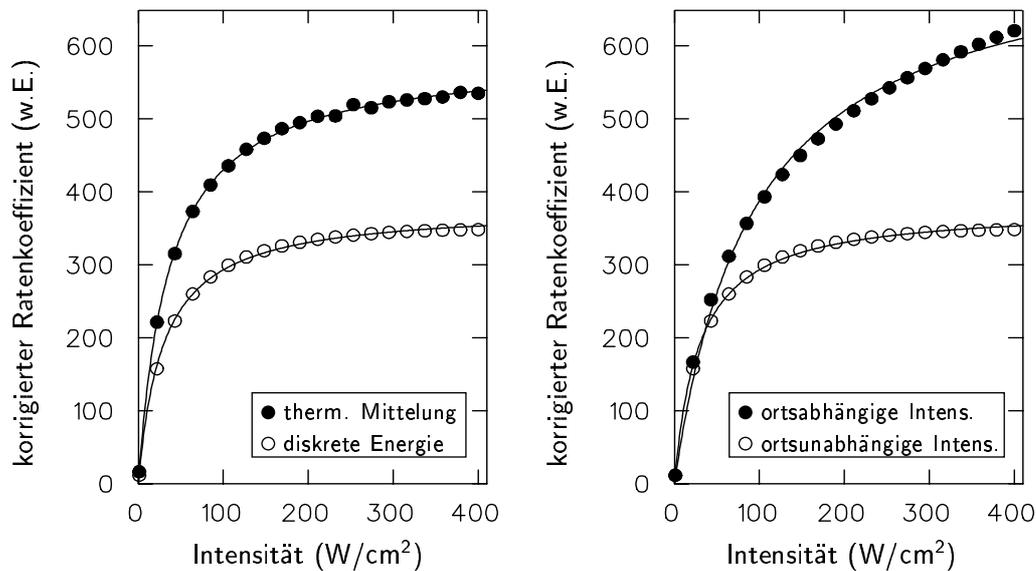


Abbildung 7.7: Intensitätsabhängigkeit des korrigierten Ratenkoeffizienten für zwei verschiedene Modellannahmen. Im linken Bild wird der Einfluß der thermischen Mittelung im Vergleich zur Annahme einer diskreten Streuenergie (bei homogener Intensitätsverteilung) dargestellt, die entsprechenden Sättigungsintensitäten betragen 38 W/cm^2 und 29 W/cm^2 . Im rechten Bild wird der Einfluß der ortsabhängigen Intensitätsverteilung (bei diskreter Energie) veranschaulicht, die Sättigungsintensität beträgt 93 W/cm^2 . Der Rechnung liegen folgende Werte zugrunde: spontane Zerfallsrate $\gamma = 12 \text{ MHz}$, $\Gamma/I = 0.361 \text{ MHz}\cdot\text{cm}^2/\text{W}$, $E_1/I = -0.5 \text{ MHz}\cdot\text{cm}^2/\text{W}$, $E/k_B = 0.5 \text{ mK}$.

sich (vgl. Abb. 7.7, rechts), daß die Fläche unter Annahme eines fokussierten Strahls stets größer ist als unter Annahme einer homogenen Intensitätsverteilung. Dieses Verhältnis wird mit zunehmender Intensität größer. Infolgedessen ist auch die entsprechende Sättigungsintensität größer. Die Annahme einer homogenen Intensitätsverteilung bei der Anpassung der Daten stellt also eine konservative Abschätzung dar.

- Mehrniveausystem:

Das Modell basiert auf der Annahme eines Zwei-Niveau-Systems. Dies stellt eine grobe Vereinfachung gegenüber dem realen System dar. Ein gegebener HyperfeinGrundzustand weist verschiedene magnetische Unterzustände auf. Ferner ist der angeregte Zustand in sechs Hyperfeinzustände aufgespalten, die wiederum verschiedene magnetische Unterzustände besitzen. Die zahlreichen möglichen Übergänge haben unterschiedliche Clebsch-Gordan-Koeffizienten und sind damit unterschiedlich stark. Darüberhinaus müssen die verschiedenen Beiträge mit der Population im jeweiligen magnetischen Unterzustand des HyperfeinGrundzustands gewichtet werden. Für die Analyse nehmen wir ein Zwei-Niveau-System mit einer effektiven Linienbreite an. Ferner gehen wir von einer

Gleichbesetzung der verschiedenen magnetischen Grundzustände aus.

8

Zwei-Farben-Photoassoziation

Die Zwei-Farben-Photoassoziation stellt eine Erweiterung der Ein-Farben-Photoassoziation dar. Ein zusätzlich eingestrahelter Ramanlaser koppelt das durch den Photoassoziationslaser angeregte Vibrationsniveau mit einem Niveau eines anderen elektronischen Zustands. Dies kann ein Niveau eines höher angeregten Molekülzustands oder des Molekülgrundzustands sein. Durch die Verwendung dieses zweiten Kopplungslasers eröffnen sich eine Vielzahl von experimentellen Perspektiven. Diese Methode kann zur Bestimmung der Lage des letzten gebundenen Vibrationsniveaus des Molekülgrundzustands verwendet werden und damit für Streulängenmessungen herangezogen werden [Abr97, Tsa97]. Eine weitere wichtige Anwendung ist die Erzeugung kalter Moleküle durch spontane Emission aus einem zweifach angeregten Molekülzustand [Ban95] oder durch induzierte Emission in ein spezifisches Niveau des Grundzustands [Wyn00, Lab01]. In zukünftigen Experimenten zur kohärenten Kopplung werden derartige Kopplungsschemata diskutiert. Das System ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ ist in diesem Zusammenhang aufgrund seiner fermionischen Quantenstatistik von besonderem Interesse.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Zwei-Farben-Photoassoziation zunächst an ${}^6\text{Li}$ durchgeführt. Schwerpunkt der Untersuchungen war der Einfluß des Ramanlasers auf das System. Mit der gewonnenen Erfahrung und der Tatsache, daß inzwischen Berechnungen für das Molekül ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ vorliegen [Jul02a], sollte eine Übertragung auf das System ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ keine prinzipiellen Schwierigkeiten bereiten.

Dieses Kapitel beginnt mit einer kurzen theoretischen Einführung (Kap. 8.1). Der verwendete Zwei-Farben-Übergang im ${}^6\text{Li}_2$ -Molekül wird vorgestellt (Kap. 8.2), und die experimentelle Erweiterung um den Ramanlaser wird beschrieben (Kap. 8.3). Aus einer absoluten Frequenzmessung wird die Lage des letzten gebundenen Niveaus des Grundzustands bestimmt (Kap. 8.4). Der Einfluß des Ramanlasers manifestiert sich als Autler-Townes-Aufspaltung. Die Linienform wird diskutiert und die Übergangsrate bestimmt (Kap. 8.5).

8.1 Theoretische Einführung

Wir verwenden ein Kopplungsschema, bei dem der Ramanlaser ein Vibrationsniveau des angeregten Zustands mit einem des Grundzustands koppelt. Das entsprechende Schema wird zunächst vorgestellt (Kap. 8.1.1). Schwerpunkt der anschließenden quantitativen Diskussion bildet die Struktur der Streuwahrscheinlichkeit, die als Autler-Townes-Aufspaltung sichtbar gemacht werden kann (Kap. 8.1.2).

8.1.1 Kopplungsschema

Bei der Zwei-Farben-Photoassoziation werden zwei Lichtfelder unterschiedlicher Frequenzen eingestrahlt. Das verwendete Kopplungsschema ist in Abb. 8.1 dargestellt. Der Photoassoziationslaser der Frequenz ω_{PA} koppelt einen Kontinuumszustand der Energie E mit einem angeregten gebundenen Molekülzustand. Der Ramanlaser der Frequenz ω_{R} koppelt den angeregten Molekülzustand mit einem gebundenen Niveau des Molekülgrundzustands.

Die Verwendung eines derartigen Kopplungsschemas setzt voraus, daß sowohl die Übergangsrate von den freien Atomen in den angeregten gebundenen Zustand als auch die Übergangsrate zwischen den beiden gebundenen Zuständen ausreichend hoch ist. Dies sind zwei konkurrierende Bedingungen. Eine große Übergangsrate für den Photoassoziationsübergang erfordert ein hochangeregtes Vibrationsniveau. Die Übergangsrate zwischen den gebundenen Niveaus ist im allgemeinen für jeweils tiefliegende Vibrationsniveaus größer. In verschiedenen Fällen läßt sich jedoch die Kopplung eines möglichst tiefliegenden Niveaus des angeregten Zustands mit einem schwach gebundenen Vibrationsniveau des Grundzustands erzielen.

In der Regel ist die Übergangsrate zwischen den gebundenen Niveaus viel kleiner als die spontane Zerfallsrate des angeregten Niveaus in ungebundene Atome. Dieser Zerfallsprozeß kann wie bei Ein-Farben-Photoassoziationsexperimenten zur Detektion ausgenutzt werden. Dabei kann der Einfluß des Kopplungslasers studiert werden.

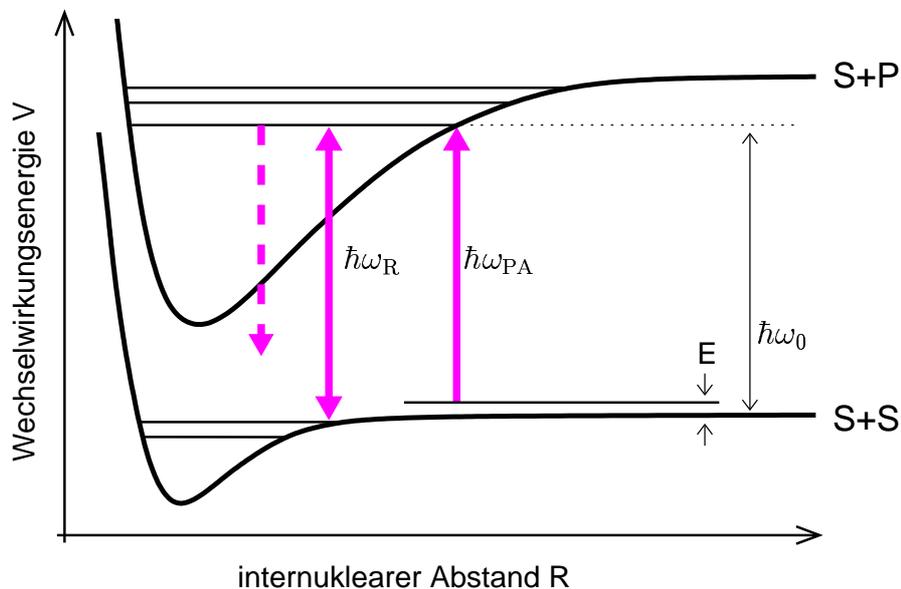


Abbildung 8.1: Schematische Darstellung der Zwei-Farben-Photoassoziation.

8.1.2 Streuwahrscheinlichkeit

Die quantitative Beschreibung des oben dargestellten Kopplungsschemas erfolgt, in Analogie zur Ein-Farben-Photoassoziation, mit streutheoretischen Methoden [Boh99, Boh96]. Die Theorie liefert einen allgemeinen Ausdruck für die Streuwahrscheinlichkeit $|S|^2$, der insbesondere die Kopplung an ein virtuelles angeregtes Niveau beinhaltet. Durch Variablentransformation läßt sich ein Ausdruck für die Streuwahrscheinlichkeit erhalten, der direkt von der Verstimmung Δ_{PA} des Photoassoziationslasers gegenüber dem Photoassoziationsübergang und der Verstimmung Δ_{R} des Ramanlasers gegenüber dem Übergang zwischen den gebundenen Molekülzuständen abhängt. Dieser lautet:

$$|S|^2 = \frac{(E + \Delta_{\text{PA}} - \Delta_{\text{R}})^2 \gamma \Gamma}{[(E + \Delta_{\text{PA}} - \Delta_+)(E + \Delta_{\text{PA}} - \Delta_-)]^2 + [(\gamma + \Gamma)/2]^2 (E + \Delta_{\text{PA}} - \Delta_{\text{R}})^2}. \quad (8.1)$$

Mit γ wird die spontane Zerfallsrate des angeregten Zustands in freie, nicht speicherbare Atome bezeichnet. Die induzierte Rate zwischen dem freien Paarzustand und dem angeregten Zustand wird mit Γ quantifiziert.

Die beiden Größen Δ_+ und Δ_- beschreiben den Einfluß der Kopplung der beiden gebundenen Zustände durch den Ramanlaser. Dies wird im Folgenden diskutiert.

Autler-Townes-Dublett

Im Gegensatz zur Ein-Farben-Photoassoziation weist die Streuwahrscheinlichkeit bei fester Streuenergie E zwei Maxima auf. Diese liegen bei Verstimmungen Δ_{PA} mit $\Delta_{\text{PA}} = \Delta_+ - E$ und $\Delta_{\text{PA}} = \Delta_- - E$.

Die beiden Größen Δ_+ und Δ_- sind durch die Verstimmung des Ramanlasers Δ_{R} und durch die Rabifrequenz Ω bestimmt gemäß

$$\Delta_{\pm} = \frac{1}{2} \Delta_{\text{R}} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\Delta_{\text{R}}^2 + \Omega^2}. \quad (8.2)$$

Die Rabifrequenz Ω quantifiziert die Stärke der Kopplung der beiden gebundenen Niveaus durch das Lichtfeld des Ramanlasers. Sie ist proportional zum entsprechenden Kopplungsmatrixelement und steht damit in direktem Zusammenhang mit der Übergangsrate Γ_{bb} zwischen den gebundenen Zuständen [Wei30]:

$$\Omega^2 = \frac{6\pi c^2}{\hbar \omega_{bb}^3} \Gamma_{bb} I. \quad (8.3)$$

Hierbei bezeichnet I die Laserintensität und ω_{bb} die Frequenz des entsprechenden Übergangs.

Der Abstand Δ_{gen} der beiden Maxima ergibt sich unmittelbar aus Gl. 8.2 zu

$$\Delta_{\text{gen}} = \sqrt{\Delta_{\text{R}}^2 + \Omega^2} \quad (8.4)$$

und entspricht der generalisierten Rabifrequenz.

Das Entstehen der beiden Streuresonanzen kann mit Hilfe des dressed-state-Bilds [Coh98] in Analogie zur Aufspaltung diskreter Zustände durch die Wechselwirkung mit einem Lichtfeld verstanden werden. Im Folgenden sei der angeregte Zustand mit $|e\rangle$ und der gebundene Grundzustand mit $|g\rangle$ bezeichnet. Im dressed-state-Bild ergeben sich aus den Zuständen $|g\rangle$ und $|e\rangle$ und dem Lichtfeld des Ramanlasers mit $N + 1$ Photonen der Frequenz ω_R die beiden bekleideten Zustände $|g, N + 1\rangle$ und $|e, N\rangle$. Deren Energieabstand (in Einheiten von \hbar) und energetische Reihenfolge ist durch die Verstimmung Δ_R der Photonen des Lichtfelds gegenüber der molekularen Resonanz gegeben. Dies ist in Abb. 8.2 (obere Zeile) für verschiedene Verstimmungen Δ_R dargestellt. Durch die Wechselwirkung des Lichtfelds mit den molekularen Zuständen sind die beiden bekleideten Zustände keine Eigenzustände des Gesamtsystems mehr, sondern werden gemischt. Die beiden Mischzustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ werden gegenüber dem Zustand $|e, N\rangle$ asymmetrisch verschoben, und zwar wird der Zustand $|1\rangle$ um Δ_+ zu höheren Energien verschoben und der Zustand $|2\rangle$ um Δ_- zu niedrigeren Energien.

In Analogie zum dressed-state-Bild kann diese Aufspaltung durch Spektroskopie mit einem schwachen Laser von einem diskreten dritten Niveau als Autler-Townes-Dublett [Aut55] sichtbar gemacht werden. In diesem Fall entspricht dieses dritte Niveau einem bestimmten Kontinuumszustand mit einer diskreten Energie E , und der Photoassoziationslaser stellt den Probelaser dar. Für eine diskrete Streuenergie E entspricht die gemessene Aufspaltung der generalisierten Rabifrequenz und hängt ausschließlich von der Verstimmung Δ_R des Ramanlasers und der Rabifrequenz Ω ab. Die Linienform ergibt sich aus der Streuwahrscheinlichkeit für die verschiedenen Verstimmungen Δ_{PA} des Probelasers.

In Abb. 8.2 (mittlere Zeile) ist die Aufspaltung für drei verschiedene Verstimmungen Δ_R des Ramanlasers bei fester Streuenergie E und fester Rabifrequenz Ω dargestellt. Für den Fall, daß der Ramanlaser resonant mit dem Molekülübergang ist ($\Delta_R = 0$; mittlere Bilderspalte), ergibt sich eine symmetrische Dublettstruktur, wobei der Abstand der Spitzen gleich der Rabifrequenz ist. Ist der Kopplungslaser verstimmt, ergibt sich eine asymmetrische Dublettstruktur mit einer breiten und einer schmalen Resonanz von gleicher Höhe und größerem Abstand. Die breitere Resonanz entspricht jeweils einer Anregung in den Mischzustand, der einen größeren Anteil des bekleideten Zustands $|e, N\rangle$ enthält. Im Fall einer negativen Verstimmung des Ramanlasers wird diese somit bei höheren Frequenzen des Probelasers sichtbar, im Fall einer positiven Ramanverstimmung bei niedrigeren Frequenzen. In allen Fällen gibt es zwischen den Dublettspitzen eine Verstimmung, bei denen die Streuwahrscheinlichkeit Null ist. Gemäß Gl. 8.1 tritt dies dann ein, wenn $\Delta_{PA} = \Delta_R - E$. Der Photoassoziationslaser ist dann mit dem Übergang in den bekleideten Zustand $|g, N + 1\rangle$ resonant. Anschaulich kann das Verschwinden durch destruktive Interferenz zwischen den zwei beiden Streupfaden *Kontinuumszustand* $\rightarrow |e\rangle \rightarrow$ *Produkt* und *Kontinuumszustand* $\rightarrow |e\rangle \rightarrow |g\rangle \rightarrow |e\rangle \rightarrow$ *Produkt* verstanden werden.

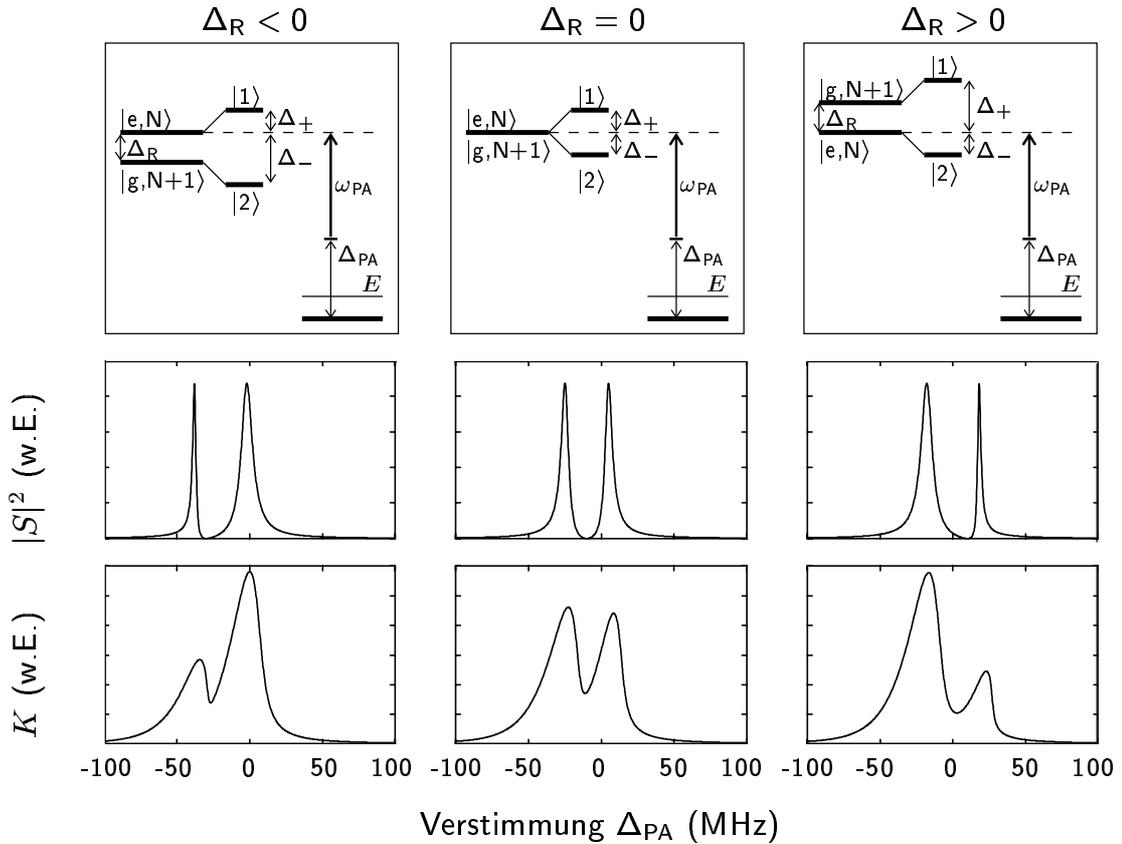


Abbildung 8.2: Autler-Townes-Aufspaltung für drei verschiedene Verstimmungen Δ_R des Ramanlasers (links: rotverstimmter Ramanlaser ($\Delta_R = -20$ MHz), Mitte: resonanter Ramanlaser ($\Delta_R = 0$ MHz), rechts: blauverstimmter Ramanlaser ($\Delta_R = 20$ MHz)). Dargestellt ist jeweils die Aufspaltung der Streuwahrscheinlichkeit $|S|^2$ bei einer festen Energie von $E/h = 10$ MHz und der Ratenkoeffizient K bei thermischer Mittelung unter Annahme einer Temperatur von $T = 0.5$ mK. Ferner wurden $\Omega = 2\pi \cdot 30$ MHz und $\gamma = 12$ MHz angenommen.

Thermische Mittelung

Der Ratenkoeffizient ergibt sich durch thermische Mittelung der verschiedenen Streuwahrscheinlichkeiten gemäß Gl. 2.41. Das resultierende Profil ist durch zwei Effekte bestimmt. Erstens wirkt sich aus, daß für verschiedene Energien E die Dublettstrukturen gegeneinander verschoben sind, da zwar die Größe der Aufspaltung unabhängig von der Streuenergie E ist (vgl. Gl. 8.4), die Absolutlage der Resonanzen jedoch von der Streuenergie E abhängt. Zweitens werden die Beiträge der verschiedenen Energieklassen durch die Energieverteilung unterschiedlich gewichtet. Ersteres führt zu einer Verbreiterung der Dublettspitzen, insbesondere zu einer Aufhebung

der verschwindenden Streuwahrscheinlichkeit zwischen den Dublettspitzen. Letzteres führt zu unterschiedlich hohen Maxima der beiden Spitzen und zu starken Asymmetrien der Linien. Die Flanke bei blauer Verstimmung des Probelasers ist jeweils steiler als die bei roter Verstimmung. Der Einfluß der thermischen Mittelung geht aus Abb. 8.2 (untere Zeile) hervor, in der für die verschiedenen Verstimmungen Δ_R des Ramanlasers die entsprechenden Ratenkoeffizienten K dargestellt sind. Unter der Annahme, daß durch die thermische Mittelung die Größe der Aufspaltung weitgehend erhalten bleibt, kann die gemessene Aufspaltung mit der generalisierten Rabifrequenz gleichgesetzt werden.

8.2 Übergang im ${}^6\text{Li}_2$ -Molekül

Für die Zwei-Farben-Experimente wird ein bereits in der Gruppe von R. Hulet vermessenes Übergangsschema von ${}^6\text{Li}_2$ ausgewählt [Abr97]. Es handelt sich um einen Zwei-Farben-Übergang im Triplettsystem. Dieser ist in Abb. 8.3 skizziert.

Der Photoassoziationsübergang führt von dem freien Zustand der $S_{1/2} + S_{1/2}$ -Asymptote in ein tief liegendes Vibrationsniveau des angeregten Molekülzustands $1^3\Sigma_g^+$, und zwar in das Niveau $v=59$. Dieses liegt bei einer Verstimmung von -1787 GHz relativ zur $S_{1/2} + P_{1/2}$ -Asymptote. Der Ramanübergang verbindet dieses Niveau mit dem höchstliegenden Niveau des Triplettsystemgrundzustands $a^3\Sigma_u^+$, nämlich dem Vibrationsniveau $v=9$. Dessen Bindungsenergie beträgt -24.4 GHz.

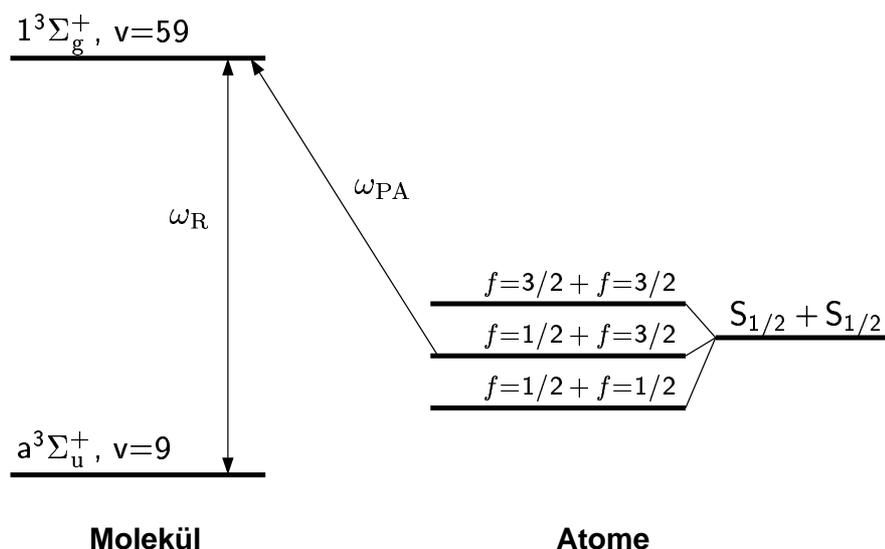


Abbildung 8.3: Für die Zwei-Farben-Experimente verwendetes Übergangsschema im ${}^6\text{Li}_2$ -Molekül. Die Hyperfeinstruktur der gebundenen Zustände ist nicht eingezeichnet.

Die Hyperfeinstruktur in diesem System ist durch die Aufspaltung der Grundzustandsasymptote $S_{1/2} + S_{1/2}$ dominiert. Durch die möglichen Kombinationen der atomaren Hyperfeinzustände $f=1/2$ und $f=3/2$ ergeben sich die drei Asymptoten $f=1/2+f=1/2$, $f=1/2+f=3/2$ und $f=3/2+f=3/2$ mit einem Frequenzabstand von jeweils 228 MHz. Der stärkste Übergang führt von der mittleren Hyperfeinasymptote $f=1/2+f=3/2$ in ein bestimmtes Hyperfeinniveau des angeregten Zustands, das nur in ein definiertes Hyperfeinniveau des Grundzustands zerfallen kann. Zur Vereinfachung kann deshalb hier auf eine Berücksichtigung der Hyperfeinstruktur der gebundenen Zustände verzichtet werden.

8.3 Experimentelle Erweiterung

Für die Zwei-Farben-Photoassoziationsexperimente werden zwei Laserquellen benötigt. Als Ramanlaser wird der bereits vorhandene Farbstofflaser (vgl. Kap. 3.2) eingesetzt. Als Photoassoziationslaser wird ein gitterstabilisierter Diodenlaser mit einer Diode von entsprechend niedriger Freilaufwellenlänge (CQL803/30, Philips, 675 nm) verwendet.

Die Stabilisierung und das Durchstimmen dieses Diodenlasers erfolgt mit einer Stabilisierungskette (vgl. Abb. 8.4). Diese enthält ein Etalon zur Überbrückung der Frequenzlücke von etwa 1800 GHz zwischen Photoassoziationslaserfrequenz und Re-

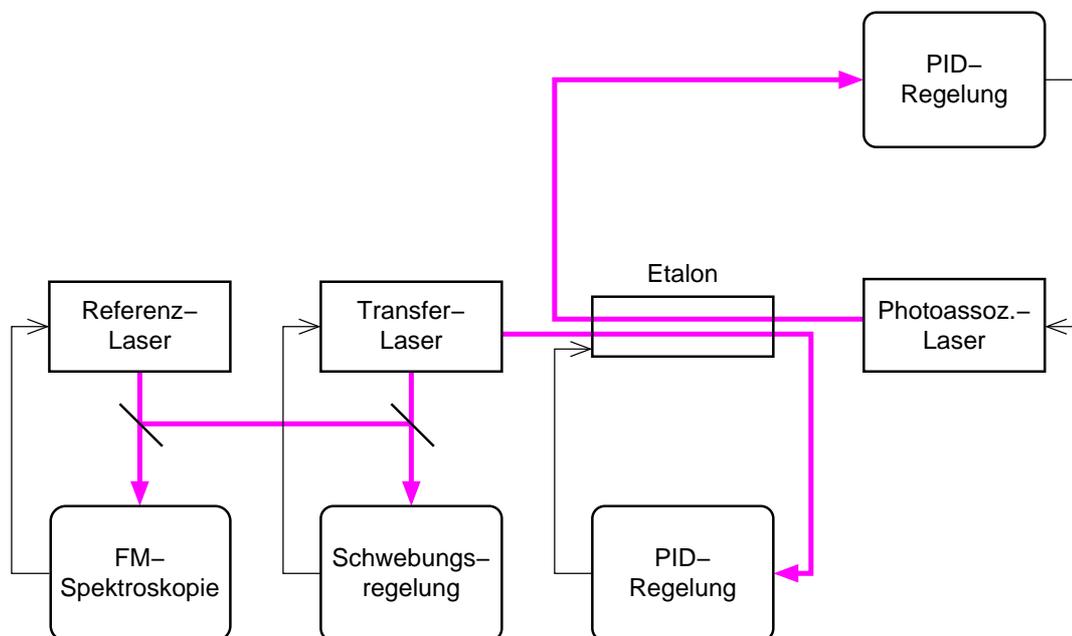


Abbildung 8.4: Stabilisierungskette für den Photoassoziationslaser.

ferenzfrequenz. Als Referenzlaser wird der Diodenlaser aus dem ^7Li -Lasersystem verwendet, der mittels FM-Spektroskopie stabilisiert ist. Ein weiterer Laser, hier als Transferlaser bezeichnet, ist mit einer Schwebungsregelung relativ dazu geregelt. Dieser Laser wiederum stabilisiert ein Etalon mit 300 MHz freiem Spektralbereich. Auf dieses ist nun der als Photoassoziationslaser verwendete Diodenlaser stabilisiert. Unter Verwendung dieser Stabilisierungskette kann der Photoassoziationslaser auf eine Frequenz geregelt werden, die sich von der Referenzfrequenz um ein Vielfaches des freien Spektralbereichs des Etalons zuzüglich der Schwebungsfrequenz zwischen Referenzlaser und Transferlaser unterscheidet. Durch Änderung der Schwebungsfrequenz verschiebt sich der Modenkamm des Etalons absolut, und somit läßt sich die Frequenz des Photoassoziationslasers verstimmen. Aufgrund der Tatsache, daß der Durchstimmbereich mit 270 MHz kleiner als der freie Spektralbereich des Etalons ist, treten Frequenzlücken auf. Diese lassen sich überbrücken, indem der Referenzlaser wahlweise auf den ($F = 1$)-Übergang oder auf die cross-over-Resonanz, die eine Frequenzdifferenz von 400 MHz aufweisen, stabilisiert wird.

Der Photoassoziationslaser kann elektronisch in dem Bereich von 270 MHz durchgestimmt werden. Dazu wird der Regelpunkt der Schwebungsregelung mit Hilfe eines externen Funktionsgenerators verschoben. Aus dem Frequenzhub und der Durchstimmrate kann die Zeitachse in eine Frequenzachse umgerechnet werden.

Der Strahlengang für die Zwei-Farben-Photoassoziationsexperimente ist in Abb. 8.5 gezeigt. Das Strahlprofil des Diodenlasers wird mittels eines Teleskops an das des Farbstofflasers angepaßt. Mit einem Polarisationsstrahlteiler werden die beiden Strahlen mit unterschiedlichen Polarisationen überlagert. Für das Experiment ist es von entscheidender Bedeutung, daß der Photoassoziationslaserstrahl und der Ramanlaserstrahl die gleiche Polarisierung haben. Deshalb werden die beiden Strahlen mit einem $\lambda/2$ -Plättchen und einem weiteren Polarisationsstrahlteiler auf eine gemein-

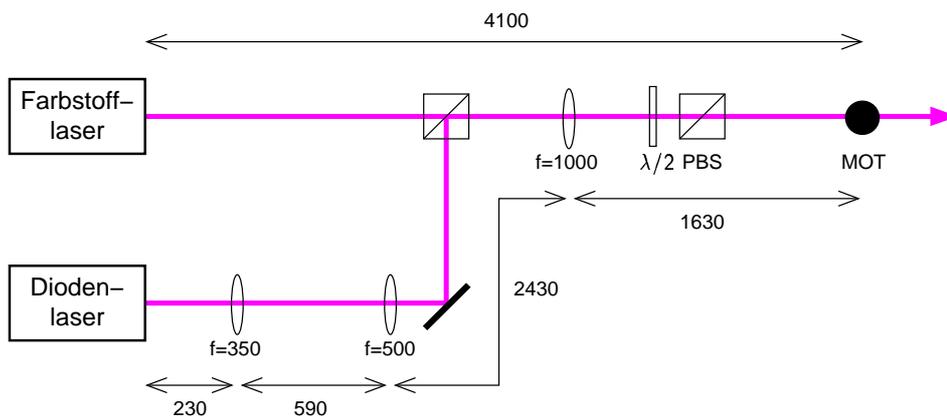


Abbildung 8.5: Strahlanpassung und Fokussierung des Photoassoziationslaserstrahls (Diodenlaser) und des Ramanlaserstrahls (Farbstofflaser). Die Angaben sind in mm.

same Polarisationsrichtung projiziert. Das Verhältnis der beiden Laserstrahlanteile an dem gemeinsamen horizontal polarisierten Strahl kann durch Verdrehen des $\lambda/2$ -Plättchens variiert werden. Die möglichen Leistungskombinationen liegen zwischen $P_R = 66 \text{ mW}$, $P_{PA} = 2.6 \text{ mW}$ und $P_R = 10 \text{ mW}$, $P_{PA} = 6 \text{ mW}$.

Die $1/e^2$ -Durchmesser der beiden Laserstrahlen am Ort der gespeicherten Atomwolke werden berechnet. Für den Ramanlaser ergibt sich ein Wert von $650 \mu\text{m}$. Damit berechnet sich die Intensität I_R aus der Leistung P_R wie folgt:

$$I_R [\text{W}/\text{cm}^2] = 0.60 \text{ cm}^{-2} \cdot P_R [\text{mW}]. \quad (8.5)$$

Für den Photoassoziationslaser beträgt der $1/e^2$ -Durchmesser $470 \mu\text{m}$, woraus der folgende Zusammenhang zwischen der Intensität I_{PA} und der Leistung P_{PA} resultiert:

$$I_{PA} [\text{W}/\text{cm}^2] = 1.15 \text{ cm}^{-2} \cdot P_{PA} [\text{mW}]. \quad (8.6)$$

8.4 Spektroskopie des Grundzustands

In einem ersten Zwei-Farben-Experiment wurde die Lage des letzten gebundenen Vibrationsniveaus des Grundzustands bestimmt. Hierbei wurde die Frequenz des Photoassoziationslasers fest auf den Photoassoziationsübergang eingestellt und die Frequenz des Ramanlasers durchgestimmt (vgl. Abb. 8.1).

In einer vorbereitenden Messung mußte zunächst der Einfluß des Photoassoziationslasers auf die ${}^6\text{Li}$ -Teilchenzahl untersucht werden. Dazu wurde eine Ein-Farben-Photoassoziation durchgeführt, bei der vorerst der Farbstofflaser aufgrund seiner besseren Durchstimbarkeit als Photoassoziationslaser eingesetzt wurde. Dieser wurde im Frequenzbereich des Übergangs von freien Atomen in das gebundene $v = 59$ -Niveau durchgestimmt. Zur Frequenzzeichnung wurde gleichzeitig ein Jodspektrum aufgenommen. In Abb. 8.6 ist das bei einer Rate von 1 MHz/s und einer Leistung von 5 mW beobachtete Photoassoziationsspektrum gezeigt. Deutlich sichtbar sind zwei tiefe Einbrüche in der ${}^6\text{Li}$ -Teilchenzahl mit einem Rückgang auf 70% bzw. 80% der Gesamtteilchenzahl aufgrund einer Anregung in das $v = 59$ -Niveau. Die Aufspaltung ist auf die Hyperfeinstruktur zurückzuführen. Die schwächere Resonanz bei niedrigerer Frequenz entspricht hauptsächlich einem Übergang von der $(f = 3/2 + f = 3/2)$ -Grundzustandsasymptote in einen bestimmten Hyperfeinzustand des Niveaus $v = 59$. Die stärkere Resonanz bei höheren Frequenzen ist auf einen Übergang von der $(f = 1/2 + f = 3/2)$ -Grundzustandsasymptote in einen anderen Hyperfeinzustand des angeregten Niveaus zurückzuführen. Der Abstand von 174 MHz setzt sich aus der Hyperfeinaufspaltung des Grundzustands von 228 MHz und der Energiedifferenz der involvierten angeregten Hyperfeinniveaus zusammen.

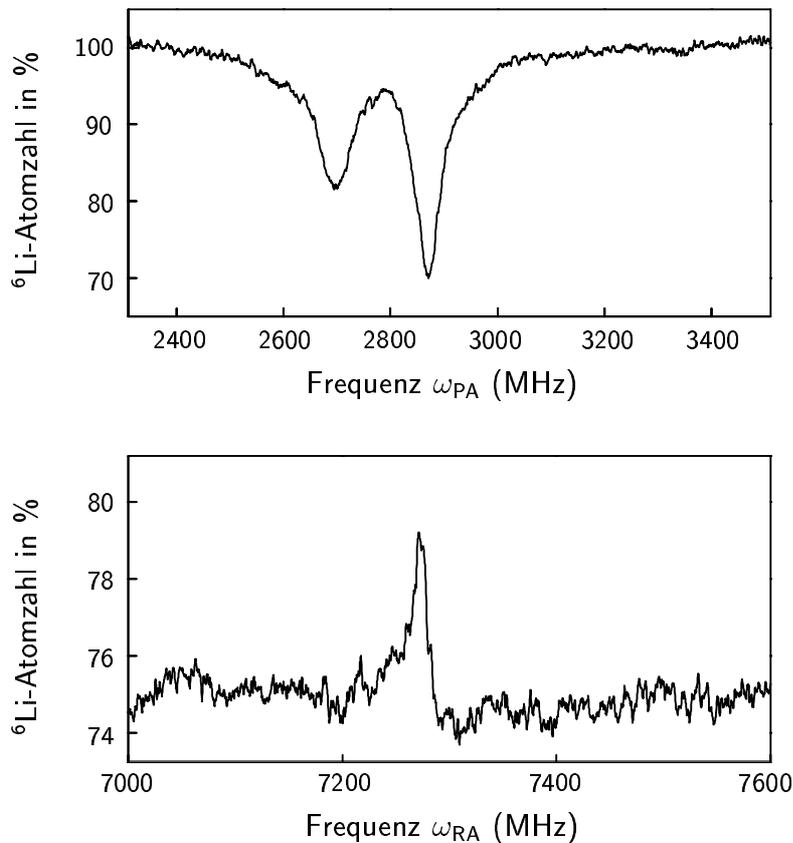


Abbildung 8.6: Ein-Farben-Photoassoziationsspektrum (oberes Bild) und Zwei-Farben-Photoassoziationsspektrum (unteres Bild) des Übergangs von ${}^6\text{Li}$ wie in Abb. 8.3 beschrieben. Die Frequenzachse wurde mittels des Jodspektrometers geeicht, die Nullpunktverschiebung beträgt 445000 GHz (oberes Bild) bzw. 445020 GHz (unteres Bild).

Eine Bestimmung der Absolutfrequenz mittels des Jodspektrums ergibt für den stärkeren Übergang einen Wert von 445002.881 ± 0.015 GHz. Die Fehlerabschätzung ist in [Deu02] erläutert.

Zur Beobachtung der Zwei-Farben-Photoassoziation wurde nun der Photoassoziationslaser fest auf die Frequenz des stärkeren Hyperfeinübergangs eingestellt. Dazu wurde die Frequenz des in diesem Fall verwendeten Diodenlasers (vgl. Kap. 8.3) in dem relevanten Bereich geringfügig manuell so verändert, daß der Rückgang in der ${}^6\text{Li}$ -Teilchenzahl maximal war. Bei einer Diodenlaserleistung von 6 mW konnte die ${}^6\text{Li}$ -Teilchenzahl auf ca. 75% reduziert werden (vgl. Abb. 8.6). Anschließend wurde der Ramanlaser, für den in diesem Fall der Farbstofflaser verwendet wurde, in dem relevanten Frequenzbereich durchgestimmt und die ${}^6\text{Li}$ -Teilchenzahl als Funktion der Frequenz des Ramanlasers beobachtet. Für das in Abb. 8.6 dargestellte Spektrum betrug die Leistung des Ramanlasers 9 mW. Bei einer bestimmten Frequenz steigt die Teilchenzahl von ca. 75% auf 79% an. Dieser Anstieg ist gleichbedeutend

mit der Tatsache, daß Teilchenzahlverluste aufgrund von Photoassoziation in das Niveau $v=59$ unterdrückt werden. Dies findet statt, wenn der Ramanlaser mit dem Übergang zwischen dem Vibrationsniveau $v=59$ des angeregten Zustands und dem gebundenen Niveau $v=9$ des Grundzustands resonant ist. Durch diesen Laser kann die Besetzung des angeregten Zustands, und damit der Teilchenzahlverlust aufgrund spontaner Emission, reduziert werden. Bei höheren Intensitäten des Ramanlasers findet ferner eine Aufspaltung des angeregten Zustands statt (vgl. Kap. 8.5), so daß der Photoassoziationslaser nicht mehr resonant mit dem Photoassoziationsübergang ist. Die Absolutfrequenz des Molekülübergangs zwischen den gebundenen Zuständen kann mittels der Jodspektroskopie zu 445027.272 ± 0.013 GHz bestimmt werden. Damit läßt sich die Bindungsenergie des Niveaus $v=9$ aus der Übergangsfrequenz des Photoassoziationsübergangs und der des Ramanübergangs ermitteln. Sie entspricht direkt der Differenz der gemessenen Frequenzen, da die Verschiebungen der beteiligten Hyperfeinasymptote und des spektroskopierten gebundenen Hyperfein-niveaus gegenüber den jeweiligen Schwerpunkten gleich sind [Abr97]. Es ergibt sich ein Wert von

$$24.391 \pm 0.020 \text{ GHz.}$$

Dieser als Differenz aus Absolutfrequenzen gemessene Wert stimmt mit dem in der Gruppe von R. Hulet direkt als Differenzfrequenz bestimmten Wert von 24.43 ± 0.02 GHz [Abr97] innerhalb der Fehlergrenzen überein.

Bezüglich der Linienform des Zwei-Photonen-Signals ist bemerkenswert, daß die Linie wesentlich schmaler als das Ein-Photonen-Photoassoziationssignal ist und ein stark asymmetrisches Verhalten aufweist. Hier deutet sich das für die Kopplung eines Kontinuums von Zuständen an einen diskreten Zustand charakteristische Fano-Profil an [Fan61, Coh98].

8.5 Autler-Townes-Dublett

Zur Beobachtung und Untersuchung der Autler-Townes-Aufspaltung wurde die Frequenz des Ramanlasers auf einer ausgewählten Verstimmung Δ_R festgehalten und die Frequenz ω_{PA} des Photoassoziationslasers durchgestimmt.

Die Einstellung der Frequenz des Ramanlasers lief dabei nach folgendem Schema ab:

- Einstellung des Photoassoziationslasers auf Resonanz mit dem stärkeren Hyperfeinübergang durch Maximierung der Teilchenzahlverluste in der gespeicherten Atomwolke
- Einstellung des Ramanlasers bei einer vorher gewählten Leistung auf Resonanz mit dem Molekülübergang durch Maximierung des Rückgangs der Teilchen-

zahlverluste¹

- Verstimmung des Ramanlasers mittels der Kontrollbox

Anschließend wurde der Photoassoziationslaser durchgestimmt und die ⁶Li-Teilchenzahl aufgezeichnet.

In Abb. 8.7 sind drei exemplarische Spektren dargestellt. Diese wurden bei einer festen Leistung des Ramanlasers von 50 mW, entsprechend einer Intensität von 30 W/cm², und einer Leistung des Photoassoziationslasers von 2.6 mW aufgenommen. Die Durchstimmrate betrug 0.36 MHz/s (zur Frequenzeichnung vgl. Kap. 8.3). Das mittlere Spektrum wurde bei resonantem Ramanlaser ($\Delta_R = 0$), die beiden Spektren links und rechts bei um den gleichen Betrag rotverstimmt ($\Delta_R < 0$) bzw. blauverstimmt ($\Delta_R > 0$) Ramanlaser aufgezeichnet.

In allen drei Fällen manifestiert sich die Aufspaltung in einem deutlichen Rückgang in der ⁶Li-Teilchenzahl. Bei resonantem Ramanlaser (mittleres Bild) sind die Dublettspitzen gleich hoch, bei verstimmtem Ramanlaser (äußere Bilder) sind die beiden Spitzen von stark unterschiedlicher Höhe, wobei bei rotverstimmtem Ramanlaser die Spitze bei größerer Frequenz des Photoassoziationslasers höher ist, bei blauverstimmtem Ramanlaser entsprechend umgekehrt. Darüberhinaus erscheinen die einzelnen Dubletthälften asymmetrisch, und zwar scheint die Flanke bei höherer Frequenz des Photoassoziationslasers jeweils steiler abzufallen. Dieses Verhalten ist besonders stark bei der großen Resonanz bei roter Ramanlaserverstimmung ausgeprägt. Die beobachteten Linienformen stehen in exzellenter Übereinstimmung mit den theoretischen Kurven in Abb. 8.2.

Aus der Aufspaltung der Resonanzen läßt sich die Rabifrequenz und damit die Übergangsrate zwischen den gebundenen Zuständen berechnen. Zur Bestimmung der Rabifrequenz wurde folgendermaßen vorgegangen: Für den Fall des resonanten Ramanlasers $\Delta_R = 0$ entspricht die Aufspaltung Δ_{gen} der Rabifrequenz Ω , wie aus Gl. 8.4 folgt. Der Frequenzabstand der beiden Maxima wird durch Anpassung mit zwei lorentzförmigen Kurven bestimmt. Es ergibt sich eine Rabifrequenz von

$$\Omega = 2\pi \cdot 34.6 \text{ MHz.}$$

Für die beiden abgebildeten Beispiele mit verstimmtem Ramanlaser betragen die Abstände der Dublettspitzen 50.1 MHz bzw. 40.4 MHz. Setzt man eine tatsächliche Rabifrequenz von $2\pi \cdot 34.6$ MHz voraus, müßten bei der eigentlich voreingestellten Verstimmung von ± 100 MHz die beiden Abstände gleich sein und etwa 106 MHz

¹Durch diese Methode ist gewährleistet, daß der Ramanlaser, unabhängig von dessen Leistung, resonant auf den Molekülübergang eingestellt ist, wie folgende Überlegung zeigt: Unter Annahme einer diskreten Streuenergie E ist der Photoassoziationslaser so eingestellt, daß für dessen Verstimmung $\Delta_{\text{PA}} = -E$ gilt. Die Streuwahrscheinlichkeit für die Zwei-Farben-Photoassoziation verschwindet in diesem Fall, wenn $\Delta_R = 0$ gilt (vgl. Kap. 8.1.2), wenn also der Ramanlaser resonant mit dem Molekülübergang ist. An diesem Verhalten sollte sich auch durch die thermische Mittelung nichts ändern.

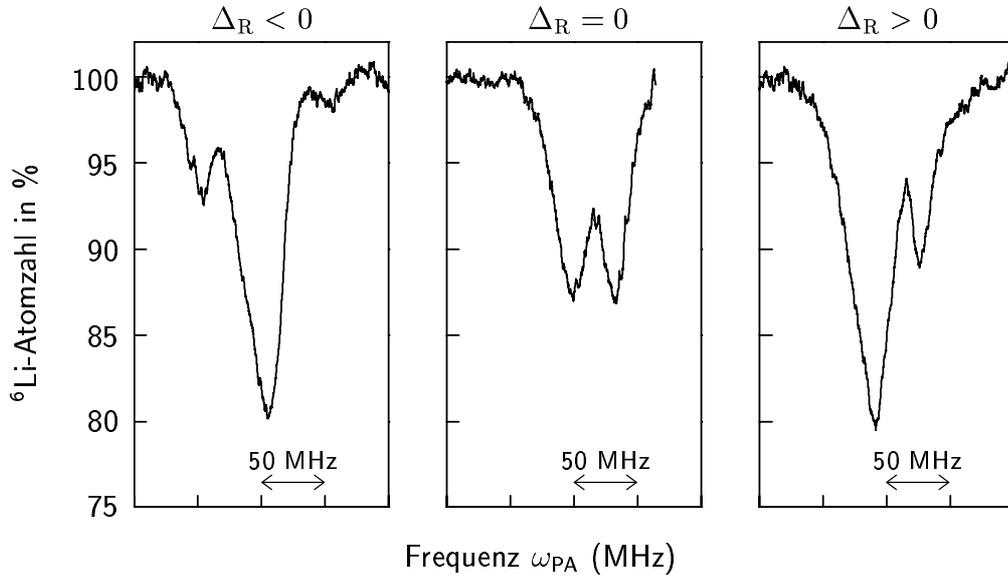


Abbildung 8.7: Autler-Townes-Dublett. Dargestellt sind Spektren für drei verschiedene Verstimmungen des Ramanlasers (rotverstimmt $\Delta_R < 0$ (links), resonant $\Delta_R = 0$ (Mitte) und blauverstimmt $\Delta_R > 0$ (rechts)) bei einer konstanten Ramanlaserleistung von 50 mW. Der abgebildete Frequenzbereich beträgt jeweils 200 MHz.

betragen. Hier besteht eine große Diskrepanz zwischen gemessener und erwarteter Aufspaltung. Dies kann auf Driften der Ramanlaserfrequenz während der Datenaufnahme zurückzuführen sein, die Hauptursache wird jedoch vermutlich in einer falschen Kalibrierung der Laserkontrollbox liegen. Dies rechtfertigt die Bestimmung der Rabifrequenz aus der Aufspaltung bei resonantem Ramanlaser, da in diesem Fall die Verstimmung des Ramanlasers, deren Messung mit einer großen Unsicherheit behaftet ist, nicht eingeht.

Unter Verwendung der Beziehung 8.3 zwischen der Rabifrequenz Ω und der Übergangsrate Γ_{bb} in einem Zwei-Niveau-System läßt sich letztere berechnen. Mit den entsprechenden Werten für die (mittlere) Laserintensität I und die Übergangsfrequenz ω_{bb} beträgt die Übergangsrate

$$\Gamma_{bb} = 4.3 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}.$$

Dieser Wert liegt im Bereich einer theoretischen Vorhersage von $6.16 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$ [Côt99a]. Die Tatsache, daß die gemessene Rate kleiner ist, läßt sich in erster Linie auf die vereinfachten Modellannahmen zurückführen, auf denen die Auswertung basiert. Im Gegensatz zu dem zugrundegelegten Zwei-Niveau-System mit entsprechendem Kopplungsmatrixelement ist das tatsächliche System aufgrund der Entartung der verschiedenen Hyperfeinniveaus ein Mehrniveausystem. Die Übergänge zwischen den verschiedenen Zuständen weisen nicht nur unterschiedliche Clebsch-Gordan-Koeffizienten auf, sondern werden durch die Kombination von vorhandenem Rest-

magnetfeld der magnetooptischen Falle und Polarisation des Ramanlasers auch unterschiedlich stark getrieben. Eine ungleiche Besetzung der verschiedenen Niveaus des angeregten Zustands durch den Photoassoziationslaser verkompliziert die Situation weiter. Die gemessene Rabifrequenz stellt damit den Mittelwert über die verschiedenen Rabifrequenzen dar und ist stets kleiner als der Wert für ein Zwei-Niveau-System. Infolgedessen wird die Übergangsrate unterschätzt.

9 Ausblick

Thema dieser Arbeit war die Photoassoziation in einem Gemisch aus magnetooptisch gespeicherten ${}^6\text{Li}$ - und ${}^7\text{Li}$ -Atomen. Die Photoassoziation von ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$, und damit die erste heteronukleare Photoassoziation überhaupt, wurde nachgewiesen und zu einer ausführlichen Spektroskopie des Systems ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ verwendet. Die Lage der Vibrationsniveaus des angeregten Singulett- und Triplettpotentials wurde über einen Verstimmungsbereich von 3000 GHz vermessen. Hochaufgelöste Spektren, die Informationen über die Hyperfeinstruktur des angeregten Zustands erhalten, wurden erzielt. Ferner konnte die Triplettstreuung zu $43.1 a_0$ bestimmt werden. Die durchgeführten Sättigungsmessungen zeigen für zwei Hyperfeinkomponenten eine Sättigung der Photoassoziationsrate mit entsprechenden Sättigungsintensitäten von 40 W/cm^2 . Dies stellt die erste direkte Beobachtung einer sättigenden Photoassoziationsrate dar. In einem erweiterten Kopplungsschema wurde die Zwei-Farben-Photoassoziation an ${}^6\text{Li}$ angewendet. Die Autler-Townes-Aufspaltung wurde beobachtet und zur Bestimmung der Übergangsrate in das höchstliegende Vibrationsniveau des Molekülgrundzustands verwendet.

Die aufgebaute Apparatur und die gewonnenen Ergebnisse bilden die Grundlage für eine Vielzahl von weiteren Experimenten. Mit dem Gemisch ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ steht als Fermion-Boson-Gemisch ein hochinteressantes System und mit der Photoassoziation eine vielseitig anwendbare Methode zur Verfügung.

Spektroskopie des ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Moleküls

Die Photoassoziation als höchstauflösende Spektroskopiemethode kann zur Erzielung weiterer spektroskopischer Informationen über das System ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ verwendet werden.

Erstens birgt das hochaufgelöste Triplettpektrum interessante Aspekte in sich. Die Hyperfeinaufspaltung des angeregten Zustands könnte durch den heteronuklearen Charakter des ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ -Moleküls geprägt sein [Li02]. Die bereits vorliegenden Photoassoziationsspektren für verschiedene Vibrationsniveaus und verschiedene Laserintensitäten müßten für eine entsprechende Auswertung ausreichend sein. Eine Interpretation steht noch aus.

Ein zweites Thema ist die Untersuchung der Lage der Vibrationsniveaus im nahverstimten Bereich der Asymptote des angeregten Zustands. Bei den entsprechenden großen internuklearen Abständen sollte sich eine Abweichung von dem R^{-3} -Verlauf resonanter Dipole aufgrund des Wirksamwerdens der Wechselwirkung induzierter

Dipole mit einem charakteristischen R^{-6} -Verlauf bemerkbar machen. Für diese Messungen wird das aufgebaute Jodspektrometer unverzichtbar sein, da eine sehr genaue Bestimmung der Linienpositionen erforderlich ist.

Ein weiterer Gesichtspunkt ist die Bestimmung der Singulettstretlänge. Diese wird als negativ zu $-20 a_0$ vorausgesagt und ließe sich mit der Methode der Zwei-Farben-Photoassoziation aus der Lage des letzten gebundenen Niveaus des Grundzustands bestimmen [Abr97]. Eine theoretische Abschätzung für die Lage dieses gebundenen Zustands würde die Durchführung dieser Messung erleichtern.

Kalte Moleküle

Durch die Photoassoziation von ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$ werden angeregte Moleküle erzeugt. Aus diesen entstehen durch spontane Emission zu einem Bruchteil translatorisch kalte Moleküle in hochangeregten Vibrationsniveaus des elektronischen Grundzustands. Erstrebenswert ist eine Erzeugung kalter Moleküle im Vibrationsgrundzustand. Diese besitzen keine innere Anregungsenergie, so daß die erreichbaren Speicherzeiten in diversen Fällen nicht durch inelastische Stöße begrenzt sein sollten. Die Speicherung kalter, vibronisch angeregter Dimere in einer Dipolfalle [Tak98] oder in einer Magnetfalle [Pil02, Hei02] stellt bereits einen wichtigen Schritt in diese Richtung dar. Eine selektive Erzeugung im Vibrationsgrundzustand könnte durch die Verwendung erweiterter Kopplungsschemata, ähnlich den für die homonuklearen Lithium-Isotopomere vorgeschlagenen [Côt99a], möglich sein. Als effiziente Detektionsmethode bietet sich ein Ionisationsschema an.

Kohärente Kopplung im entarteten Regime

Durch die Photoassoziation des Fermions ${}^6\text{Li}$ und des Bosons ${}^7\text{Li}$ entsteht das fermionische Molekül ${}^6\text{Li}{}^7\text{Li}$. Der fermionische Charakter dieses heteronuklearen Moleküls steht im Gegensatz zu dem bosonischen Charakter der beiden homonuklearen Isotopomere: durch Photoassoziation zweier bosonischer ${}^7\text{Li}$ -Atome entsteht das bosonische Molekül ${}^7\text{Li}_2$, durch Photoassoziation zweier fermionischer ${}^6\text{Li}$ -Atome entsteht das bosonische Molekül ${}^6\text{Li}_2$. Diese unterschiedlichen quantenstatistischen Eigenschaften könnten im Rahmen von Experimenten zur kohärenten Kopplung im entarteten Regime eine entscheidende Rolle spielen. Die Reaktionsdynamik sollte in einer Art Superchemie durch die unterschiedlichen Überhöhungsfaktoren bestimmt sein [Hei00]. Die Methode der Photoassoziation kann dabei zur Kopplung eingesetzt werden. In diesem Zusammenhang werden verschiedene Raman-artige Schemata diskutiert [Wyn00, Abr95a, Var97, Mac00].

Der nächste Entwicklungsschritt wird darin bestehen, ein ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ -Gemisch im entarteten Regime zu erzeugen, das heißt ein Fermi-Gas von ${}^6\text{Li}$ und ein Bose-Einstein-Kondensat von ${}^7\text{Li}$. Im Unterschied zu den beiden anderen Experimenten mit einem

${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$ -Gemisch soll dabei als Kühlmittel für die beiden Lithiumisotope das Element ${}^{87}\text{Rb}$ verwendet werden. Dieses Element kann inzwischen standardmäßig in das Regime der Quantenentartung gekühlt werden. Dabei treten nicht die prinzipiellen Schwierigkeiten, die die evaporative Kühlung von ${}^7\text{Li}$ mit sich bringt [Sch02b], auf. Zudem ist die sympathetische Kühlung von ${}^6\text{Li}$ durch ${}^7\text{Li}$ aufgrund des kleinen Stoßquerschnitts wenig effizient. Ein Vergleich mit anderen Alkaligemischen [Mud02, Had02, Fer02] läßt einen ausreichend großen Stoßquerschnitt zwischen ${}^6\text{Li}$ und ${}^{87}\text{Rb}$ und zwischen ${}^7\text{Li}$ und ${}^{87}\text{Rb}$ vermuten. Neben der Verwendung als Kühlmittel kann ${}^{87}\text{Rb}$ auch direkt für experimentelle Zwecke verwendet werden. In einer derartigen Apparatur wird die bisher nicht realisierte Erzeugung einer dreikomponentigen kalten Mischung stattfinden. Eine Mischung aus dem Fermion ${}^6\text{Li}$, dem Boson ${}^7\text{Li}$ und dem Boson ${}^{87}\text{Rb}$ bietet viele interessante Möglichkeiten, bei der die Wechselwirkungen in verschiedenster Weise durch Photoassoziation untersucht und manipuliert werden können.

A

Spektroskopierte Vibrationsniveaus

Zustand	Isotop	Vibrationsniveau	Methode
$1^1\Sigma_g^+$	$^6\text{Li}_2$	$v = 0 - 19$	laser-induzierte Fluoreszenz [Vel69]
	$^7\text{Li}_2$	$v = 0 - 18$	Absorption, laser-induzierte Fluoreszenz [Hes79]
		$v = 14 - 40$	Fourier-Spektroskopie [Bar86]
	$^6\text{Li}^7\text{Li}$	$v = 0 - 26$	laser-induzierte Fluoreszenz [Ver81]
$1^3\Sigma_u^+$	$^6\text{Li}_2$	$v = 0 - 7$	Fourier-Spektroskopie [Lin89]
		$v = 9$	Zwei-Farben-Photoassoziation [Abr97]
	$^7\text{Li}_2$	$v = 0 - 9$	Fourier-Spektroskopie [Lin99]
		$v = 10$	Zwei-Farben-Photoassoziation [Abr95a]
$1^1\Sigma_u^+$	$^6\text{Li}_2$	$v = 0 - 84$	Fourier-Spektroskopie [Lin96]
		$v = 62 - 88$	Photoassoziation [Abr95b]
	$^7\text{Li}_2$	$v = 0 - 25$	Absorption [Kus77]
		$v = 7 - 26$	Fourier-Spektroskopie [Bar86]
$v = 27 - 62$		stoß-induzierte Fluoreszenz, assoziative Ionisation [Urb96]	
		$v = 65 - 97$	Photoassoziation [Abr95b]
	$^6\text{Li}^7\text{Li}$	$v = 4, 15$	stoß-induzierte Fluoreszenz [Ant97]
$1^3\Sigma_g^+$	$^6\text{Li}_2$	$v = 1 - 7$	Fourier-Spektroskopie [Lin89]
		$v = 56 - 84$	Photoassoziation [Abr95b]
	$^7\text{Li}_2$	$v = 1 - 7$	Fourier-Spektroskopie [Mar88]
$v = 62 - 90$		Photoassoziation [Abr95b]	

Tabelle A.1: Übersicht über bislang spektroskopierte Vibrationsniveaus der Grundzustände $1^1\Sigma_g^+$ und $1^3\Sigma_u^+$ und der angeregten Zustände $1^1\Sigma_u^+$ und $1^3\Sigma_g^+$ der verschiedenen Lithium-Isotopomere. Aufgeführt sind jeweils die umfangreichsten Messungen.

B Streulängen

⁶ Li f, m_f	⁷ Li f, m_f	Streulänge
1/2, $\pm 1/2$	1, ± 1	38.1
1/2, $\pm 1/2$	1, 0	37.5
1/2, $\mp 1/2$	1, ± 1	37.0
1/2, $\pm 1/2$	2, ± 2	28.4
1/2, $\pm 1/2$	2, ± 1	30.1
1/2, $\pm 1/2$	2, 0	31.8
1/2, $\pm 1/2$	2, ∓ 1	33.5
1/2, $\pm 1/2$	2, ∓ 2	35.1
3/2, $\pm 3/2$	1, ± 1	33.6
3/2, $\pm 3/2$	1, 0	36.1
3/2, $\mp 3/2$	1, ± 1	38.6
3/2, $\pm 1/2$	1, ± 1	35.3
3/2, $\pm 1/2$	1, 0	36.0
3/2, $\mp 1/2$	1, ± 1	36.9
3/2, $\pm 3/2$	2, ± 2	40.8
3/2, $\pm 3/2$	2, ± 1	36.7
3/2, $\pm 3/2$	2, 0	31.9
3/2, $\pm 3/2$	2, ∓ 1	26.3
3/2, $\pm 3/2$	2, ∓ 2	20.0
3/2, $\pm 1/2$	2, ± 2	35.3
3/2, $\pm 1/2$	2, ± 1	32.6
3/2, $\pm 1/2$	2, 0	30.4
3/2, $\pm 1/2$	2, ∓ 1	29.0
3/2, $\pm 1/2$	2, ∓ 2	28.4

Tabelle B.1: Streulängen in Einheiten von a_0 für die verschiedenen Hyperfeinkombinationen von ⁶Li/⁷Li (nach [Jul02a]).

Literaturverzeichnis

- [Abe97] F. A. van Abeelen, B. J. Verhaar and A. J. Moerdijk, *Sympathetic cooling of ${}^6\text{Li}$ atoms*, Phys. Rev. A **55**, 4377 (1997).
- [Abr95a] E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, C. A. Sackett and R. G. Hulet, *Spectroscopic Determination of the s-Wave Scattering Length of Lithium*, Phys. Rev. Lett. **74**, 1315 (1995).
- [Abr95b] E. R. I. Abraham, N. W. M. Ritchie, W. I. McAlexander and R. G. Hulet, *Photoassociative Spectroscopy of Long-Range States of Ultracold ${}^6\text{Li}_2$ and ${}^7\text{Li}_2$* , J. Chem. Phys. **103**, 7773 (1995).
- [Abr96a] E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, J. M. Gerton, R. G. Hulet, R. Côté and A. Dalgarno, *Singlet s-wave scattering lengths of ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$* , Phys. Rev. A **53**, R3713 (1996).
- [Abr96b] E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, H. T. C. Stoof and R. G. Hulet, *Hyperfine structure in photoassociative spectra of ${}^6\text{Li}_2$ and ${}^7\text{Li}_2$* , Phys. Rev. A **53**, 3092 (1996).
- [Abr97] E. R. I. Abraham, W. I. McAlexander, J. M. Gerton, R. G. Hulet, R. Côté and A. Dalgarno, *Triplet s-wave resonance in ${}^6\text{Li}$ collisions and scattering lengths of ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$* , Phys. Rev. A **55**, R3299 (1997).
- [Ant97] S. Antonova, K. Urbanski, A. M. Lyyra, F. C. Spano and L. Li, *State to state collision energy transfer in singlet states of Li_2* , Chem. Phys. Lett. **267**, 158 (1997).
- [Ari77] E. Arimondo, M. Inguscio and P. Violino, *Experimental determinations of the hyperfine structure in the alkali atoms*, Rev. Mod. Phys. **49**, 31 (1977).
- [Ash66] A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballmann, J. J. Levinstein and K. Nassau, *Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO_3 and LiTaO_3* , Appl. Phys. Lett. **9**, 72 (1966).
- [Aut55] S. H. Autler and C. H. Townes, *Stark Effect in Rapidly Varying Fields*, Phys. Rev. **100**, 703 (1955).
- [Ban95] Y. B. Band and P. S. Julienne, *Ultracold-molecule production by laser-cooled atom photoassociation*, Phys. Rev. A **51**, R4317 (1995).
- [Bar62] G. M. Barrow, *Introduction to Molecular Spectroscopy*, (McGraw-Hill, New York, 1962).
- [Bar86] B. Barakat, R. Bacis, F. Carrot, S. Churassy, P. Crozet, F. Martin and J. Vergès, *Extensive analysis of the $X^1\Sigma_g^+$ ground state of ${}^7\text{Li}_2$ by laser-induced fluorescence fourier transform spectrometry*, Chem. Phys. **102**, 215 (1986).

- [Bar02] M. A. Baranov, M. S. Mar'enko, V. S. Rychkov and G. V. Shlyapnikov, *Superfluid pairing in a polarized dipolar Fermi gas*, Phys. Rev. A **66**, 013606 (2002).
- [Bjo83] G. C. Bjorklund, M. D. Levenson, W. Lenth and C. Ortiz, *Frequency Modulation (FM) Spectroscopy*, Appl. Phys. B **32**, 145 (1983).
- [Bjo88] J. E. Bjorkholm, *Collision-limited lifetimes of atom traps*, Phys. Rev. A **38**, 1599 (1988).
- [Boe96] H. M. J. M. Boesten, C. C. Tsai, B. J. Verhaar and D. J. Heinzen, *Observation of a Shape Resonance in Cold-Atom Scattering by Pulsed Photoassociation*, Phys. Rev. Lett. **77**, 5194 (1996).
- [Boe97] H. M. J. M. Boesten, C. C. Tsai, J. R. Gardner, D. J. Heinzen and B. J. Verhaar, *Observation of a shape resonance in the collision of two cold ^{87}Rb atoms*, Phys. Rev. A **55**, 636 (1997).
- [Boh96] J. L. Bohn and P. S. Julienne, *Semianalytic treatment of two-color photoassociation spectroscopy and control of cold atoms*, Phys. Rev. A **54**, R4637 (1996).
- [Boh99] J. L. Bohn and P. S. Julienne, *Semianalytic theory of laser-assisted resonant cold collisions*, Phys. Rev. A **60**, 414 (1999).
- [Boi00] C. Boisseau, E. Audouard, J. Vigué and P. S. Julienne, *Reflection approximation in photoassociation spectroscopy*, Phys. Rev. A **62**, 052705 (2000).
- [Bus85] B. Bussery and M. Aubert-Frécon, *Multipolar long-range electrostatic, dispersion, and induction energy terms for the interactions between two identical alkali atoms Li, Na, K, Rb, and Cs in various electronic states*, J. Chem. Phys. **82**, 3224 (1985).
- [Bus87] B. Bussery, Y. Achkar and M. Aubert-Frécon, *Long-range molecular states dissociating to the three or four lowest asymptotes for the ten heteronuclear diatomic alkali molecules*, Chem. Phys. **116**, 319 (1987).
- [Cac00] P. Cacciani and V. Kokoouline, *Predissociation Induced by Ungerade-Gerade Symmetry Breaking in $^6\text{Li}^7\text{Li}$ Molecule*, Phys. Rev. Lett. **84**, 5296 (2000).
- [Chu02] S. Chu, *Cold atoms and quantum control*, Nature **416**, 206 (2002).
- [Coh98] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc and G. Grynberg, *Atom-Photon Interactions*, (Wiley, New York, 1998).
- [Côt98] R. Côté and A. Dalgarno, *Photoassociation intensities and radiative trap loss in lithium*, Phys. Rev. A **58**, 498 (1998).
- [Côt99a] R. Côté and A. Dalgarno, *Mechanism for the Production of $^6\text{Li}_2$ and $^7\text{Li}_2$ Ultracold Molecules*, J. Mol. Spec. **195**, 236 (1999).

- [Côt99b] R. Côté, A. Dalgarno, A. M. Lyyra and L. Li, *Observation of a shape resonance in the $a^3\Sigma_u^+$ state of $^7\text{Li}_2$* , Phys. Rev. A **60**, 2063 (1999).
- [Cru99] A. Crubellier, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, M. Elbs, H. Knöckel and E. Tiemann, *Simple determination of Na_2 scattering lengths using observed bound levels at the ground state asymptote*, Eur. Phys. J. D **6**, 211 (1999).
- [Dal89] J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji, *Laser cooling below the Doppler limit by polarization gradients: simple theoretical models*, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 2023 (1989).
- [DeM99] B. DeMarco and D. S. Jin, *Onset of Fermi Degeneracy in a Trapped Atomic Gas*, Science **285**, 1703 (1999).
- [Deu02] T. Deuschle, *Zwei-Farben-Photoassoziation von kalten ^6Li -Atomen*, Diplomarbeit, Universität Tübingen (2002).
- [Don02] E. A. Donley, N. R. Claussen, S. T. Thompson and C. E. Wieman, *Atom-molecule coherence in a Bose-Einstein condensate*, Nature **417**, 529 (2002).
- [Dra00a] C. Drag, B. Laburthe Tolra, O. Dulieu, D. Comparat, M. Vatasescu, S. Boussem, S. Guibal, A. Crubellier and P. Pillet, *Experimental Versus Theoretical Rates for Photoassociation and for Formation of Ultracold Molecules*, IEEE J. Quantum Electron. **QE-36**, 1378 (2000).
- [Dra00b] C. Drag, B. Laburthe Tolra, B. T'Jampens, D. Comparat, M. Allegrini, A. Crubellier and P. Pillet, *Photoassociative Spectroscopy as a Self-Sufficient Tool for the Determination of the Cs Triplet Scattering Length*, Phys. Rev. Lett. **85**, 1408 (2000).
- [Dre83] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley and H. Ward, *Laser Phase and Frequency Stabilization Using an Optical Resonator*, Appl. Phys. B **31**, 97 (1983).
- [Eng97] H. Engler, *Aufbau eines „Zeeman-Abbremsers“ und Inbetriebnahme einer magnetooptischen Falle für Lithium-Atome*, Diplomarbeit MPI H-V20, Universität Heidelberg (1997).
- [Fan61] U. Fano, *Effects of Configuration Interaction on Intensities and Phase Shifts*, Phys. Rev. **124**, 1866 (1961).
- [Fed96] P. O. Fedichev, Y. Kagan, G. V. Shlyapnikov and J. T. M. Walraven, *Influence of Nearly Resonant Light on the Scattering Length in Low-Temperature Atomic Gases*, Phys. Rev. Lett. **77**, 2913 (1996).
- [Fer02] G. Ferrari, M. Inguscio, W. Jastrzebski, G. Modugno, G. Roati and A. Simoni, *Collisional Properties of Ultracold K-Rb Mixtures*, Phys. Rev. Lett. **89**, 053202 (2002).

- [Fio98] A. Fioretti, D. Comparat, A. Crubellier, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws and P. Pillet, *Formation of Cold Cs₂ Molecules through Photoassociation*, Phys. Rev. Lett. **80**, 4402 (1998).
- [For98] J. Fortagh, A. Grossmann, T. W. Hänsch and C. Zimmermann, *Fast loading of a magneto-optical trap from a pulsed thermal source*, J. Appl. Phys. **84**, 6499 (1998).
- [Fro52] R. A. Frosch and H. M. Foley, *Magnetic Hyperfine Structure in Diatomic Molecules*, Phys. Rev. **88**, 1337 (1952).
- [Frö80] N. Fröman, *Semiclassical and higher-order approximations: Properties. Solution of connection problems*, in *Semiclassical Methods in Molecular Scattering and Spectroscopy*, herausgegeben von M. S. Child, (D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, 1980).
- [Gab00] C. Gabbanini, A. Fioretti, A. Lucchesini, S. Gozzini and M. Mazzoni, *Cold Rubidium Molecules Formed in a Magneto-Optical Trap*, Phys. Rev. Lett. **84**, 2814 (2000).
- [Gha99] B. Ghaffari, J. M. Gerton, W. I. McAlexander, K. E. Strecker, D. M. Homan and R. G. Hulet, *Laser-free slow atom source*, Phys. Rev. A **60**, 3878 (1999).
- [Gre01] M. Greiner, I. Bloch, T. W. Hänsch and T. Esslinger, *Magnetic transport of trapped cold atoms over a large distance*, Phys. Rev. A **63**, 031401(R) (2001).
- [Had02] Z. Hadzibabic, C. A. Stan, K. Dieckmann, S. Gupta, M. W. Zwierlein, A. Görlitz and W. Ketterle, *Two-Species Mixture of Quantum Degenerate Bose and Fermi Gases*, Phys. Rev. Lett. **88**, 160401 (2002).
- [Hei00] D. J. Heinzen, R. Wynar, P. D. Drummond and K. V. Kheruntsyan, *Superchemistry: Dynamics of Coupled Atomic and Molecular Bose-Einstein Condensates*, Phys. Rev. Lett. **84**, 5029 (2000).
- [Hei02] D. J. Heinzen, *Magnetic Trapping, Collisions, and Spectroscopy of Ultracold Rb₂ Molecules*, Konferenzbeitrag, CM2002 in Les Houches (2002).
- [Her50] G. Herzberg, *Spectra of Diatomic Molecules*, (D. Van Nostrand Company, Inc., New York, 1950).
- [Her00] N. Herschbach, P. J. J. Tol, W. Vassen, W. Hogervorst, G. Woestenenk, J. W. Thomsen, P. van der Straten and A. Niehaus, *Photoassociation Spectroscopy of Cold He(²S) Atoms*, Phys. Rev. Lett. **84**, 1874 (2000).
- [Hes79] M. M. Hessel and C. R. Vidal, *The B¹Π_u-X¹Σ_g⁺ band system of the ⁷Li₂ molecule*, J. Chem. Phys. **70**, 4439 (1979).
- [Hir67] J. O. Hirschfelder and W. J. Meath, *Nature of Intermolecular Forces*, Adv. Chem. Phys. **12**, 3 (1967).

- [Jab45] A. Jabłoński, *General Theory of Pressure Broadening of Spectral Lines*, Phys. Rev. **68**, 78 (1945).
- [Ji95] B. Ji, C.-C. Tsai, L. Li, T.-J. Whang, A. M. Lyyra, H. Wang, J. T. Bahns, W. C. Stwalley and R. J. LeRoy, *Determination of the long-range potential and dissociation energy of the $1^3\Delta_g$ state of Na_2* , J. Chem. Phys. **103**, 7240 (1995).
- [Joa75] C. J. Joachain, *Quantum Collision Theory*, (North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1975).
- [Jon99] K. M. Jones, P. D. Lett, E. Tiesinga and P. S. Julienne, *Fitting line shapes in photoassociation spectroscopy of ultracold atoms: A useful approximation*, Phys. Rev. A **61**, 012501 (1999).
- [Jul96] P. S. Julienne, *Cold Binary Atomic Collisions in a Light Field*, J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. **101**, 487 (1996).
- [Jul98] P. S. Julienne, K. Burnett, Y. B. Band and W. C. Stwalley, *Stimulated Raman molecule production in Bose-Einstein condensates*, Phys. Rev. A **58**, R797 (1998).
- [Jul02a] P. S. Julienne, persönliche Mitteilung, März 2002 (2002).
- [Jul02b] P. S. Julienne, *Ultra-cold Collisions of Atoms and Molecules*, in *Scattering*, herausgegeben von R. Pike and P. Sabatier, (Academic Press, London, 2002).
- [Kin39] G. W. King and J. H. Van Vleck, *Dipole-Dipole Resonance Forces*, Phys. Rev. **55**, 1165 (1939).
- [Kus77] P. Kusch and M. M. Hessel, *An analysis of the $A^1\Sigma_u^+ - X^1\Sigma_g^+$ band system of $^7\text{Li}_2$* , J. Chem. Phys. **67**, 586 (1977).
- [Lab01] B. Laburthe Tolra, C. Drag and P. Pillet, *Observation of cold state-selected cesium molecules formed by stimulated Raman photoassociation*, Phys. Rev. A **64**, 061401(R) (2001).
- [LeR70] R. J. LeRoy and R. B. Bernstein, *Dissociation Energy and Long-Range Potential of Diatomic Molecules from Vibrational Spacings of Higher Levels*, J. Chem. Phys. **52**, 3869 (1970).
- [LeR72] R. J. LeRoy, *Dependence of the Diatomic Rotational Constant B_v on the Long-Range Internuclear Potential*, Can. J. Phys. **50**, 953 (1972).
- [LeR73] R. J. LeRoy, in *Molecular Spectroscopy*, herausgegeben von R. Barrow, (Chemical Society of London, London, 1973).
- [LeR80] R. J. LeRoy, *Applications of Bohr quantization in diatomic molecule spectroscopy*, in *Semiclassical Methods in Molecular Scattering and Spectroscopy*, herausgegeben von M. S. Child, (D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, 1980).

- [LeR02] R. J. LeRoy, *Energies, Intensities and Potentials: Concepts and Tools in Spectroscopy*, (Guelph-Waterloo Center for Graduate Work in Chemistry and Biochemistry, University of Waterloo, 2002).
- [Let93] P. D. Lett, K. Helmerson, W. D. Phillips, L. P. Ratliff, S. L. Rolston and M. E. Wagshul, *Spectroscopy of Na₂ by Photoassociation of Laser-Cooled Na*, Phys. Rev. Lett. **71**, 2200 (1993).
- [Li02] L. Li, A. Lazoudis, P. Yi, Y. Liu, J. Huennekens, R. W. Field and A. M. Lyyra, *Hyperfine structure of the $1^3\Delta_g$, $2^3\Pi_g$, and $3^3\Sigma_g^+$ states of $^6Li^7Li$* , J. Chem. Phys. **116**, 10704 (2002).
- [Lin89] C. Linton, T. L. Murphy, F. Martin, R. Bacis and J. Vergès, *Fourier transform spectroscopy of the $1^3\Sigma_g^+$ - $a^3\Sigma_u^+$ transition of the 6Li_2 molecule*, J. Chem. Phys. **91**, 6036 (1989).
- [Lin92] K. Lindquist, M. Stephens and C. Wieman, *Experimental and theoretical study of the vapor-cell Zeeman optical trap*, Phys. Rev. A **46**, 4082 (1992).
- [Lin96] C. Linton, F. Martin, I. Russier, A. J. Ross, P. Crozet, S. Churassy and R. Bacis, *Observation and Analysis of the $A^1\Sigma_u^+$ State of 6Li_2 from $v = 0$ to the Dissociation Limit*, J. Mol. Spec. **175**, 340 (1996).
- [Lin99] C. Linton, F. Martin, A. J. Ross, I. Russier, P. Crozet, A. Yiannopoulou, L. Li and A. M. Lyyra, *The High-Lying Vibrational Levels and Dissociation Energy of the $a^3\Sigma_u^+$ State of 7Li_2* , J. Mol. Spec. **196**, 20 (1999).
- [Mac00] M. Mackie, R. Kowalski and J. Javanainen, *Bose-Stimulated Raman Adiabatic Passage in Photoassociation*, Phys. Rev. Lett. **84**, 3803 (2000).
- [Mar88] F. Martin, R. Bacis, J. Vergès, C. Linton, G. Bujin, C. H. Cheng and E. Stad, *Fourier spectrometry investigation of the $1^3\Sigma_g^+ \rightarrow a^3\Sigma_u^+$ transition of the 7Li_2 molecule*, Spectrochimica Acta Part A **44**, 1369 (1988).
- [McA96] W. I. McAlexander, E. R. I. Abraham and R. G. Hulet, *Radiative lifetime of the $2P$ state of lithium*, Phys. Rev. A **54**, R5 (1996).
- [McK02] C. McKenzie, J. Hecker Denschlag, H. Häffner, A. Browaeys, L. E. E. de Araujo, F. K. Fatemi, K. M. Jones, J. E. Simsarian, D. Cho, A. Simoni, E. Tiesinga, P. S. Julienne, K. Helmerson, P. D. Lett, S. L. Rolston and W. D. Phillips, *Photoassociation of Sodium in a Bose-Einstein Condensate*, Phys. Rev. Lett. **88**, 120403 (2002).
- [Mea68] W. J. Meath, *Retarded Interaction Energies between Like Atoms in Different Energy States*, J. Chem. Phys. **48**, 227 (1968).
- [Met99] H. J. Metcalf and P. van der Straten, *Laser Cooling and Trapping*, (Springer, 1999).
- [Mil30] W. E. Milne, *The numerical determination of characteristic numbers*, Phys. Rev. **35**, 863 (1930).

- [Mil93] J. D. Miller, R. A. Cline and D. J. Heinzen, *Photoassociation Spectrum of Ultracold Rb Atoms*, Phys. Rev. Lett. **71**, 2204 (1993).
- [Mod02] G. Modugno, G. Roati, F. Riboli, F. Ferlaino, R. J. Brecha and M. Inguscio, *Collapse of a Degenerate Fermi Gas*, Science **297**, 2240 (2002).
- [Mon90] C. Monroe, W. Swann, H. Robinson and C. Wieman, *Very Cold Trapped Atoms in a Vapor Cell*, Phys. Rev. Lett. **65**, 1571 (1990).
- [Mos99] A. P. Mosk, M. W. Reynolds, T. W. Hijmans and J. T. M. Walraven, *Photoassociation of Spin-Polarized Hydrogen*, Phys. Rev. Lett. **82**, 307 (1999).
- [Mud02] M. Mudrich, S. Kraft, K. Singer, R. Grimm, A. Mosk and M. Weidemüller, *Sympathetic Cooling with Two Atomic Species in an Optical Trap*, Phys. Rev. Lett. **88**, 253001 (2002).
- [Mya96] C. J. Myatt, N. R. Newbury, R. W. Ghrist, S. Loutzenhiser and C. E. Wieman, *Multiply loaded magneto-optical trap*, Opt. Lett. **21**, 290 (1996).
- [Mya97] C. J. Myatt, E. A. Burt, R. W. Ghrist, E. A. Cornell and C. E. Wieman, *Production of Two Overlapping Bose-Einstein Condensates by Sympathetic Cooling*, Phys. Rev. Lett. **78**, 586 (1997).
- [Nap94] R. Napolitano, J. Weiner, C. J. Williams and P. S. Julienne, *Line Shapes of High Resolution Photoassociation Spectra of Optically Cooled Atoms*, Phys. Rev. Lett. **73**, 1352 (1994).
- [Nik99] A. N. Nikolov, E. E. Eyler, X. T. Wang, J. Li, H. Wang, W. C. Stwalley and P. L. Gould, *Observation of Ultracold Ground-State Potassium Molecules*, Phys. Rev. Lett. **82**, 703 (1999).
- [Phi82] W. D. Phillips and H. Metcalf, *Laser Deceleration of an Atomic Beam*, Phys. Rev. Lett. **48**, 596 (1982).
- [Phi92] W. D. Phillips, *Laser Cooling and Trapping of Neutral Atoms*, in *Laser Manipulation of Atoms and Ions, Proceedings of the International School of Physics 'Enrico Fermi', Varenna 1991*, herausgegeben von E. Arimondo, W. D. Phillips and F. Strumia, (North-Holland, Amsterdam, 1992).
- [Pil97] P. Pillet, A. Crubellier, A. Bleton, O. Dulieu, P. Nosbaum, I. Mourachko and F. Masnou-Seeuws, *Photoassociation in a gas of cold alkali atoms: I. Perturbative quantum approach*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **30**, 2801 (1997).
- [Pil02] P. Pillet, *Photoassociation of ultracold atoms, a way for ultracold molecules. A tutorial.*, Konferenzbeitrag, CM2002 in Les Houches (2002).
- [Pra98] M. Praeger, V. Vuletic, T. Fischer, T. W. Hänsch and C. Zimmermann, *A broad emitter diode laser system for lithium spectroscopy*, Appl. Phys. B **67**, 163 (1998).

- [Pro85] J. Prodan, A. Migdall, W. D. Phillips, I. So, H. Metcalf and J. Dalibard, *Stopping Atoms with Laser Light*, Phys. Rev. Lett. **54**, 992 (1985).
- [Raa87] E. L. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu and D. E. Pritchard, *Trapping of Neutral Sodium Atoms with Radiation Pressure*, Phys. Rev. Lett. **59**, 2631 (1987).
- [Rat87] L. B. Ratcliff, J. L. Fish and D. D. Konowalow, *Electronic Transition Dipole Moment Functions for Transitions among the Twenty-Six Lowest-Lying States of Li_2* , J. Mol. Spec. **122**, 293 (1987).
- [Rat94] L. P. Ratliff, M. E. Wagshul, P. D. Lett, S. L. Rolston and W. D. Phillips, *Photoassociative spectroscopy of 1_g , 0_u^+ , and 0_g^- states of Na_2* , J. Chem. Phys. **101**, 2638 (1994).
- [Ric95] L. Ricci, M. Weidemüller, T. Esslinger, A. Hemmerich, C. Zimmermann, V. Vuletic, W. König and T. W. Hänsch, *A compact grating-stabilized diode laser system for atomic physics*, Opt. Commun. **117**, 541 (1995).
- [Rit94] N. W. M. Ritchie, E. R. I. Abraham and R. G. Hulet, *Trap Loss Collisions of 7Li : The Role of Trap Depth*, Laser Phys. **4**, 1066 (1994).
- [Rit95] N. W. M. Ritchie, E. R. I. Abraham, Y. Y. Xiao, C. C. Bradley and R. G. Hulet, *Trap-loss collisions of ultracold lithium atoms*, Phys. Rev. A **51**, R890 (1995).
- [Rob01] J. L. Roberts, N. R. Claussen, S. L. Cornish, E. A. Donley, E. A. Cornell and C. E. Wieman, *Controlled Collapse of a Bose-Einstein Condensate*, Phys. Rev. Lett. **86**, 4211 (2001).
- [Sch85] I. Schmidt-Mink, W. Müller and W. Meyer, *Ground- and excited-state properties of Li_2 and Li_2^+ from ab initio calculations with effective core polarization potentials*, Chem. Phys. **92**, 263 (1985).
- [Sch97] U. Schünemann, *Magneto-optischer Einfang von Lithiumatomen mit Halbleiterlasern*, Doktorarbeit, Universität Heidelberg (1997).
- [Sch98a] U. Schlöder, *Ultrakalte Stöße zwischen Lithium- und Cäsiumatomen in einer kombinierten magneto-optischen Falle*, Diplomarbeit MPI H-V38, Universität Heidelberg (1998).
- [Sch98b] U. Schünemann, H. Engler, M. Zielonkowski, M. Weidemüller and R. Grimm, *Magneto-optic trapping of lithium using semiconductor lasers*, Opt. Commun. **158**, 263 (1998).
- [Sch99] U. Schlöder, H. Engler, U. Schünemann, R. Grimm and M. Weidemüller, *Cold inelastic collisions between lithium and cesium in a two-species magneto-optical trap*, Eur. Phys. J. D **7**, 331 (1999).
- [Sch01a] U. Schlöder, C. Silber and C. Zimmermann, *Photoassociation of heteronuclear lithium*, Appl. Phys. B. **73**, 801 (2001).

- [Sch01b] F. Schreck, L. Khaykovich, K. L. Corwin, G. Ferrari, T. Bourdel, J. Cubizolles and C. Salomon, *Quasipure Bose-Einstein Condensate Immersed in a Fermi Sea*, Phys. Rev. Lett. **87**, 080403 (2001).
- [Sch02a] U. Schlöder, C. Silber, T. Deuschle and C. Zimmermann, *Saturation in heteronuclear photoassociation of $^6\text{Li}^7\text{Li}$* , Phys. Rev. A **66**, 061403(R) (2002).
- [Sch02b] F. Schreck, *Mixtures of ultracold gases: Fermi sea and Bose-Einstein condensate of lithium isotopes*, Doctoral thesis of the Université Paris VI (2002).
- [Sil00] C. Silber, *Eine kombinierte magnetooptische Falle für bosonisches und fermionisches Lithium*, Diplomarbeit, Universität Tübingen (2000).
- [Sim02] A. Simoni, P. S. Julienne, E. Tiesinga and C. J. Williams, *Intensity effects in ultracold photoassociation line shapes*, in Vorbereitung (2002).
- [Sor72] M. S. Sorem and A. L. Schawlow, *Saturation spectroscopy in molecular iodine by intermodulated fluorescence*, Opt. Commun. **5**, 148 (1972).
- [Sto96] H. T. C. Stoof, M. Houbiers, C. A. Sackett and R. G. Hulet, *Superfluidity of Spin-Polarized ^6Li* , Phys. Rev. Lett. **76**, 10 (1996).
- [Stw75] W. C. Stwalley, *Mass-reduced quantum numbers: Application to the isotopic mercury hydrides*, J. Chem. Phys. **63**, 3062 (1975).
- [Suo96] K.-A. Suominen, *Theories for cold atomic collisions in light fields*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **29**, 5981 (1996).
- [Tak98] T. Takekoshi, B. M. Patterson and R. J. Knize, *Observation of Optically Trapped Cold Cesium Molecules*, Phys. Rev. Lett. **81**, 5105 (1998).
- [Tak02] Y. Takasu, K. Komori, K. Honda, K. Kumakura, Y. Takahashi and T. Yabuzaki, Poster, ICAP (2002).
- [Tho87] H. R. Thorsheim, J. Weiner and P. S. Julienne, *Laser-Induced Photoassociation of Ultracold Sodium Atoms*, Phys. Rev. Lett. **58**, 2420 (1987).
- [Tie01] E. Tiemann, persönliche Mitteilung, November 2001 (2001).
- [Tow95] C. G. Townsend, N. H. Edwards, C. J. Cooper, K. P. Zetie, C. J. Foot, A. M. Steane, P. Szriftgiser, H. Perrin and J. Dalibard, *Phase-space density in the magneto-optical trap*, Phys. Rev. A **52**, 1423 (1995).
- [Tru01] A. G. Truscott, K. E. Strecker, W. I. McAlexander, G. B. Partridge and R. G. Hulet, *Observation of Fermi Pressure in a Gas of Trapped Atoms*, Science **291**, 2570 (2001).
- [Tsa97] C. C. Tsai, R. S. Freeland, J. M. Vogels, H. M. J. M. Boesten, B. J. Verhaar and D. J. Heinzen, *Two-Color Photoassociation Spectroscopy of Ground State Rb_2* , Phys. Rev. Lett. **79**, 1245 (1997).

- [Urb96] K. Urbanski, S. Antonova, A. Yiannopoulou, A. M. Lyyra, L. Li and W. C. Stwalley, *All optical triple resonance spectroscopy of the $A^1\Sigma_u^+$ state of $^7\text{Li}_2$* , J. Chem. Phys. **104**, 2813 (1996).
- [Var97] A. Vardi, D. Abrashkevich, E. Frishman and M. Shapiro, *Theory of radiative recombination with strong laser pulses and the formation of ultracold molecules via stimulated photo-recombination of cold atoms*, J. Chem. Phys. **107**, 6166 (1997).
- [Vel69] R. Velasco, C. Ottinger and R. N. Zare, *Dissociation Energy of Li_2 from Laser-Excited Fluorescence*, J. Chem. Phys. **51**, 5522 (1969).
- [Ver81] K. K. Verma, M. E. Koch and W. C. Stwalley, *New Observations and Mass-Reduced Analyses of the Laser-Excited Fluorescence of the $B^1\Pi_u-X^1\Sigma_g^+$ Bands of the $^6\text{Li}^7\text{Li}$ Molecule*, J. Mol. Spec. **87**, 548 (1981).
- [Vul96] V. Vuletic, *Bosonisches und fermionisches Lithium in einer steilen magnetischen Falle*, Dissertation der Fakultät für Physik der Ludwig-Maximilians-Universität München (1996).
- [Wal94] T. Walker and P. Feng, *Measurements of collisions between laser-cooled atoms*, Adv. At. Mol. Opt. Phys. **34**, 125 (1994).
- [Wan96] H. Wang, P. L. Gould and W. C. Stwalley, *Photoassociative spectroscopy of ultracold ^{39}K atoms in a high-density vapor-cell magneto-optical trap*, Phys. Rev. A **53**, R1216 (1996).
- [Wan98a] H. Wang and W. C. Stwalley, *Ultracold photoassociative spectroscopy of heteronuclear alkali-metal diatomic molecules*, J. Chem. Phys. **108**, 5767 (1998).
- [Wan98b] X. Wang, H. Wang, P. L. Gould, W. C. Stwalley, E. Tiesinga and P. S. Julienne, *Observation of the pure long-range 1_u state of an alkali-metal dimer by photoassociative spectroscopy*, Phys. Rev. A **57**, 4600 (1998).
- [Wei30] V. Weisskopf and E. Wigner, *Berechnung der natürlichen Linienbreite auf Grund der Diracschen Lichttheorie*, Z. Phys. **63**, 54 (1930).
- [Wei99] J. Weiner, V. S. Bagnato, S. Zilio and P. S. Julienne, *Experiments and theory in cold and ultracold collisions*, Rev. Mod. Phys. **71**, 1 (1999).
- [Wig48] E. P. Wigner, *On the Behavior of Cross Sections Near Thresholds*, Phys. Rev. **73**, 1002 (1948).
- [Wyn00] R. Wynar, R. S. Freeland, D. J. Han, C. Ryu and D. J. Heinzen, *Molecules in a Bose-Einstein Condensate*, Science **287**, 1016 (2000).
- [Yan96] Z.-C. Yan, J. F. Babb, A. Dalgarno and G. W. F. Drake, *Variational calculations of dispersion coefficients for interactions among H, He, and Li atoms*, Phys. Rev. A **54**, 2824 (1996).

- [Zin00] G. Zinner, T. Binnewies, F. Riehle and E. Tiemann, *Photoassociation of Cold Ca Atoms*, Phys. Rev. Lett. **85**, 2292 (2000).

Danksagung

Ganz herzlich möchte ich mich bei allen bedanken, die zu dieser Arbeit beigetragen haben.

Insbesondere möchte ich Herrn Prof. Claus Zimmermann für die ausgezeichnete Betreuung danken. Der große Freiraum bei der Gestaltung des Projekts, verbunden mit seiner allzeitigen Diskussionsbereitschaft und seinem kritischen Scharfblick, haben eine sehr motivierende und anregende Arbeitsatmosphäre entstehen lassen.

Ein großes Dankeschön verdient auch Christian Silber, erst Diplomand und nun Doktorand, für die vielen patenten Ideen beim Aufbau des Experiments, für die unermüdliche Bedienung des Farbstofflasers bei der Datenaufnahme und für seine große Hilfsbereitschaft bei den unzähligen Problemen des Laboralltags.

Bei dem Diplomanden Thomas Deuschle möchte ich mich für den sorgfältigen Aufbau der Jodspektroskopie und die tatkräftige Unterstützung bei den Experimenten zur Zwei-Farben-Photoassoziation bedanken.

Vielen Dank auch an Thomas Fischer für sein gutes Händchen bei der Justage der Breitstreifenlaser und an Sebastian Günther für die kritische Durchsicht des Skripts.

Herrn Prof. E. Tiemann und Herrn Prof. P. S. Julienne danke ich für erhellende Diskussionen und theoretische Unterstützung.

Die Werkstätten haben mit schwäbischer Raffinesse und Perfektion immer wieder Unmögliches möglich gemacht. Auch dafür herzlichen Dank.

Für den starken Rückhalt in vielerlei Hinsicht möchte ich mich bei meinen Eltern bedanken.

