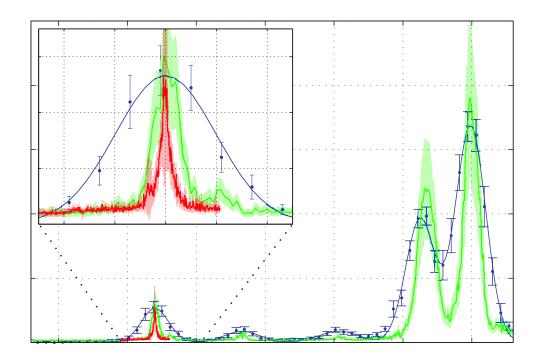
Hochauflösende Photoassoziationsspektroskopie von Rydberg-Dimeren und Trimeren

Diplomarbeit



Jonathan Balewski Dezember 2009

Hauptberichter: Prof. Dr. T. Pfau

Mitberichter: Prof. Dr. J. Wrachtrup



5. Physikalisches Institut

Universität Stuttgart

Titelbild Spektrum des 35s-Rydberg-Zustandes und der Dimer-Moleküle im Grundzustand (in der Einfügung vergrößert dargestellt) sowie zweier angeregter Zustände (Rydberg-Signal über Frequenz). Das Schaubild zeigt Messungen mit dem alten Aufbau (Messpunkte und angepasste Kurve, blau) und dem neuen Aufbau bei paralleler (grün) und antiparalleler (rot) Einstrahlung der beiden Anregungslaser. Die Verbesserung des Auflösungsvermögens ist offensichtlich (vgl. Abbildung 7.14 in Abschnitt 7.4).

Ehrenwörtliche Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich diese Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die von mir angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

Stuttgart, den 15. Dezember 2009

Jonathan Balewski

Inhaltsverzeichnis

Εi	nfüh	rung	1		
I	St	abilisierung und Charakterisierung des Lasersystems	5		
1	The 1.1	orie der Linienbreitenmessung Prinzip	7		
	1.2	Wiener-Kintchine-Theorem	8		
	1.3	Modell des Laserspektrums	10		
	1.4	Modell des detektierten Schwebungssignals	13		
2	Mes	sung der Laser-Linienbreite	23		
	2.1	Aufbau des verzögerten Selbst-Heterodyn-Interferometers	23		
	2.2	Selbst-Heterodyn-Verfahren mit kurzer Verzögerungszeit	25		
	2.3	Messung der Verzögerungszeit	26		
3	Stal	oilisierung des Lasersystems	29		
	3.1	Lasersystem zur Rydberg-Anregung	29		
	3.2	Charakterisierung des bestehenden Aufbaus			
	3.3	Durchgeführte Verbesserungen	36		
	3.4	Charakterisierung des verbesserten Aufbaus	45		
4	Zus	ammenfassung	51		
II	Pł	notoassoziation von Rydberg-Molekülen	53		
5	The	oretische Grundlagen	55		
	5.1	Rydberg-Atome	55		
	5.2	Rydberg-Moleküle	60		
	5.3	Moleküle im elektrischen Feld	67		
6	Experimentelle Realisierung				
	6.1	Präparation ultrakalter Atome	78		
	6.2	Rydberg-Anregung	79		
	6.3	Nachweis von Rydberg-Atomen und Molekülen	81		
	6.4	Einfluss des Offset-Magnetfeldes der Falle	88		

ii Inhaltsverzeichnis

7	Spe	ktroskopische Ergebnisse	91
	7.1	Nachweis von dreiatomigen Rydberg-Molekülen	. 91
	7.2	Messung der Lebensdauern von Rydberg-Atomen und Molekülen	. 93
	7.3	Stark-Effekt bei Rydberg-Molekülen	. 99
	7.4	Hochauflösende Spektroskopie des 35s-Zustandes	. 109
8	Zus	ammenfassung	115
Αι	ısblid	ck	115
A	nhai	ng	119
Α	Ber	echnungen zum verzögerten Selbst-Heterodyn-Verfahren	123
	A.1	Zum Modell des Laserspektrums	. 123
	A.2	Zum Modell des detektierten Schwebungssignals	. 125
В	Zur	Stabilisierung des Lasersystems	133
	B.1	Simulation der Laserdioden-Regelungselektronik	. 133
	B.2	Weitere Schaubilder zur Optimierung des Reglers für den roten Laser	. 135
	B.3	Frequenzeichung des Fehlersignals des roten Lasers	. 137
С	Zur	Gültigkeit der Fermischen Pseudopotential-Näherung	139
D	Zun	n Stark-Effekt bei Rydberg-Molekülen	141
	D.1	Berechnung der Stark-Energien	. 141
	D.2	Vergleich von Theorie und Experiment	. 146
Ε	Zur	Charakterisierung der MCP	149
	E.1	Erstellung der Pulsflächenhistogramme	. 149
	E.2	Weitere Messdaten zur Charakterisierung der MCP	. 152
Lit	terati	urverzeichnis	157

Einführung

Ein überwiegender Teil der heutigen Kenntnis über viele Bereiche der Physik, angefangen bei der Struktur der Atome und Moleküle bis hin zur Zusammensetzung des interstellaren Raums und der weitentferntesten Sterne, geht auf spektroskopische Untersuchungen zurück. Die Geschichte der Spektroskopie beginnt im Jahr 1666 [1], in dem Sir Isaac Newton entdeckte, dass Licht unterschiedlicher Farben unter verschiedenen Winkeln gebrochen wird [2]. Mehr als hundert Jahre später wurde das Experiment Newtons, bei dem Sonnenlicht in einem Prisma in seine Komponenten aufgespalten wird, von Fraunhofer wiederholt [3]. Er entdeckte dabei dunkle Linien im Spektrum, die später von Kirchhoff und Bunsen [4] als die Absorption verschiedener Elemente gedeutet werden konnten. Erste systematische Untersuchungen [5] dieser Absorptionslinien waren jedoch durch das Auflösungsvermögen der verwendeten Prismen- und Gitterspektrometer begrenzt.

Erst 1882 machte die Konstruktion einer Maschine zur Herstellung präziser Beugungsgitter durch Rowland [6] die Untersuchung dieser Spektren mit einem um mehr als eine Größenordnung höherem Auflösungsvermögen möglich. Diese revolutionäre Erfindung führte Ende des 19. Jahrhunderts zur systematischen Untersuchung der Spektren einer ganzen Reihe von Elementen [1].

Basierend auf den in diesen Messungen gewonnenen Daten wurden erste Versuche unternommen, die fundamentalen Gesetzmäßigkeiten zu finden, die den beobachteten Linienspektren zugrundeliegen. 1885 erkannte Balmer ausgehend von den systematischen Messungen Ångströms, dass die Wellenlängen der Linien im Spektrum des Wasserstoff-Atoms einem einfachen Seriengesetz gehorchen [7]. In der Darstellung durch Frequenzen statt Wellenlängen, deren Relevanz bereits 1883 von Hartley festgestellt wurde [8], wurde diese empirische Formel von Rydberg [9] und Schuster [10] erweitert und auf die Spektren von Alkali-Atomen verallgemeinert.

In dieser Formel tauchten nun erstmals Rydberg-Atome als Linien an der Seriengrenze auf [11]. Deren physikalische Bedeutung wurde jedoch erst 1913 durch die Entwicklung des Bohrschen Atommodells [12] klar. Demnach handelt es sich hierbei um Atome, bei denen sich mindestens ein Elektron in einem hochangeregten Zustand befindet und sich somit auf einer Bahn weit entfernt vom restlichen Atomrumpf bewegt. Die räumliche Ausdehnung eines Rydberg-Atoms kann daher je nach Zustand um mehrere Größenordnungen über der Größe im Grundzustand liegen.

Aus dieser Interpretation ließen sich nun eine ganze Reihe von speziellen Eigenschaften von Rydberg-Atomen ableiten. Erste Experimente, bei denen die Rydberg-Atome durch Elektronenstoß erzeugt wurden, beschäftigten sich mit der großen Empfindlichkeit des Rydberg-Elektrons gegenüber elektrischen Feldern [13], insbesondere dem Stark-Effekt und der Feldionisation. Ein weiterer Effekt, der durch den großen Bahnradius des Rydberg-Elektrons hervorgerufen wird, wurde 1934 von Amaldi und Segre [14] untersucht. Sie beobachteten die Verschiebung der Absorptionslinien der Rydberg-Serie von Kalium K in der Anwesenheit von verschiedenen

2 Einführung

Edelgasen. Zu dieser Zeit wurde erwartet, dass die zugesetzten Edelgasatome als polarisierbares Dielektrikum den Raum zwischen dem Atomrumpf K^+ und dem Rydberg-Elektron auffüllen und somit zu einer Rotverschiebung der Absorptionslinie führen [11]. Dies war für Argon und Helium auch der Fall, während für Neon eine Blauverschiebung festgestellt wurde, was im völligen Widerspruch zur Erwartung stand. Dieser Effekt wurde kurz darauf von Fermi [15] mit einem Modell erklärt, in dem die Wechselwirkung des Rydberg-Atoms mit den Edelgasatomen aus der wiederholten Streuung des Rydberg-Elektrons an den Edelgasatomen resultiert. Zur Behandlung dieser Streuung führte er erstmals den Formalismus der Streulänge ein. Je nach Zustand und Art des Neutralatoms kann diese verschiedene Vorzeichen annehmen und somit zu einer attraktiven oder repulsiven Wechselwirkung führen. Dies stellt den ersten Hinweis auf die Existenz von weitausgedehnten Rydberg-Molekülen, gebundenen Zuständen eines Rydberg-Atoms und Atomen im Grundzustand, dar, die Gegenstand dieser Arbeit sind. Die Wechselwirkungsenergie zwischen dem Rydberg-Elektron und dem streuenden Grundzustandsatom ist jedoch äußerst klein im Vergleich zur thermische Energie der Teilchen, die selbst bei Kühlung mit flüssigem Helium noch mehr als drei Größenordnungen über der zur erwartenden Bindungsenergie liegt. Daher war zum damaligen Zeitpunkt noch nicht an die Erzeugung derartiger Moleküle zu denken.

Die Konstruktion des ersten Lasers durch Maiman [16] im Jahre 1960, dessen theoretische Grundlagen durch Schawlow und Townes 1958 gelegt wurden [17], stellte nun die Technologie dar, die sich als bahnbrechend auf dem gesamten Feld der Atom- und Molekülphysik erwiesen hat. Die Erfindung des Lasers machte neue und genauere Spektroskopietechniken [18] sowie die selektive Anregung einzelner bestimmter Zustände von Atomen und Molekülen möglich. Die Entwicklung der Laserkühlung durch Chu, Cohen-Tannoudji und Phillips ([19][20][21], Nobelpreis 1997) erlaubte nun die Präparation hinreichend dichter und kalter Atomwolken mit Temperaturen im μK-Bereich. Nach der Erzeugung von hochangeregten Zuständen von Molekülen [22] und gebundenen Zuständen von zwei Rydberg-Atomen [23] rückten dann auch die weitausgedehnten Rydberg-Moleküle aus einem Rydberg-Atom und einem Grundzustandsatom in den Bereich des Möglichen. Basierend auf Fermis theoretischem Modell von 1934 sagte Greene [24] im Jahr 2000 die Existenz solcher Moleküle voraus, die 2008 an diesem Experiment von Bendkowsky et al. [25] durch Photoassoziation aus Rubidium ⁸⁷ Rb erstmals erzeugt und nachgewiesen wurden.

In diesem ersten Experiment konnten neben der Bindungsenergie im Bereich einiger MHz auch eine Veränderung der Lebensdauer relativ zum ungebunden Rydberg-Zustand festgestellt werden. Weitergehende, typische Moleküleigenschaften, wie sie zum Beispiel aus der Existenz zusätzlicher Freiheitsgrade aus der Rotations- oder Vibrationsbewegung resultieren, konnten dagegen aufgrund der zu geringen spektralen Auflösung bislang nicht beobachtet werden. Um die Auflösung des verwendeten Aufbaus zu verbessern, wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Stabilisierung des Lasersystems zur Rydberg-Anregung grundlegend umgebaut. Demnach gliedert sich diese Arbeit in zwei Teile.

Teil I behandelt die Charakterisierung und Stabilisierung des Anregungslasersystems und die daran durchgeführten Verbesserungen. Einen großen Teil nimmt hierbei das zur Messung der Laserlinienbreite verwendete verzögerte Selbst-Heterodyn-Verfahren ein. In Kapitel 1 werden die hierzu notwendigen theoretischen Grundlagen gelegt, während in Kapitel 2 die experimentelle Umsetzung beschrieben wird. In Kapitel 3 wird diese Technik dann zur Optimierung und Charakterisierung des Lasersystems eingesetzt. Neben der Dokumentation der durchgeführten

Einführung 3

Verbesserungen werden auch Vergleiche mit anderen Methoden zur Charakterisierung der Stabilität der Laser angestellt, um die tatsächliche Aussagekraft dieser Messmethode zu bestätigen. In Teil II werden das eigentliche Experiment zur hochauflösenden Spektroskopie von Rydberg-Molekülen (Kapitel 6) und die erhaltenen spektroskopischen Ergebnisse (Kapitel 7) dargestellt. Neben der erstmaligen Photoassoziation von dreiatomigen Rydberg-Molekülen, gebundenen Zuständen aus einem Rydberg-Atom und zwei Grundzustandsatomen, werden insbesondere Messungen der Lebensdauer verschiedener Molekülzustände und des Stark-Effekts zweiatomiger Rydberg-Moleküle vorgestellt. Die Auswertung dieser Ergebnisse liefert erste Erkenntnisse über weitergehender Moleküleigenschaften. Die zum Verständnis der Messungen und deren Interpretation notwendigen theoretischen Grundlagen werden in Kapitel 5 gelegt. Weiterführende Ausführungen und explizite Berechnungen, die nicht für das unmittelbare Verständnis notwendig sind, aber die Argumentationsführung belegen, finden sich im umfangreichen Anhang. Dies soll die Möglichkeit bieten, die dargestellten Überlegungen auch im Detail nachvollziehen zu können.

Grundsätzlich beziehen sich, sofern nicht anders angeben, alle Rydberg-Zustände auf den 35s-Zustand von ^{87}Rb , an dem sämtliche Messungen in dieser Arbeit durchgeführt wurden.

Die Quantenzahlen atomarer Zustände werden in Abgrenzung zu den molekularen Zuständen als Kleinbuchstaben dargestellt.

Sämtliche Gleichungen und Werte sind, auch und gerade im Theorieteil, in SI-Einheiten angegeben, um die direkte praktische Anwendung zu ermöglichen. Eine Ausnahme stellt das elektrische Dipolmoment dar, das in der historischen Einheit Debye angegeben wird (1 Debye = $3.3356 \cdot 10^{-30}$ Cm = 0.3935 a.u.).

Teil I Stabilisierung und Charakterisierung des Lasersystems

1 Theorie der Linienbreitenmessung

Herkömmliche optische Spektrometer wie zum Beispiel Gitterspektrometer oder durchstimmbare Fabry-Pérot Interferometer erreichen typischerweise Auflösungsgrenzen von bestenfalls 10 GHz bzw. 10 MHz im sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich [26]. Ein solches Auflösungsvermögen reicht nicht zur Untersuchung der Spektren schmalbandiger Lichtquellen wie stabilisierter Halbleiterlaser aus. Andere Möglichkeiten zur Messung der Linienbreiten solcher Laser sind entweder zu umständlich, als dass sie ein Optimieren der Stabilisierung erlauben würden (siehe Abschnitt 3.4.1) oder erfordern einen zweiten Laser im selben Frequenzbereich, der eine geringere oder zumindest gleich große Linienbreite wie der zu untersuchende Laser aufweist [27]. Ein stabilerer Laser steht oft nicht zur Verfügung, während die Verwendung eines identischen Lasers das Optimieren der Stabilisierung ebenfalls wieder umständlich macht. Das verzögerte Selbst-Heterodyn-Verfahren, das erstmals 1980 von Okoshi et al. [28] vorgestellt wurde, stellt dagegen eine relativ einfache Methode zur Linienbreitenmessung eines einzelnen Lasers mit Auflösungsvermögen bis zu wenigen kHz dar. Hier wird der zweite Laser durch einen verzögerten Teil des zu untersuchenden Laserlichts ersetzt. Im folgenden wird das Funktionsprinzip dieses Verfahrens erklärt und die zugrundeliegende Theorie hergeleitet, die unverzichtbar ist, um die Grenzen dieser Methode zu verstehen.

1.1 Prinzip

Die grundlegende Idee des verzögerten Selbst-Heterodyn-Verfahrens besteht darin, die Fluktuationen in der Frequenz bzw. Phase des Lasers in eine Intensitätsmodulation des Lichts umzuwandeln [29]. Dazu wird eine Art Mach-Zehnder-Interferometer verwendet, wie es in Abbildung 1.1 skizziert ist.

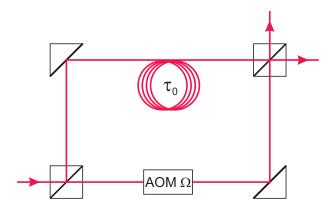


Abb. 1.1: Prinzipieller Aufbau eines Selbst-Heterodyn-Interferometers mit Verzögerungsstrecke der Laufzeit τ_0 und akustooptischem Modulator der Frequenz Ω .

Im einen Interferometerarm wird das zu untersuchende Licht durch eine optische Faser um die Laufzeit τ_0 verzögert und anschließend mit dem unverzögerten Strahl aus dem zweiten Arm überlagert. Die Linienbreite erhält man aus dem Leistungsspektrum des detektierten Interferenzsignals der überlagerten Strahlen (siehe Abschnitt 1.4.3). Zusätzlich wird das Licht in einem der beiden Arme mit Hilfe eines akustooptischen Modulators (AOM) um die Kreisfrequenz Ω verschoben, um das zu messende Schwebungssignal vom starken Hintergrundrauschen bei $\omega=0$ zu trennen. Liegt die Laufzeit τ_0 des Lichts durch die Verzögerungsstrecke in der Größenordnung der Kohärenzzeit des Lasers, so ist das Licht aus den beiden Interferometerarmen vollständig dekorreliert und der verzögerte Strahl lässt sich als unabhängiger zweiter, aber identischer, Laser betrachten (siehe Abschnitt 1.4.1). Im Fall kürzerer Verzögerungsstrecken lassen sich dagegen nur in gewissen Spezialfällen quantitative Aussagen über die Laserlinienbreite treffen (siehe Abschnitt 1.4.2).

1.2 Wiener-Kintchine-Theorem

Das Wiener-Kintchine-Theorem stellt ein wichtiges Werkzeug der Informationstheorie und der Mathematik von Zufallsprozessen dar [30][31] und bildet die Grundlage zum Verständnis des beim Heterodyn-Verfahren auftretenden Schwebungssignals. Es besagt allgemein, dass das Leistungsspektrum eines stationären Zufallsprozesses und die korrespondierende Autokorrelationsfunktion durch Fourier-Transformation ineinander übergehen. Dieser Zusammenhang wird weiter unten zur Herleitung der Spektren des Lasers in 1.3 und des Interferenzsignals in 1.4 benötigt und soll deshalb nun allgemein hergeleitet werden.

1.2.1 Definitionen

Da in der Literatur verschiedene äquivalente Definitionen, die sich lediglich in der Wahl der Normierungsfaktoren unterscheiden, existieren, sollen hier die grundlegenden Größen zur Theorie des verzögerten Selbst-Heterodyn-Verfahrens kurz aufgeführt werden.

Fourier-Transformation

Es wird ein Zufallsprozess betrachtet, der durch eine zeitabhängige Funktion v(t) mit der Fourier-Transformierten V(t) dargestellt werde:

$$v(t) = \mathcal{F}^{-1}V = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} V(\omega)e^{i\omega t}d\omega$$
 (1.1)

$$V(\omega) = \mathcal{F}v = \int_{-\infty}^{\infty} v(t)e^{-i\omega t}dt$$
 (1.2)

Im realen Fall wird das Signal v(T) nur über ein endliches Zeitintervall der Länge T gemessen, sodass die Fourier-Transformierte $V(\omega)$ in Gleichung 1.2 durch die Fourier-Transformation des

abgeschnittenen Signals ersetzt werden muss [32]:

$$V_T(\omega) = \int_{-T/2}^{T/2} v(t)e^{-i\omega t}dt$$
(1.3)

Diese Definition gewährleistet, dass die auftretenden Integrale für alle in der Praxis relevanten Funktionen ohne Polstellen existieren.

Spektrale Leistungsdichte

Das Betragsquadrat der Funktion v(t) soll eine Energiegröße darstellen, sodass sich folglich aus Gleichung 1.3 für die mittlere Leistung P ergibt:

$$P = \lim_{T \to \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} v(t) v^*(t) dt$$

$$= \lim_{T \to \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} v(t) \left(\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} V_T^*(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \right) dt$$

$$= \lim_{T \to \infty} \frac{1}{2\pi T} \int_{-\infty}^{\infty} \left(\int_{-T/2}^{T/2} v(t) e^{-i\omega t} dt \right) V_T^*(\omega) d\omega$$

$$= \lim_{T \to \infty} \frac{1}{2\pi T} \int_{-\infty}^{\infty} V_T(\omega) V_T^*(\omega) d\omega$$

$$P = \int_{-\infty}^{\infty} \lim_{T \to \infty} \frac{|V_T(\omega)|^2}{2\pi T} d\omega$$

$$(1.4)$$

Der hierbei auftretende Integrand

$$S_v(\omega) = \lim_{T \to \infty} \frac{|V_T(\omega)|^2}{2\pi T}$$
 (1.5)

ist die spektrale Leistungsdichte $S_v(\omega)$ von v(t). Demnach gibt $S_v(\omega)d\omega$ die mittlere Leistung der Frequenzkomponenten im Frequenzintervall zwischen ω und $\omega+d\omega$ an.

1.2.2 Herleitung

Zur Herleitung des Wiener-Kintchine-Theorems wird die Autokorrelationsfunktion $C_v(t)^1$ von v(t) betrachtet, wobei mit Gleichung 1.3 zu Fourier-transformierten Größen übergegangen wird:

$$C_{v}(\tau) = \langle v^{*}(t)v(t+\tau)\rangle = \lim_{t \to \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} v^{*}(t)v(t+\tau) dt$$

$$= \lim_{t \to \infty} \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} dt \frac{1}{4\pi^{2}} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' V_{T}^{*}(\omega) V_{T}(\omega') e^{i(\omega'-\omega)t} e^{i\omega\tau}$$

$$= \lim_{t \to \infty} \frac{1}{4\pi^{2}T} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' V_{T}^{*}(\omega) V_{T}(\omega') e^{i\omega\tau} \left(\int_{-T/2}^{T/2} e^{i(\omega'-\omega)t} dt \right)$$

$$= \lim_{t \to \infty} \frac{1}{2\pi T} \int_{-\infty}^{\infty} V_{T}^{*}(\omega) V_{T}(\omega) e^{i\omega\tau} d\omega$$

¹Hier als stationär angenommen: $C(t, t + \tau) = C(\tau)$ [31]

$$C_v(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \lim_{t \to \infty} \frac{|V_T(\omega)|^2}{2\pi T} e^{i\omega\tau} d\omega$$
 (1.6)

Im vorletzten Schritt wurde verwendet, dass $\int_{-T/2}^{T/2} e^{i(\omega'-\omega)t} dt$ im Grenzwert $T\to\infty$ gegen $2\pi\delta(\omega'-\omega)$ geht. Mit der Definition der spektralen Leistungsdichte $S_v(\omega)$ in Gleichung 1.5 folgt nun unmittelbar die Aussage des Wiener-Kintchine-Theorems:

$$C_v = \mathcal{F}^{-1} S_v \quad \Leftrightarrow \quad S_v = \mathcal{F} C_v \tag{1.7}$$

Die spektrale Leistungsdichte S_v einer Größe v ist also die Fourier-Transformierte der zugehörigen Autokorrelationsfunktion C_v .

1.3 Modell des Laserspektrums

Bevor in Abschnitt 1.4 das am Interferometer detektierte Schwebungssignal hergeleitet wird, muss zunächst der Zusammenhang zwischen dem Phasenrauschen eines Lasers und der Form des daraus resultierenden Spektrums betrachtet werden. In diesem Abschnitt werden hierfür einige in der Literatur übliche Spezialfälle angegeben.

Das elektrische Feld eines idealen monochromatischen Lasers mit Kreisfrequenz ω_0 und Amplitude E_0 lässt sich als Realteil einer komplexen Größe E(t) darstellen:

$$E(t) = E_0 e^{i(\omega_0 t + \Theta)} \tag{1.8}$$

Hiebei steht Θ für eine konstante Phase. Ein reales Laserfeld weist dagegen zufällige Variationen in Amplitude und Phase auf, die sich zum einen auf praktische Probleme wie akustische Störungen und thermische Schwankungen zurückführen lassen; diese lassen sich zumindest theoretisch durch verschiedene Verbesserungen und die Stabilisierung des Lasers beseitigen. Zum anderen existiert aber auch eine fundamentale Untergrenze für das Rauschen, die quantenmechanischer Natur ist [30]. Durch spontane Emission von Photonen addieren sich kontinuierlich inkohärent Feldkomponenten zum Laserfeld, was zu Phasen- und Amplitudenfluktuationen führt. Letztere sind jedoch bei Pumpleistungen weit oberhalb der Laserschwelle vernachlässigbar [33], sodass sich sich das elektrische Feld einer einzelnen longitudinalen Lasermode mit der mittleren Kreisfrequenz ω_0 dann als quasimonochromatisches Feld mit konstanter Amplitude E_0 darstellen lässt [33][34]:

$$E(t) = E_0 e^{i(\omega_0 t + \phi(t))} \tag{1.9}$$

Aus den zufälligen Fluktuationen $\phi(t)$ der Phase resultiert dann eine Linienverbreiterung im Frequenzspektrum. Die zeitliche Schwankung der Kreisfrequenz ergibt sich demnach als die zeitliche Ableitung der Phase [26]:

$$\omega(t) = \omega_0 + \frac{d\phi}{dt} \tag{1.10}$$

Diese Momentanfrequenz setzt sich aus der konstanten mittleren Frequenz ω_0 und einem zeitlich fluktuierenden Anteil $\frac{d\phi}{dt}(t)$ zusammen. Daraus folgt durch Integration das Phasenrauschen $\Delta\phi(t,\tau)$ zwischen den Zeiten t und $t+\tau$:

$$\Delta\phi(t,\tau) = \phi(t+\tau) - \phi(t) = \int_{t}^{t+\tau} (\omega(t') - \omega_0) dt'$$
(1.11)

Damit lässt sich das mittlere quadratische Phasenrauschen darstellen als²

$$\langle \Delta \phi^{2}(t,\tau) \rangle = \langle (\phi(t+\tau) - \phi(t))^{2} \rangle$$

$$= \langle \int_{t}^{t+\tau} \int_{t}^{t+\tau} \omega(t')\omega(t'') dt' dt'' \rangle$$

$$\langle \Delta \phi^{2}(t,\tau) \rangle = \int_{t}^{t+\tau} \int_{t}^{t+\tau} \langle \omega(t')\omega(t'') \rangle dt' dt''$$
(1.12)

wobei mit $\langle ... \rangle$ der Zeitmittelwert bezeichnet wird. Mit Hilfe der Autokorrelationsfunktion der Momentankreisfrequenzfluktuationen $\omega(t)$ [26]

$$Q(t - t') = \langle \omega(t)\omega(t') \rangle \tag{1.13}$$

lässt sich Gleichung (1.12), wie im Anhang A.1.1 explizit durchgeführt, vereinfachen:

$$\left\langle \Delta \phi^2(t,\tau) \right\rangle = 2 \int_0^\tau (\tau - t) Q(t) dt \tag{1.14}$$

Führt man das Leistungsspektrum $S_{\phi}(\omega)$ der Momentankreisfrequenz ein, das nach dem Wiener-Kintchine-Theorem (siehe Abschnitt 1.2 und [26][33]) durch die Fourier-Transformierte der Autokorrelationsfunktion Q(t) der Momentankreisfrequenz $\omega(t)$ gegeben ist, so erhält man den folgenden Zusammenhang zwischen dem mittleren quadratischen Phasenrauschen und dem Spektrum $S_{\phi}(\omega)$ (siehe Anhang A.1.2):

$$\langle \Delta \phi^2(t,\tau) \rangle = \frac{\tau^2}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \left(\frac{\sin(\frac{\omega\tau}{2})}{\frac{\omega\tau}{2}} \right)^2 S_{\phi}(\omega) d\omega$$
 (1.15)

1.3.1 Weißes Frequenzrauschen

Für ein weißes, also frequenzunabhängiges Fluktuationsspektrum der Momentanfrequenz lässt sich die Linienform analytisch berechnen. Ein solches Spektrum wird in der Literatur [29][33][35] für hinreichend hohe Laserleistungen angenommen, da der frequenzabhängige Anteil umgekehrt proportional zur Leistung abnimmt [36]. Unter dieser Voraussetzung gilt also:

$$S_{\phi}(\omega) = S_0 = const. \tag{1.16}$$

Durch Ausführen der Integration in Gleichung (1.15) findet man, dass das mittlere quadratische Phasenrauschen linear mit der Zeitverschiebung $|\tau|$ zunimmt:

$$\langle \Delta \phi^2(t,\tau) \rangle = \frac{\tau^2}{2\pi} S_0 \int_{-\infty}^{\infty} \left(\frac{\sin(\frac{\omega\tau}{2})}{\frac{\omega\tau}{2}} \right)^2 d\omega = S_0 |\tau|$$
 (1.17)

Das Leistungsspektrum $S_E(\omega)$ des Laserfeldes ist nach dem Wiener-Khintchine-Theorem durch die Fourier-Transformation der Autokorrelationsfunktion erster Ordnung des elektrischen Feldes gegeben (siehe Abschnitt 1.2 und [26][33]). Diese ist definiert als [33]:

$$G_E^{(1)}(\tau) = \langle E^*(t)E(t+\tau)\rangle \tag{1.18}$$

²Hierbei wurde zur übersichtlicheren Gestaltung der Rechnung die Umdefinition $\omega(t) = \omega(t) - \omega_0$ vorgenommen. $\omega(t)$ bezeichnet nun das statistische Rauschen mit Mittelwert 0 um die mittlere Kreisfrequenz.

Einsetzen des elektrischen Feldes aus Gleichung (1.9) führt auf:

$$G_E^{(1)}(\tau) = E_0^2 e^{i\omega_0 \tau} \left\langle e^{i\Delta\phi(t,\tau)} \right\rangle \tag{1.19}$$

Unter der Voraussetzung, dass das Phasenrauschen $\Delta\phi(t,\tau)$ eine zufällige Verteilung um $\phi=0$ aufweist, lässt sich die Relation³

$$\left\langle e^{i\Delta\phi(t,\tau)}\right\rangle = e^{-\frac{1}{2}\left\langle \Delta\phi^2(t,\tau)\right\rangle}$$
 (1.20)

verwenden und man erhält:

$$G_E^{(1)}(\tau) = E_0^2 e^{i\omega\tau} e^{-\frac{1}{2}\left\langle \Delta\phi^2(t,\tau)\right\rangle} \tag{1.21}$$

Durch Fourier-Transformation ergibt sich dann ein Lorentz-förmiges Laserspektrum mit der vollen Halbwertsbreite S_0 (siehe Anhang A.1.3) [33][34]:

$$S_E(\omega) = \mathcal{F}G_E^{(1)}(\tau) = 2E_0^2 \frac{\frac{1}{2}S_0}{\left(\frac{1}{2}S_0\right)^2 + (\omega - \omega_0)^2}$$
(1.22)

1.3.2 Auswirkung von 1/f-Rauschen

Reale Laser weisen einen nicht vernachlässigbaren Anteil frequenzabhängigen Rauschens auf. Das Leistungsspektrum der Frequenzfluktuationen setzt sich dann aus einem konstanten (weißen) Anteil und einem umgekehrt proportional zur Frequenz abfallenden Anteil auf [34]:

$$S_{\phi}(\omega) = S_0 + \frac{k}{|\omega|} \tag{1.23}$$

Der zweite Summand liefert eingesetzt in Gleichung 1.17 keine analytische Lösung. Die Linienform, die aus reinem 1/f-Rauschen resultiert, lässt sich jedoch nach [34] mit hinreichender Genauigkeit durch eine Gauß-Kurve approximieren:

$$S_E(\omega) \propto e^{-\ln 2\left(\frac{\omega - \omega_0}{\Delta\omega/2}\right)^2}$$
 (1.24)

Wobei ω_0 die Zentralfrequenz und $\Delta\omega$ die volle Halbwertsbreite angeben.

Für den allgemeineren Fall der Kombination von 1/f und weißem Rauschen ergibt sich dann als Linienform ein Voigt-Profil [34], die Faltung einer Gauß- und einer Lorentz-Kurve:

$$S_V = (S_G \otimes S_L)(\omega)$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} S_G(\omega') S_L(\omega - \omega') d\omega'$$
(1.25)

Für die Linienbreite des Voigt-Profils können lediglich Näherungsformeln angegeben werden. Mit einer Genauigkeit von etwa 0,02% gilt zum Beispiel (so genannte modifizierte Whiting-Näherung [37]):

$$\Delta\omega = 0.5346 \,\Delta\omega_L + \sqrt{0.2165975 \,\Delta\omega_L^2 + \Delta\omega_G^2}$$
 (1.26)

Dabei geben $\Delta\omega_L$ und $\Delta\omega_G$ die Linienbreiten (FWHM) der Lorentz- bzw. Gauß-Kurve, aus denen sich das Voigt-Profil zusammensetzt, an.

³Durch Taylor-Entwicklung der Exponentialfunktion lässt sich der zeitliche Mittelwert im Exponenten bilden und vereinfachen.

1.4 Modell des detektierten Schwebungssignals

1.4.1 Schwebungssignal für unendliche Verzögerungszeit und beliebige Linienformen

Für beliebige Linienformen und damit auch frequenzabhängige Rauschspektren lässt sich für das Schwebungssignal beim verzögerten Selbst-Heterodyn-Verfahren (siehe Abschnitt 1.1) nur im Grenzfall unendlicher Verzögerungszeit bzw. verschwindender Kohärenzzeit des untersuchten Lasers ein analytisches Ergebnis angeben. In diesem Fall sind die überlagerten Strahlen der beiden Interferometerarme vollständig dekorreliert [38] und der verzögerte Strahl kann als unabhängiger zweiter Laser betrachtet werden.

Da der Photostrom des Detektors proportional zur Intensität des einfallenden Lichts ist, erhält man das Spektrum des Schwebungssignals nach dem Wiener-Kintchine-Theorem (siehe Abschnitt 1.2) durch die Fourier-Transformation der Autokorrelationsfunktion der Intensität, also die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung des elektrischen Feldes. Diese ist definiert als [33]:

$$S_I(\omega) = \mathcal{F}G_I^{(1)}(\omega) = \mathcal{F}\langle I(t)I(t+\tau)\rangle$$
(1.27)

Die Intensität I(t) setzt sich hierbei aus den zunächst allgemein als $E_1(t)$ und $E_2(t)$ angenommenen elektrischen Feldern aus den beiden jeweiligen Interferometerarmen zusammen⁴:

$$I(t) = (E_1(t) + E_2(t))^2 = E_1^2(t) + E_2^2(t) + 2E_1(t)E_2(t)$$
(1.28)

Einsetzen in Gleichung 1.27 zeigt, dass nur der Interferenzterm $I_x(t)=2E_1(t)E_2(t)$ einen Beitrag zum Schwebungssignal um die Frequenz $\omega=\Omega$ liefert; die anderen Terme liefern ein Hintergrundsignal bei $\omega=0$ bzw. verschwinden. Der relevante Teil des Spektrums lautet also [38]:

$$S_{I_x}(\omega) = \mathcal{F}G_{I_x}^{(1)}(\omega) = \mathcal{F} \langle I_x(t)I_x(t+\tau) \rangle$$

$$= \mathcal{F} \langle 2E_1(t)E_2(t)2E_1(t+\tau)E_2(t+\tau) \rangle$$

$$= 4\mathcal{F} \langle E_1(t)E_1(t+\tau)E_2(t)E_2(t+\tau) \rangle$$
(1.29)

Die beiden Felder $E_1(t)$ und $E_2(t)$ werden nun als vollständig dekorreliert angenommen. Dann lässt sich der Satz anwenden, dass der Mittelwert eines Produkts zweier statistisch unabhängiger Zufallsprozesse gleich dem Produkt der Mittelwerte ist, und man erhält:

$$S_{I_x}(\omega) = 4\mathcal{F}\left(\langle E_1(t)E_1(t+\tau)\rangle \langle E_2(t)E_2(t+\tau)\rangle\right)$$

$$= 4\mathcal{F}\left(G_{E_1}^{(1)}(\tau)G_{E_2}^{(1)}(\tau)\right)$$

$$S_{I_x}(\omega) = \frac{2}{\pi}\left(\mathcal{F}G_{E_1}^{(1)}\otimes\mathcal{F}G_{E_2}^{(1)}\right)(\omega)$$
(1.30)

Hierbei wurde im letzten Schritt das Faltungstheorem angewendet. Mit Hilfe des Wiener-Kintchine-Theorems (siehe Abschnitt 1.2) lassen sich nun die Fourier-Transformierten der Autokorrelationsfunktionen der beiden elektrischen Felder $E_1(t)$ und $E_2(t)$ durch die jeweiligen Leistungsspektren ersetzen:

$$S_{I_x}(\omega) \propto (S_{E_1} \otimes S_{E_2})(\omega)$$
 (1.31)

⁴Um die Rechnung übersichtlicher zu gestalten, wurde hier die reelle Darstellung der Felder gewählt.

Für Leistungsspektren $S(\omega)$ von reellen Größen gilt $S(-\omega) = S^*(\omega)$ (siehe Gleichung (1.3)). Damit lässt sich das Spektrum $S_{I_x}(\omega)$ aus Gleichung (1.31) auch als Kreuzkorrelation der Leistungsspektren der beiden elektrischen Felder ausdrücken:

$$S_{I_x}(\omega) \propto (S_{E_1} \otimes S_{E_2}) (\omega)$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} S_{E_1}(\omega') S_{E_2}(\omega - \omega') d\omega'$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} S_{E_1}(\omega'' + \omega) S_{E_2}(-\omega'') d\omega''$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} S_{E_1}(\omega + \omega'') S_{E_2}^*(\omega'') d\omega''$$

$$S_{I_x}(\omega) \propto (S_{E_1} \star S_{E_2}) (\omega)$$
(1.32)

Das Spektrum des detektierten Schwebungssignals ergibt sich also im Fall langer Verzögerungszeiten τ_0 durch Faltung oder Kreuzkorrelation der Spektren der elektrischen Felder aus den beiden Interferometerarmen. Im allgemeinen spiegelt die Form des Schwebungssignals also nicht die Linienform des untersuchten Lasers wider. Dies gilt nur im Fall von Linienformen, die sich bei Faltung bzw. Autokorrelation⁵ reproduzieren [38], was in den weiter unten aufgeführten drei Spezialfällen zutrifft.

In [38] wird eine intuitive Erklärung für die Gleichungen (1.31) bzw. (1.32) angegeben. Dabei wird davon ausgegangen, dass sich die interferierenden elektrischen Felder E_1 und E_2 der beiden Interferometerarme als ein Ensemble quasimonochromatischer kohärenter Bestandteile darstellen lassen, obwohl die gesamten Felder als vollständig dekorreliert angenommen werden (siehe oben). Diese kohärenten monochromatischen Komponenten können miteinander interferieren und liefern jeweils paarweise ein Schwebungssignal. Das Integral über ω'' in Gleichung (1.32) lässt sich dann so deuten, dass sich das Schwebungssignal bei der Frequenz ω aus der Superposition der Beiträge $S_{E_1}(\omega + \omega'')S_{E_2}^*(\omega'')$ sämtlicher Paare⁶ von Spektrallinien ergibt, die einen Frequenzabstand von ω aufweisen.

Lorentz-förmiges Laserspektrum

Im Fall eines konstanten Rauschspektrums sind beide Laserspektren Lorentz-förmig mit der selben Linienbreite (FWHM) $\Delta\omega$ (siehe Gleichung 1.22 in Abschnitt 1.3.1):

$$S_{E_{1/2}}(\omega) \propto \frac{(\frac{1}{2}\Delta\omega)^2}{(\frac{1}{2}\Delta\omega)^2 + \omega^2}$$
 (1.33)

Einsetzen in die Fourier-transformierte Gleichung (1.31) liefert unter Ausnutzung des Faltungssatzes:

$$\mathcal{F}(S_{I_x})(t) \propto \mathcal{F}(S_{E_1} \otimes S_{E_2})(t)$$

=
$$\mathcal{F}(S_{E_1})(t) \cdot \mathcal{F}(S_{E_2})(t)$$

⁵Die Kreuzkorrelationsfunktion zweier identischer Linienformen ist die Autokorrelationsfunktion.

⁶Streng genommen müsste die symmetrisierte Summe $\frac{1}{2}\left(S_{E_1}(\omega+\omega'')S_{E_2}^*(\omega'')+S_{E_2}(\omega+\omega'')S_{E_1}^*(\omega'')\right)$ gebildet werden, was aber aufgrund der Symmetrie des Problems zu Gunsten der Übersichtlichkeit unterlassen werden kann.

$$\mathcal{F}(S_{I_x})(t) \propto \mathcal{F}\left(\frac{(\frac{1}{2}\Delta\omega)^2}{(\frac{1}{2}\Delta\omega)^2 + \omega^2}\right)(t) \cdot \mathcal{F}\left(\frac{(\frac{1}{2}\Delta\omega)^2}{(\frac{1}{2}\Delta\omega)^2 + \omega^2}\right)(t)$$

$$= \pi \frac{\Delta\omega}{2} e^{-\frac{1}{2}\Delta\omega|t|} \cdot \pi \frac{\Delta\omega}{2} e^{-\frac{1}{2}\Delta\omega|t|}$$

$$= \pi \frac{\Delta\omega}{4} \pi \Delta\omega e^{-\Delta\omega|t|}$$

$$\mathcal{F}(S_{I_x})(t) \propto \mathcal{F}\left(\frac{(\Delta\omega)^2}{(\Delta\omega)^2 + \omega^2}\right)(t)$$

Hierbei wurde ausgenutzt, dass die Fourier-Transformation einer Lorentz-Kurve auf eine Exponentialfunktion mit linearem Exponenten führt (siehe Anhang A.2.4). Durch inverse Fourier-Transformation erhält man ein Lorentz-förmiges Spektrum, jedoch mit der doppelten Linienbreite $2\Delta\omega$ [38]:

$$S_{I_x}(\omega) \propto \frac{(\Delta\omega)^2}{(\Delta\omega)^2 + \omega^2}$$
 (1.34)

Dieses stimmt mit dem Ergebnis 1.47 der Rechnung für allgemeine Verzögerungszeiten τ_0 im Grenzfall $\tau_0 \to \infty$ in Abschnitt 1.4.2 überein.

Gauß-förmiges Laserspektrum

Im Fall von reinem 1/f-Rauschen, also eines Gauß-förmigen Laserspektrums (siehe Abschnitt 1.3.2),

$$S_{E_{1/2}}(\omega) \propto e^{-\ln 2\left(\frac{\omega}{\Delta\omega/2}\right)^2}$$
 (1.35)

erhält man ebenfalls ein Gauß-förmiges Spektrum mit einer um den Faktor $\sqrt{2}$ größeren Linienbreite:

$$S_{L_r}(\omega) \propto e^{-\ln 2\left(\frac{\omega}{\Delta\omega/\sqrt{2}}\right)^2}$$
 (1.36)

Einsetzen in die Fourier-transformierte Gleichung (1.31) liefert nämlich, da die Fourier-Transformation einer Gauß-Kurve wieder eine Gauß-Kurve liefert (siehe Anhang A.2.5):

$$\mathcal{F}(S_{I_{x}})(t) \propto \mathcal{F}(S_{E_{1}})(t) \cdot \mathcal{F}(S_{E_{2}})(t)$$

$$\propto \mathcal{F}\left(e^{-\left(\frac{\omega}{\Delta\omega/\sqrt{2\ln 2}}\right)^{2}\right)(t) \cdot \mathcal{F}\left(e^{-\left(\frac{\omega}{\Delta\omega/\sqrt{2\ln 2}}\right)^{2}\right)}(t)$$

$$=\sqrt{\pi} \frac{\Delta\omega}{\sqrt{2\ln 2}} e^{-\frac{(\Delta\omega/\sqrt{2\ln 2})^{2}}{4}y^{2}} \cdot \sqrt{\pi} \frac{\Delta\omega}{\sqrt{2\ln 2}} e^{-\frac{(\Delta\omega/\sqrt{2\ln 2})^{2}}{4}y^{2}}$$

$$=\sqrt{\pi} \frac{\Delta\omega}{2\sqrt{\ln 2}} \sqrt{\pi} \frac{\Delta\omega}{\sqrt{\ln 2}} e^{-\frac{(\Delta\omega/\sqrt{\ln 2})^{2}}{4}y^{2}}$$

$$\mathcal{F}(S_{I_{x}})(t) \propto \mathcal{F}\left(e^{-\left(\frac{\omega}{\Delta\omega/\sqrt{\ln 2}}\right)^{2}\right)}(t)$$

$$(1.37)$$

Durch inverse Fourier-Transformation erhält man das Ergebnis (1.36).

Voigt-förmiges Laserspektrum

Im kombinierten Fall von konstantem und 1/f-Rauschen erhält man ein Voigt-förmiges Laserspektrum (siehe Abschnitt 1.3.2):

$$S_{E_{1/2}}(\omega) = \left(S_{G_{1/2}} \otimes S_{L_{1/2}}\right)(\omega) \tag{1.38}$$

Eingesetzt in die Fourier-transformierte Gleichung (1.31) ergibt durch mehrmalige Anwendung des Faltungssatzes:

$$\mathcal{F}(S_{I_{x}})(t) \propto \mathcal{F}(S_{E_{1}})(t) \cdot \mathcal{F}(S_{E_{2}})(t)$$

$$= \mathcal{F}(S_{G_{1}} \otimes S_{L_{1}})(t) \cdot \mathcal{F}(S_{G_{2}} \otimes S_{L_{2}})(t)$$

$$= \mathcal{F}(S_{G_{1}})(t) \cdot \mathcal{F}(S_{L_{1}})(t) \cdot \mathcal{F}(S_{G_{2}})(t) \cdot \mathcal{F}(S_{L_{2}})(t)$$

$$= \mathcal{F}(S_{G_{1}} \otimes S_{G_{2}})(t) \cdot \mathcal{F}(S_{L_{1}} \otimes S_{L_{2}})(t)$$

$$\mathcal{F}(S_{I_{x}})(t) \propto \mathcal{F}[(S_{G_{1}} \otimes S_{G_{2}}) \otimes (S_{V_{1}} \otimes S_{V_{2}})](t)$$

$$(1.39)$$

Inverse Fourier-Transformation oder explizite Berechnung von Gleichung (1.31) (siehe Anhang A.2.6) führt auf:

$$S_{I_r}(\omega) \propto \left[\left(S_{G_1} \otimes S_{G_2} \right) \otimes \left(S_{V_1} \otimes S_{V_2} \right) \right] (\omega) \tag{1.40}$$

Da die Faltung von Lorentz- und Gauß-Kurven wieder auf Lorentz- bzw. Gauß-Kurven führt (siehe oben), erhält man für das Leistungsspektrum $S_{I_x}(\omega)$ im Fall eines Voigt-förmigen Laserspektrums wieder eine Voigt-Kurve, wobei die Breite des Gauß-Anteils der $\sqrt{2}$ -fachen und die Breite des Lorentz-Anteil der doppelten Breite des jeweiligen Anteils des ursprünglichen Laserspektrums entsprechen. Die Linienbreite $\Delta \omega$ des detektierten Leistungsspektrums hängt dann nach der Näherung (1.26) mit den Linienbreiten $\Delta \omega_L$ und $\Delta \omega_G$ der Lorentz- und Gauß-Anteile der eigentlichen Laserlinienbreite folgendermaßen zusammen:

$$\Delta\omega = 0,5346 \left(2 \cdot \Delta\omega_L\right) + \sqrt{0,2165975 \left(2 \cdot \Delta\omega_L\right)^2 + \left(\sqrt{2} \cdot \Delta\omega_G\right)^2}$$
 (1.41)

Beim verzögerten Selbst-Heterodyn-Verfahren (siehe Abschnitt 1.1) sind die Spektren der interferierenden elektrischen Felder E_1 und E_2 anders als hier angenommen nicht um $\omega=0$ zentriert. Im Anhang A.2.7 wird jedoch gezeigt, dass die Linienform des Schwebungssignals in diesem Fall identisch ist; es treten lediglich weitere Terme bei anderen Frequenzen auf.

Zusammenfassung

In Abbildung 1.2 ist ein Überblick über das Zustandekommen der oben aufgeführten Linienformen des Lasers und des zugehörigen mit dem verzögerten Selbst-Heterodyn-Interferometer detektierten Schwebungssignals im Fall unendlich langer Verzögerungszeiten gegeben. In der ersten Zeile ist die spektrale Leistungsdichte S_{ϕ} des zugrundeliegenden Rauschens (weißes Rauschen, 1/f-Rauschen sowie die Summe beider Rauschtypen) dargestellt. In der zweiten Zeile sind die zugehörigen Laserlinienformen S_E (siehe Abschnitt 1.3), eine Lorentz-, Gauß- und Voigt-Kurve abgebildet. Letztere ist die Faltung der Lorentz- und Gauß-Kurven, die sich

aus den beiden Bestandteilen des Rauschspektrums jeweils getrennt ergeben. Die spektrale Leistungsdichte S_I (siehe Abschnitt 1.4) des Schwebungssignals in der dritten Zeile schließlich stellt die Faltung bzw. Kreuzkorrelation des Laserspektrums mit sich selbst dar. Hierbei handelt es sich wieder um Lorentz-, Gauß- bzw. Voigt-förmige Spektren, jedoch mit größerer Halbwertsbreite $\Delta \omega$. Im Fall des weißen bzw. 1/f-Rauschens beträgt die Linienbreite das doppelte bzw. $\sqrt{2}$ -fache, während im kombinierten Fall die Voigt-Kurve wieder die Faltung der entsprechenden Lorentz- und Gauß-Kurve ergibt. Deren Breite lässt sich nicht analytisch angeben. Eine Näherung ist in Gleichung (1.41) gegeben.

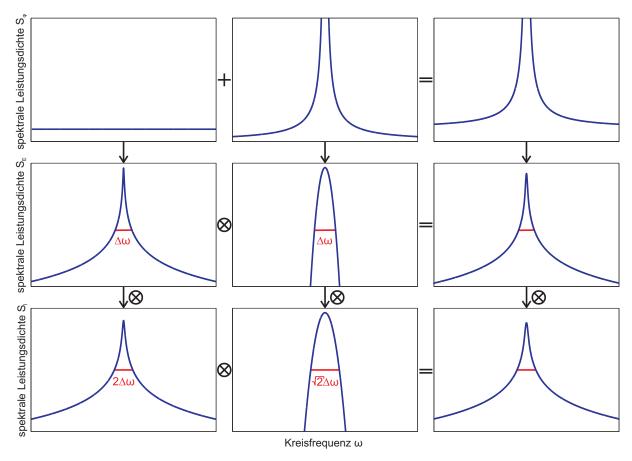


Abb. 1.2: Schema zum Zustandekommen der verschiedenen Linienformen und Breiten. \otimes bezeichnet dabei eine Faltung, $\stackrel{\otimes}{\to}$ bezeichnet eine Faltung bzw. Kreuzkorrelation mit sich selbst. Aus den Spektren S_{ϕ} des Rauschens $(const., 1/\omega \text{ und } 1/\omega + const.)$ in der ersten Zeile ergeben sich die Linienformen des Laserspektrums S_E (Lorentz-, Gauß- bzw. Voigt-Kurve) in der zweiten Zeile. Das detektierte Schwebungssignal S_I in der dritten Zeile ergibt sich dann als Faltung des Laserspektrums S_E mit sich selbst. Bei den betrachteten drei Spezialfällen bleibt die Linienform erhalten, allerdings ändert sich die Breite. Die Voigt-Kurve in der zweiten und dritten Zeile ergibt sich jeweils als die Faltung der Lorentz- und Gauß-Kurve in der selben Zeile, wenn das zugrundeliegende Fluktuationsspektrum S_{ϕ} in der ersten Zeile die Summe der entsprechenden konstanten und 1/f-Anteile ist. Die spektralen Leistungsdichten S_E und S_I sind logarithmisch aufgetragen.

1.4.2 Schwebungssignal für weißes Rauschen und beliebige Verzögerungszeiten

Für weißes Frequenzrauschen bzw. ein Lorentz-förmiges Laserspektrum (siehe Abschnitt 1.3) kann das beim verzögerten Selbst-Heterodyn-Verfahren (siehe Abschnitt 1.1) gemessene Frequenzspektrum in Abhängigkeit von der Linienbreite $\Delta\omega$ des Lasers und der Verzögerungszeit τ_0 analytisch berechnet werden.

Wie im Fall unendlicher Verzögerungszeit (siehe Abschnitt 1.4.1) ergibt sich das Spektrum des Schwebungssignals als die Fouriertransformation der Korrelationsfunktion der Intensität I des gesamten auf den Detektor einfallenden Lichts:

$$G_{E_g}^{(2)}(\tau) = \left\langle E_g(t) E_g^*(t) E_g(t+\tau) E_g^*(t+\tau) \right\rangle$$
 (1.42)

Das gesamte elektrische Feld $E_g(t)^7$ an der Photodiode ist eine Superposition eines um die Zeit τ_0 verzögerten Anteils des Laserfeldes E(t) entsprechend Gleichung (1.9) und eines um die Kreisfrequenz Ω verschobenen Anteils [33]:

$$E_g(t) = E(t) + \alpha E(t + \tau_0) e^{i\Omega t}$$
(1.43)

Der dimensionslose Faktor α gibt hierbei das Amplitudenverhältnis der beiden Komponenten an. Einsetzen des Gesamtfeldes (1.43) mit dem elektrischen Feld E(t) aus Gleichung (1.9) in die Autokorrelationsfunktion $G_{E_q}^{(2)}(\tau)$ aus Gleichung 1.42 liefert (siehe Anhang A.2.1):

$$G_{E_g}^{(2)}(\tau) = E_0^4 \left((1 + \alpha^2)^2 + \alpha^2 e^{i\Omega t} \left\langle e^{i\Delta\Phi^2(t,\tau)} \right\rangle + \alpha^2 e^{-i\Omega t} \left\langle e^{-i\Delta\Phi^2(t,\tau)} \right\rangle \right) \tag{1.44}$$

mit der Substitution [33]:

$$\Phi(t) = \phi(t+\tau) - \phi(t) \tag{1.45}$$

Einsetzen des mittleren quadratischen Phasenrauschens $\langle \Delta \phi^2(t, \tau_0) \rangle$ für ein weißes Spektrum der Frequenzfluktuationen aus Gleichung (1.17) unter Verwendung von (1.20) liefert für positive Verzögerungszeiten τ_0 (siehe Anhang A.2.2):

$$G_{E_g}^{(2)}(\tau) = E_0^4 \left[(1 + \alpha^2)^2 + 2\alpha^2 \cos(\Omega \tau) exp \left\{ \begin{array}{ll} -S_0 |\tau| & \text{für } |\tau| \le \tau_0 \\ -S_0 \tau_0 & \text{für } |\tau| > \tau_0 \end{array} \right\} \right]$$
(1.46)

Die im Anhang A.2.3 explizit durchgeführte Fourier-Transformation der Autokorrelationsfunktion führt dann nach dem Wiener-Khintchine-Theorem (siehe Abschnitt 1.2) auf die detektierte spektrale Leistungsdichte⁸ [26][33][34]:

$$\frac{S_{I}(\omega)}{E_{0}^{4}} = \mathcal{F} \frac{G_{E_{g}}^{(2)}(\tau)}{E_{0}^{4}}
= (1 + \alpha^{2})^{2} 2\pi \delta(\omega) + \alpha^{2} e^{-S_{0}\tau_{0}} 2\pi \delta(\omega - \Omega)
+ 2\alpha^{2} \frac{S_{0}}{S_{0}^{2} + (\omega - \Omega)^{2}} \left\{ 1 - e^{-S_{0}\tau_{0}} \left[\cos((\omega - \Omega)\tau_{0}) + S_{0}\tau_{0} \frac{\sin((\omega - \Omega)\tau_{0})}{(\omega - \Omega)\tau_{0}} \right] \right\}$$
(1.47)

 $^{^{7}}E_{q}(t)$ ist zur Vereinfachung der Rechnung als Gesamtfeld zum Zeitpunkt $t-\tau_{0}$ gewählt.

⁸In das tatsächlich detektierte Spektrum geht noch die Empfindlichkeit des Photodetektors als konstanter Faktor mit ein.

Wie in Abschnitt 1.3 gezeigt entspricht S_0 hierbei der vollen Halbwertsbreite des Lorentzförmigen Laserspektrums (1.22). Durch Übergang von Kreisfrequenzen zu Frequenzen in Hzerhält man mit $\omega = 2\pi f$ und $\Omega = 2\pi f_0$:

$$\frac{S_I(f)}{E_0^4} = (1 + \alpha^2)^2 \delta(f) + \alpha^2 e^{-2\pi\Delta f \tau_0} \delta(f - f_0) + \frac{\alpha^2}{\pi} \frac{\Delta f}{(\Delta f)^2 + (f - f_0)^2} \left\{ 1 - e^{-2\pi\Delta f \tau_0} \left[\cos(2\pi (f - f_0)\tau_0) + 2\pi\Delta f \tau_0 \frac{\sin(2\pi (f - f_0)\tau_0)}{2\pi (f - f_0)\tau_0} \right] \right\}$$
(1.48)

 Δf bezeichnet hierbei die volle Halbwertsbreite des Lasers.

1.4.3 Diskussion des Schwebungssignals für weißes Rauschen

Zur Diskussion werden zunächst dimensionslose Größen eingeführt. Der spektrale Abstand $f-f_0$ von der Schwebungsfrequenz f_0 wird auf die Linienbreite Δf des Lasers bezogen:

$$\overline{f} = \frac{f - f_0}{\Delta f} \tag{1.49}$$

Die neu eingeführte Größe

$$\overline{\tau}_0 = \Delta f \tau_0 = \frac{\tau_0}{(\Delta f)^{-1}} \tag{1.50}$$

gibt das Verhältnis von Verzögerungszeit τ_0 und Kohärenzzeit $(\Delta f)^{-1}$ des Lasers an. Damit lässt sich der relevante Bereich der spektralen Leistungsdichte um die Schwebungsfrequenz f_0 aus Gleichung (1.48) umschreiben:

$$S(\overline{f}) \propto e^{-2\pi\overline{\tau}_0} \delta\left(\overline{f}\right) + \frac{1}{\pi} \frac{1}{1 + \overline{f}^2} \left\{ 1 - e^{-2\pi\overline{\tau}_0} \left[\cos\left(2\pi\overline{f}\overline{\tau}_0\right) + 2\pi\overline{\tau}_0 \frac{\sin\left(2\pi\overline{f}\overline{\tau}_0\right)}{2\pi\overline{f}\overline{\tau}_0} \right] \right\}$$
(1.51)

Im Grenzfall langer Verzögerungszeiten bzw. kurzer Kohärenzzeiten ($\overline{\tau}_0 \to \infty$) erhält man ein rein Lorentz-förmiges Spektrum mit voller Halbwertsbreite $2\Delta f$; das detektierte Leistungsdichtespektrum ist also in diesem Fall doppelt so breit wie das eigentliche Laserspektrum. Dies entspricht dem Ergebnis in Abschnitt 1.4.1.

Im umgekehrten Fall kurzer Verzögerungszeiten bzw. langer Kohärenzzeiten $(\overline{\tau}_0 \to 0)$ ergibt sich eine Delta-Funktion bei der Schwebungsfrequenz f_0 $(\overline{f} = 0)$.

Im Zwischenbereich bis etwa $\overline{\tau}_0=1$ verteilt sich die Leistung auf einen Dirac-Puls bei $\overline{f}=0$ und einen oszillierenden Teil mit Lorentz-förmiger Einhüllender. Frequenz und relative Amplitude dieser Einhüllenden nehmen dabei mit wachsendem $\overline{\tau}_0$ zu .

Um die Linienbreite Δf des Lasers durch Messung der Breite des Schwebungsspektrums zu erhalten, muss die Verzögerungszeit τ_0 also in etwa gleich oder größer als die Kohärenzzeit $(\Delta f)^{-1}$ des Lasers sein. Der hiervon abweichende Wert einer sechsfach längeren Verzögerungszeit in [35] ist darauf zurückzuführen, dass dort die Kohärenzzeit des Lasers als der Kehrwert der Linienbreite in Kreisfrequenzen definiert ist, was einen Unterschied um den Faktor $2\pi \approx 6$ erklärt.

Zum besseren Vergleich mit experimentellen Daten ist das Schwebungssignal bei einer festen Verzögerungszeit von $\tau_0=50\,\mu s$ in Abbildung 1.3 über absoluten Frequenzen dargestellt. Die Parameter wurden dabei im Bereich von im Experiment auftretenden Werten gewählt. Aus dieser Abbildung wird deutlich, dass die Periode des oszillierenden Anteils nur von der hier konstant gehaltenen Verzögerungszeit τ_0 abhängt, während die Amplitude mit abnehmender Linienbreite Δf anwächst.

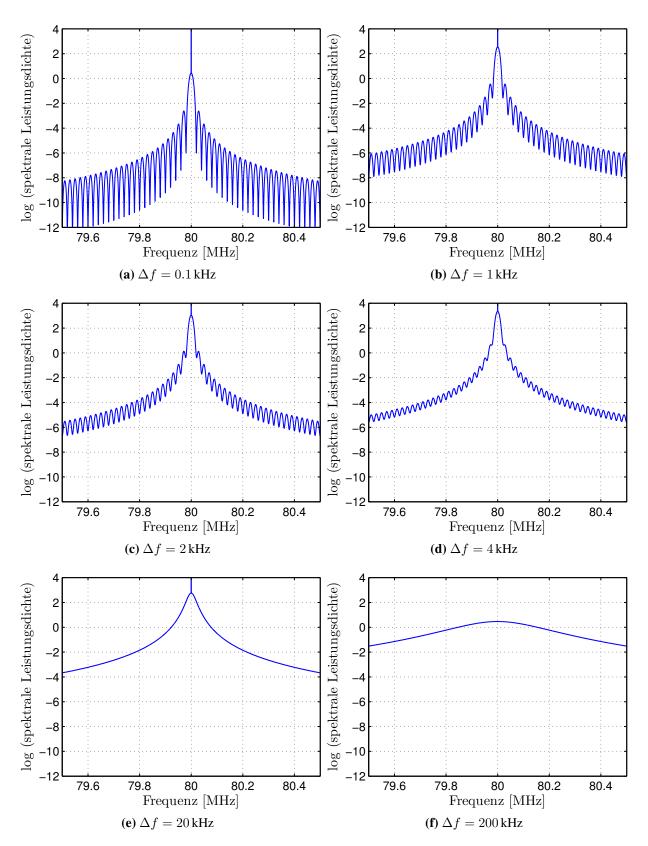


Abb. 1.3: Simulierte Leistungsspektren (willkürliche Einheiten) über absoluter Frequenz für verschiedene Verhältnisse $\overline{\tau}_0$ von Verzögerungs- zu Kohärenzzeit. Die Verzögerungszeit ist hierbei mit $\tau_0=50\,\mu s$ als konstant gewählt, die Linienbreite Δf wird variiert (Zentralfrequenz $f_0=80\,\mathrm{MHz}$). Die gesamte Leistung ist in allen Schaubildern gleich.

2 Messung der Laser-Linienbreite

Um die Güte der Stabilisierung des Lasersystems zur Rydberg-Anregung charakterisieren zu können, wurde das in Kapitel 1 theoretisch behandelte verzögerte Selbst-Heterodyn-Verfahren verwendet. Dazu wurde ein Interferometer aufgebaut, das die Bestimmung der Linienbreiten der beiden Slave-Laser bei 780 nm und 960 nm erlaubt.

2.1 Aufbau des verzögerten Selbst-Heterodyn-Interferometers

Der prinzipielle Aufbau des Interferometers und dessen experimentelle Realisierung sind in Abbildung 2.1 dargestellt. Er folgt der schematischen Skizze in Abbildung 1.1, wobei in der Praxis einige zusätzliche Bauteile nötig sind.

Die Leistung des einfallenden linear polarisierten Strahls lässt sich mit Hilfe einer $\lambda/2$ -Platte und einem polarisierenden Strahlteilerwürfel variabel auf die beiden Interferometerarme verteilen. Im einen Arm wird das Licht mit Hilfe eines akustooptischen Modulators¹ in der ersten Ordnung um etwa $\Omega = 80\,\mathrm{MHz}$ frequenzverschoben; die nullte Ordnung wird mit einer Lochblende blockiert. Der andere Arm besteht aus einer optischen Faser² der Länge $l=10.524\,\mathrm{m}$ als Verzögerungsstrecke. Da es sich hierbei um eine nicht-polarisationserhaltende Faser handelt, muss die Polarisationsdrehung über eine $\lambda/2$ -Platte kompensiert werden, bevor die Strahlen mit einem weiteren polarisierenden Strahlteilerwürfel wieder überlappt werden. Die überlagerten Strahlen werden dann über einen Polarisator in 45°-Stellung auf eine schnelle Fotodiode mit integriertem Verstärker³ fokussiert. Der Polarisator sorgt dafür, dass die senkrecht zueinander polarisierten Strahlen der beiden Interferometerarme miteinander interferieren können. Dadurch wird zwar die Intensität um die Hälfte reduziert, es hat sich jedoch gezeigt, dass dieser Verlust durch die perfekte Überlagerung im Vergleich zu anderen Lösungen⁴ überkompensiert wird. Der Polarisator ist hierbei als ein um die Strahlachse drehbarer polarisierender Strahlteilerwürfel ausgeführt um zusätzliche Verluste durch Absorption zu minimieren. Das Signal der Fotodiode wird mit einem digitalen Oszilloskop⁵ aufgenommen, das auch die direkte Fourier-Analyse des Schwebungssignals erlaubt.

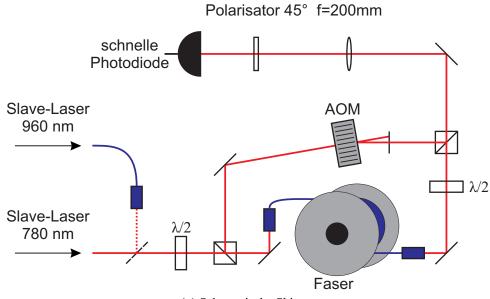
¹AA Opto-Electronic Modell MT-80, Frequenz variabel um 80 MHz

 $^{^2}$ Single-Mode-Faser Leoni V-E9/125 µm (OS1) für Standard-Telekommunikations-Wellenlängen $1310-1550\,\text{nm}$ mit FC/APC 8° -Steckern, bezogen über LWL-Sachsenkabel GmbH Gornsdorf, Faserkoppler 60FC-A8 von Schäfter+Kirchhoff

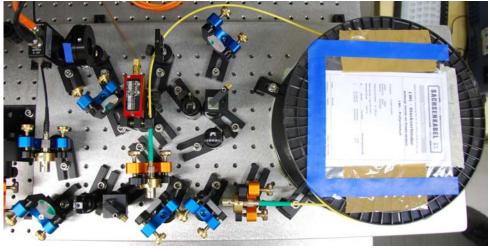
 $^{^3}$ Thorlabs PDA 10A-EC: Wellenlängenbereich $200-1100\,\mathrm{nm}$, Bandbreite $150\,\mathrm{MHz}$, Abschluss $50\,\Omega$

⁴Anstatt der Überlagerung mit Strahlteilerwürfeln ist auch eine unabhängige Fokussierung beider parallel polarisierter Strahlen auf die Photodiode denkbar. Wegen der unterschiedlichen Krümmungen der interferierender Wellenfronten liefert diese Methode jedoch eine geringere Signalstärke.

⁵LeCroy WaveRunner 64 Xi 600 MHz



(a) Schematische Skizze



(b) Fotografie

Abb. 2.1: Aufbau des verzögerten Selbst-Heterodyn-Interferometers mit einer Faser als Verzögerungsstrecke und einem akustooptischem Modulator (AOM) der Frequenz $\Omega=80\,\mathrm{MHz}$: Schematische Skizze und Fotografie. Im Experiment ist die Verzögerungsfaser mit einer Schaumstoff-Abdeckung versehen, um eventuelle akustische Störungen zu vermeiden.

Da die Abschwächung durch die Faser (inklusive Einkopplungsverlusten) mit etwa $-15\,\mathrm{dB}$ bei 960 nm auf $-30\,\mathrm{dB}$ bei 780 nm für kürzere Wellenlängen stark ansteigt, wurde die gesamte Optik (Strahlteilerwürfel, Wellenplatten und Spiegel) für 780 nm ausgelegt um einen schnellen Wechsel zwischen den Wellenlängen zu ermöglichen. Die dadurch beim infraroten Licht auftretenden zusätzlichen Verluste sind aufgrund der höheren Transmission durch die Verzögerungsfaser vernachlässigbar. Um ein hinreichend starkes Signal zu erhalten, muss zudem im Fall des roten Lichts die gesamte Leistung des Slave-Lasers von etwa 30 mW verwendet werden, während beim infraroten Licht etwa $2-10\,\mathrm{mW}$ genügen, die über eine Faser zum Interferometer geleitet werden.

2.2 Selbst-Heterodyn-Verfahren mit kurzer Verzögerungszeit

Zur Justage des Aufbaus nach Abbildung 2.1 wurde die lange Faser zunächst durch eine nur $18\,\mathrm{m}$ lange polarisationserhaltende Faser⁶ ersetzt. Zudem wurde hierbei noch eine unverstärkte Fotodiode⁷ verwendet, da die Abschwächung in der kürzeren Faser deutlich geringer ausfällt (2 dB im Vergleich zu etwa 30 dB für $\lambda=780\,\mathrm{nm}$). Das Schwebungssignal wurde direkt mit einem Spektrum-Analysator⁸ aufgenommen. Abbildung 2.2 zeigt eine Messung des mit dem alten Aufbau nach [39] stabilisierten Lasers der Wellenlänge $780\,\mathrm{nm}$.

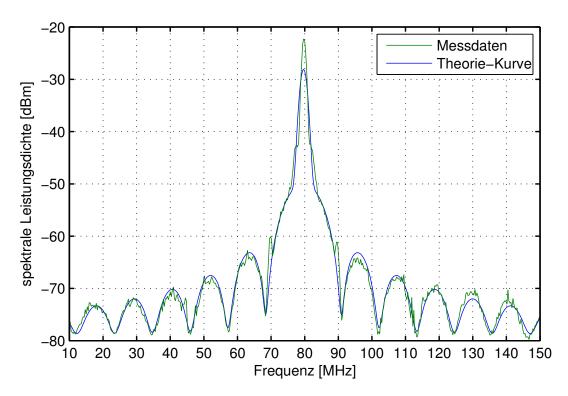


Abb. 2.2: Leistungsspektrum des Schwebungssignals des mit dem alten Aufbau stabilisierten 780 nm-Lasers mit der kurzen Verzögerungsstrecke von 18 m (Sweep-Time 70 s) und angepasster theoretischer Verlauf für weißes Phasenrauschen nach Gleichung 1.48. Im experimentellen Spektrum sind zusätzliche Seitenbänder bei (80 ± 10) MHz zu sehen, die auf eine Störung in der Elektronik des Interferometeraufbaus durch die 10 MHz-Modulation des Laserstrahls für die Modulationstransferspektroskopie zurückzuführen sind (siehe Abschnitt 3.1.1).

⁶Schäfter+Kirchhoff PMC-780 für 780 nm

 $^{^7}$ Thorlabs DET 10A/M: Wellenlängenbereich 200 – 1100 nm, Anstiegszeit 1 ns, Abschluss $50\,\Omega$

 $^{^8}$ Anritsu Spectrum Analyzer MS26101B $100\,Hz-2, 2\,\mathrm{GHz},$ Auslesen über GPIB-Schnittstelle mit einem Lab View-Programm

An dieses experimentell bestimmte Leistungsspektrum wurde der Ausdruck für die spektrale Leistungsdichte für weißes Phasenrauschen nach Gleichung 1.48 angepasst. Als Parameter wurden hierbei die Verzögerungszeit τ_0 , die volle Halbwertsbreite Δf des Lasers sowie die Größe α als konstanter Faktor verwendet. Des Weiteren wurde die Dirac-Funktion durch eine Gauß-Kurve approximiert, da die Bandbreite des Spektrum-Analysators mit 1 MHz nach oben beschränkt war und der δ -Peak entsprechend verbreitert wurde. Da der Frequenzabstand der Oszillationen im Leistungsspektrum nur von der Verzögerungszeit τ_0 abhängt (siehe Abschnitt 1.4), lässt sich diese recht genau aus dem gemessenen Schwebungssignal bestimmen:

$$\tau_0 = (89.0 \pm 0.5) \,\text{ns} = \frac{1}{(11.24 \pm 0.06) \,\text{MHz}}$$
(2.1)

Die Linienbreite ergab sich aus dieser Messung zu

$$\Delta f = (62 \pm 5) \,\text{kHz} \tag{2.2}$$

Die Verzögerungszeit ist also erwartungsgemäß deutlich kürzer als die Kohärenzzeit $\frac{1}{\Delta f}$ des Lasers. Der so erhaltene Messwert gibt jedoch zunächst nur die Linienbreite auf der Zeitskala der Verzögerungszeit $\tau_0 = 89,0$ ns an. Alle langsameren Fluktuationen in der Phase und damit in der Laserfrequenz, deren Frequenz also kleiner ist als der Kehrwert $\frac{1}{\tau_0} = 11,24\,\mathrm{MHz}$ der Verzögerungszeit, können mit dem Interferometer nicht gemessen werden. Anschaulich bedeutet dies, dass diese Fluktuationen so langsam stattfinden, dass die spektrale Position des Laserlichts an den Enden der beiden Interferometerarme gleich variiert, was einer langsamen Variation der mittleren Frequenz ω_0 des Laserlichts entspricht. Diese taucht im Leistungsspektrum des detektierten Schwebungssignal nach Gleichung 1.48 nicht mehr auf. Lediglich unter der Annahme eines konstanten Rauschspektrums, also weißen Phasenrauschens, wäre die gemessene Linienbreite unabhängig von der Messzeit (siehe Abschnitt 1.4.2). Diese Annahme ist jedoch im vorliegenden Fall nicht gerechtfertigt, wie weitere Messungen mit der langen Verzögerungsstrecke zeigen (siehe Abschnitt 3.2.1). Stattdessen enthält das Spektrum des Phasenrauschens einen signifikanten Anteil an frequenzabhängigem 1/f-Rauschen, der sich im Frequenzbereich oberhalb des Kehrwerts $\frac{1}{\tau_0} = 11,24\,\mathrm{MHz}$ der Verzögerungszeit der kurzen Faser nicht bemerkbar macht bzw. nur einen kleinen näherungsweise konstanten Beitrag liefert. Tatsächlich ist die hier bestimmte Linienbreite nur etwas größer als der mit der langen Verzögerungsstrecke weiter unten (siehe Abschnitt 3.2.1) bestimmte Lorentz-Anteil, der auf konstantes Phasenrauschen zurückzuführen ist. Messungen der Laserlinienbreite Δf mit Verzögerungszeiten τ_0 , die kleiner sind als die Kohärenzzeit $\frac{1}{\Delta f}$ wie in [35], sind also nur dann aussagekräftig, wenn mit Sicherheit davon ausgegangen werden kann, dass das Spektrum des Phasenrauschens des Lasers konstant ist.

2.3 Messung der Verzögerungszeit

Nach Abschnitt 1.4 ist die minimale Laserlinienbreite Δf_{min} bzw. maximale Kohärenzzeit $\frac{1}{\Delta f_{min}}$, bei der sich das Schwebungssignal einfach als die Faltung der Linienform des Lasers ergibt (siehe Gleichung (1.32)), durch die Verzögerungszeit τ_0 bestimmt:

$$\Delta f_{min} = \frac{1}{\tau_0} \tag{2.3}$$

Sofern das Spektrum des Phasenrauschens nicht als konstant angenommen werden kann (vgl. Abschnitt 1.4.2), stellt dieser Wert die Auflösungsgrenze des Selbst-Heterodyn-Interferometers dar.

Da der genaue Brechungsindex der verwendeten Faser nicht bekannt ist, lässt sich die Verzögerungszeit τ_0 nicht aus der vom Hersteller angegebenen Wert der Faserlänge $l=10.524\,\mathrm{m}$ berechnen. Um diese Größe direkt zu messen, wurde ein weiterer akustooptischer Modulator zwischen den 780 nm-Slave-Laser und das Interferometer eingebaut und das Schwebungssignal im Zeitraum mit dem digitalen Oszilloskop aufgenommen. Um den Justageaufwand minimal zu halten, wurde die nullte Ordnung in das Interferometer eingekoppelt und die erste Ordnung ausgeblendet. Bei ausgeschaltetem AOM war so die Intensität des an der Fotodiode detektierten Schwebungssignals maximal, während sich bei eingeschaltetem AOM die Leistung um den Anteil in der ersten Ordnung reduzierte. Abbildung 2.3 zeigt eine Messung, bei der der AOM vor dem Interferometer durch Abziehen des Kabels zwischen Treiber und Verstärker ausgeschaltet wurde.

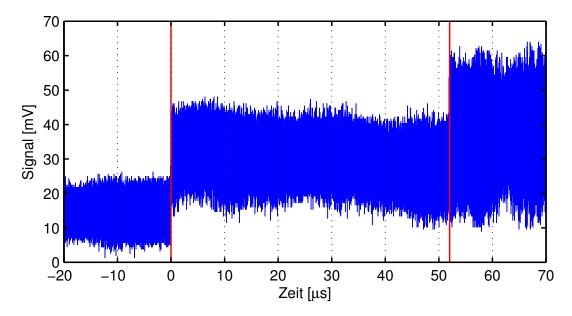


Abb. 2.3: Messung der Verzögerungszeit τ_0 : Schwebungssignal beim Ausschalten des AOMs vor dem Interferometer. Wegen des großen abgebildeten Zeitintervalls ist das Signal bei $80\,\mathrm{MHz}$ nicht aufgelöst. Die Zeitpunkte, an denen die erhöhte Intensität über den AOM-Interferometerarm und die Faserverzögerungsstrecke an der Fotodiode auftrifft, ist jeweils durch eine vertikale rote Linie gekennzeichnet.

Wegen des großen aufgezeichneten Zeitintervalls ist das schnelle Schwebungssignal mit einer Frequenz von etwa 80 MHz nicht vollständig aufgelöst. Beim Ausschalten des AOMs vor dem Interferometer erhöht sich die Leistung in der nullten Ordnung, die in das Interferometer gelangt. Sowohl die Amplitude als auch der DC-Offset des detektierten Schwebungssignals nehmen dann in zwei Sprüngen zu (in Abbildung 2.3 durch vertikale rote Linien gekennzeichnet), wenn die erhöhte Eingangsintensität über den AOM-Interferometerarm und dann verzögert

⁹AA Opto-Electronic Modell MT-80, Frequenz variabel um 80 MHz (gleiches Modell wie im Interferometer verwendet)

durch die Faser im anderen Arm auf die Fotodiode trifft. Die Zeitdifferenz zwischen diesen beiden Sprüngen gibt die Verzögerungszeit an:

$$\tau_0 = (52 \pm 1) \,\mu\text{s}$$
 (2.4)

Daraus folgt eine Auflösungsgrenze von

$$\Delta f_{min} = \frac{1}{\tau_0} = (19.2 \pm 0.4) \,\text{kHz}$$
 (2.5)

Linienbreiten unter dieser Grenze lassen sich also mit dem bestehenden Interferometer nicht messen. Des Weiteren sind Fluktuationen, die auf Zeitskalen über diesem Wert stattfinden, also mit Frequenzen kleiner als etwa $20\,\mathrm{kHz}$, mit dem Interferometer nicht sichtbar; eine sehr langsame Frequenzfluktuation würde dann in eine simultane Verschiebung der Laserfrequenz ω_0 in beiden Interferometerarmen resultieren, die im Schwebungssignal nicht mehr auftritt (siehe Abschnitt 1.4.1).

3 Stabilisierung des Lasersystems

3.1 Lasersystem zur Rydberg-Anregung

Zur Rydberg-Anregung wird ein Zwei-Photonen-Übergang verwendet, da Diodenlaser im zur Anregung von Zuständen mit höheren Quantenzahlen (n > 20) benötigten Wellenlängenbereich von unter 300 nm nicht zur Verfügung stehen und außerdem eine Anregung in s-Zustände ausgehend vom $5s_{1/2}$ Grundzustand über einen Ein-Photonen-Übergang nicht möglich ist. Verwendet wird daher ein Lasersystem, bestehend aus einem roten Laser bei einer Wellenlänge von 780 nm und einem infraroten Laser bei 960 nm, der mit einem nichtlinearen Kristall auf eine Wellenlänge von 480 nm frequenzverdoppelt wird. Für die Diodenlaser wurden einfache handelsübliche Laserdioden¹, die jeweils durch ein Beugungsgitter in Littrow-Anordnung [40] optisch rückgekoppelt werden. Dies reduziert in Verbindung mit der Temperaturstabilisierung² die Laserlinienbreite im freilaufenden Zustand von typischerweise 100 MHz auf Werte bis unter 1 MHz und ermöglicht zudem durch Verkippung des Gitters über einen Piezo-Aktuator in einem gewissen Bereich die Variation der Frequenz des emittierten Lichts. Um die Frequenz über einen weiteren Bereich von einigen hundert MHz ändern zu können, wird jeweils ein akustooptischer Modulator (AOM) im Doppeldurchgang verwendet. Deren Effizienz ist besonders im Infrarotbereich mit etwa 30% relativ gering³. Um dies zu kompensieren wird eine so genannter Master-Slave-Konfiguration verwendet. Hierbei wird das verbleibende Licht des stabilisierten Master-Lasers (wenige mW) zur Verstärkung in die einfache Diode des Slave-Lasers injiziert, die dann Licht emittiert, das zum Master-Laser kohärent ist.

Um eine hinreichend kleine Laserlinienbreite, wie sie zur Spektroskopie von Rydberg-Atomen und Molekülen notwendig ist, zu erreichen, muss die Frequenz beider Laser zusätzlich zur optischen Rückkopplung aktiv absolut und relativ zueinander stabilisiert werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde diese Stabilisierung komplett umgebaut. Der alte Aufbau, wie er noch für die ersten Messungen in Teil II verwendet wurde (siehe Abschnitt 7.1), sowie der neue Aufbau werden in den folgenden beiden Abschnitten dargestellt.

3.1.1 Bisheriger Aufbau

Im bisherigen Aufbau dient ein Hyperfeinübergang der D_2 -Linie von Rubidium ^{87}Rb als Referenz für die Frequenz des roten Lichts. Da für den infraroten Laser kein entsprechender atomarer Übergang zur Verfügung steht, wird dieser relativ zum roten Laser stabilisiert. Der optische

 $^{^1}$ rot: freilaufend bei 780 nm bzw. 980 nm (wie für CD-ROM-Laufwerke bzw. zum Pumpen von ND:YAG-Lasern verwendet)

²Diodenstrom- und Temperaturregler Thorlabs ITC 102

³Beim roten Laser beträgt die Effizienz gut das Doppelte.

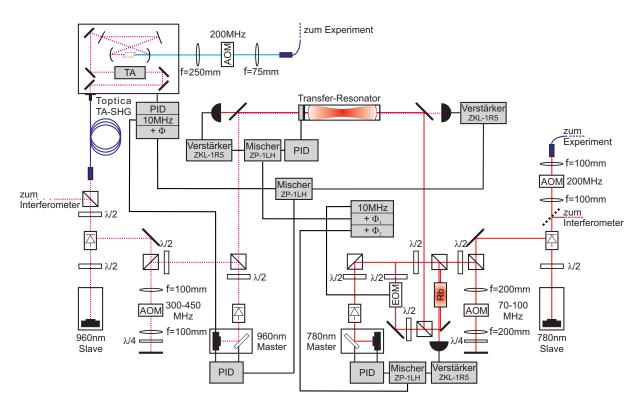


Abb. 3.1: Schematische Darstellung des optischen und elektronischen Aufbaus des Lasersystems mit der alten Stabilisierung. Nicht gezeigt ist der Teil zur Überwachung der Moden und Frequenz beider Laser, bestehend aus einem Frequenzmessgerät und einem Fabry-Perot-Resonator mit variabler Länge.

und elektronische Aufbau des gesamten Lasersystems zur Rydberg-Anregung ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Einem Teil des Lichts vom roten Master-Laser werden mit einem elektrooptischen Modulator (EOM)⁴ Seitenbänder bei $\pm 10\,\mathrm{MHz}$ aufmoduliert und als Pumpstrahl für eine Doppler-freie Modulationstransferspektroskopie [41][42] in einer Rubidium-Dampfzelle verwendet. Mit dieser Spektroskopietechnik lässt sich die Hyperfeinaufspaltung des Übergangs $5s_{1/2} \to 5p_{3/2}$ auflösen. Das verstärkte und durch Mischen mit der $10\,\mathrm{MHz}$ -Frequenz des EOMs demodulierte Spektroskopiesignal von der Fotodiode wird an einen PID-Regler geleitet, der die Frequenz des roten Master-Lasers durch Verkippung des Beugungsgitters (langsame Rückkopplung) und Variation des Diodenstroms (schnelle Rückkopplung) steuert. Der nichtmodulierte Anteil des roten Lichts wird abzüglich des Pump-Strahls für die Spektroskopie über einen AOM im Doppeldurchgang (Frequenzbereich $70-100\,\mathrm{MHz}$) und eine optische Diode in den Slave-Laser injiziert. Der $200\,\mathrm{MHz}$ -AOM hinter dem Slave-Laser dient zum schnellen Schalten des Lichts.

Um den infraroten Laser zu stabilisieren wird nun zunächst ein Teil des mit dem EOM phasenmodulierten roten Lichts in den Transferresonator⁵ eingekoppelt. Mit dem demodulierten Fehlersignal aus der mit einer Photodiode gemessenen transmittierten Intensität wird über einen PID-Regler ein Piezo-Aktuator gesteuert, der die Länge des Resonators aktiv auf die Wellenlänge des roten Lichts stabilisiert. Auf diesen Resonator wird dann der infrarote Master-Laser

⁴resonant bei 2 MHz und 10 MHz, Nova Phase Inc., Newton, New Jersey, USA

⁵Länge: 30 cm, freier Spektralbereich: 125 MHz

stabilisiert. Die zur Erzeugung des Fehlersignals notwendigen Seitenbänder bei \pm 10 MHz werden hier direkt durch Modulation des Diodenstroms erzeugt. Dies ist möglich, da diese Seitenbänder den Resonator, in dem die Frequenzkonversion zu blauem Licht mit $\lambda=480\,\mathrm{nm}$ stattfindet, nicht passieren können⁶. Wie beim roten Laser wird auch die Frequenz des infraroten Lasers durch Änderung des Diodenstroms und des Winkels des Beugungsgitters geregelt. Der nicht für die Stabilisierung verwendete Anteil des infraroten Lichts wird über einen AOM im Doppeldurchgang (Frequenzbereich $300-450\,\mathrm{MHz}$) und eine optische Diode in den Slave-Laser eingekoppelt. Das so verstärkte Licht gelangt dann über eine optische Faser zum System zur Frequenzverdopplung⁷. Dieses besteht aus einem Trapezverstärker, in dem das infrarote Licht nochmals verstärkt wird, und dem eigentlichen Verdopplungsresonator, der den nichtlinearen Kristall zur Frequenzverdopplung enthält. Zum Schalten wird wie beim roten Laser ein 200 MHz-AOM im Einzeldurchgang verwendet.

3.1.2 Neuer Aufbau

Da sich mit der bisherigen Stabilisierung keine signifikante Reduzierung der Linienbreite auf kurzen Zeitskalen realisieren lies (siehe Abschnitt 3.2), wurde der Aufbau dahingehend komplett umgebaut. Beide Laser werden nun unabhängig voneinander jeweils auf einen Fabry-Perot-Resonator stabilisiert.

3.1.2.1 Resonator

Der Aufbau des Resonators orientiert sich an einem Entwurf der Gruppe von Ferdinand Schmidt-Kaler an der Universität Ulm [43]. Als Distanzstück wird hier ein d=100 mm langer Block aus CERODUR^{®8}, das sich durch einen geringen thermischen Ausdehnungskoeffizienten auszeichnet, mit vier zylindrischen Bohrungen verwendet. Für die Spiegel wurden jeweils ein keilförmiger ebener Spiegel und ein plankonvexer Spiegel (Krümmungsradius r=250 mm, Reflektivität 99,5% bei $\lambda=780$ nm und $\lambda=960$ nm) verwendet, die mit handelsüblichem Sekundenkleber an dem Distanzstück befestigt wurden. Die Befestigung wurde hierbei an zwei Spiegeln über zwei ineinanderliegende Piezo-Ringe ausgeführt, die durch Anlegen einer Spannung⁹ eine Variation der Länge und damit der Resonanzfrequenz des Resonators erlauben. Die spezielle Geometrie dieser Befestigung (siehe Abbildung 3.2) führt dazu, dass sich eine eventuelle temperaturbedingte Ausdehnung der beider Piezo-Aktuatoren aufgrund der gegenläufigen Anordnung aufhebt. Um weitere Temperatureffekte zu minimieren und damit eine hohe Frequenzstabilität zu gewährleisten, befindet sich der gesamte Resonator in einer Vakuumkammer, die zusätzlich vollständig in ein aktiv temperaturstabilisiertes Gehäuse eingebaut ist. In Tabelle 3.1 ist ein Überblick über die Daten der Resonatoren gegeben.

Von den insgesamt vier Resonatoren wurde nun ein fester Resonator mit einer Resonanzfrequenz von $384,228\,\mathrm{THz}$ ($\lambda=780,241\,\mathrm{nm}$) für die Stabilisierung des roten Lasers ausgewählt, was in etwa der Frequenz des Übergangs $5s_{1/2},\ f=2\to 5p_{3/2},\ f=3$ in ^{87}Rb entspricht [44],

⁶Dies war zumindest zu Beginn der Messungen der Fall (siehe unten Abschnitt 3.1.2).

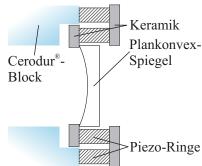
⁷TA-SHG, Toptica Photonics AG, Gräfelfing

⁸pgo Präzisions Glas&Optik GmbH, Iserlohn

⁹HV-Netzgerät T1DP 005 106 EPU(500 V/10 mA, iseg Spezialelektronik GmbH, Radeberg/Rossendorf

während für den infraroten Laser ein Resonator mit variabler Länge verwendet wird um die Frequenz dem untersuchten Rydberg-Zustand anpassen zu können. Da es sich gezeigt hat, dass die Einkopplung über die keilförmigen Spiegel zu empfindlich ist, findet die Einkopplung über die plankonkaven Spiegel statt.

Parameter	Wert
Länge	$d = 100\mathrm{mm}$
Reflektivität der Spiegel	R = 0.995
Radius Spiegel 1	$r_1 = \infty$
Radius Spiegel 2	$r_2 = 250\mathrm{mm}$
freier Spektralbereich	$FSB = \frac{c}{2d} = 1,50 \text{GHz}$
Finesse	$\mathcal{F} = \frac{\pi\sqrt{R}}{1-R} = 626$
volle Halbwertsbreite	$\Delta f = \frac{F\tilde{S}B}{\mathcal{F}} = 2.4 \mathrm{MHz}$



Tab. 3.1: Übersicht über die Daten der verwendeten Resonatoren

Abb. 3.2: Befestigung der Piezo-Aktuatoren zur Minimierung von Temperaturdrifts

3.1.2.2 Optischer Aufbau und Stabilisierung

Für beide Laser wurde eine Stabilisierung nach dem Schema von Pound-Drever-Hall [45] aufgebaut. Eine ausführliche Erklärung des Funktionsprinzips dieser Art der Frequenzstabilisierung findet sich zum Beispiel in [46] oder [47]. Der optische und elektronische Aufbau ist in Abbildung 3.3 schematisch dargestellt.

Den Lasern werden, wie beim alten Aufbau (siehe Abschnitt 3.1.1), zunächst Seitenbänder aufmoduliert. Das Fehlersignal wird nun jedoch bei beiden Lasern aus der mit einer Photodiode detektierten Intensität des von dem Resonator reflektierten nichtresonanten Lichts gewonnen. Im Verlauf der Arbeiten hat es sich jedoch gezeigt, dass sich die 10 MHz-Seitenbänder des infraroten Lasers mittlerweile als Intensitätsmodulation des frequenzverdoppelten blauen Lichts bemerkbar machten. Dies lässt sich darauf zurückführen, dass sich die Finesse des Frequenzverdopplungsresonators durch Alterung des nichtlinearen Kristalls und die dadurch bedingte verstärkte Absorption inzwischen verringert hat. Somit wurden nun auch die Seitenbänder bei ±10 MHz vom Resonator transmittiert. Dieses Problem ließ sich beheben, indem die Modulationsfrequenz auf 20 MHz erhöht wurde. Die Seitenbänder liegen nun sicher außerhalb des vom Verdopplungsresonator transmittierten Frequenzbereichs.

Als PID-Regler wird für den infraroten Laser ein selbstgebauter Regler, der auf die Resonanzfrequenz des Regelkreises abgestimmt wurde, eingesetzt, während für den roten Laser auf ein kommerzielles Produkt zurückgegriffen wurde¹⁰, das ebenfalls für den verwendeten Laser optimiert wurde (siehe Abschnitt 3.3.2). Der übrige Aufbau, insbesondere die Frequenzverschiebung über akustooptische Modulatoren, die Verstärkung mit Slave-Lasern und die Frequenzverdoppelung sind mit dem in Abschnitt 3.1.1 beschriebenen bisherigen Aufbau weitgehend identisch. Der Aufbau des infraroten Lasers wurde lediglich mit einem neuen kommerziellen Master-Laser¹¹ komplett neu aufgebaut.

¹⁰Fast Analog Linewidth Control FALC 110, Toptica Photonics AG, Gräfelfing

¹¹DL pro, Toptica Photonics AG, Gräfelfing

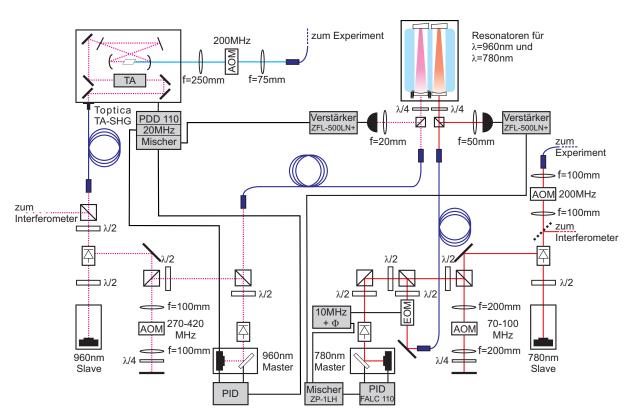


Abb. 3.3: Schematische Darstellung des optischen und elektronischen Aufbaus des Lasersystems mit der neuen Stabilisierung. Der Übersicht halber sind die immer noch vorhandene, aber nicht mehr für die Stabilisierung benötigte, Spektroskopie aus dem alten Aufbau (siehe Abbildung 3.1) sowie der Teil zur Überwachung der Moden und Frequenz beider Laser nicht abgebildet.

3.2 Charakterisierung des bestehenden Aufbaus

Die Linienbreiten der beiden Slave-Laser mit den Wellenlängen 780 nm bzw. 960 nm bei Stabilisierung der Master-Laser mit dem bestehenden Aufbau (siehe Abschnitt 3.1.1) wurden mit Hilfe des in Abschnitt 2.1 dargestellten verzögerten Selbst-Heterodyn-Interferometers bestimmt. Die Ergebnisse sind im folgenden Abschnitt gezeigt und stellen die Ausgangssituation der im Anschluss beschriebenen Verbesserungen dar.

3.2.1 Roter Laser

Abbildung 3.4 zeigt das gemessene Schwebungssignal des Slave-Lasers bei $\lambda=780\,\mathrm{nm}$ und injiziertem Master-Laser. Ein Unterschied zwischen unstabilisertem und auf die Polarisationsspektroskopie stabilisiertem Master-Laser ließ sich nicht feststellen. Die Stabilisierung mit der Spektroskopie als Referenz ist also nur auf Zeitskalen deutlich größer als die Verzögerungszeit von $52\,\mathrm{\mu s}$ (siehe Abschnitt 2.3) wirksam; sie diente also im Wesentlichen nur zur Verhinderung von langsamen Drifts auf der Zeitskala von Sekunden bis wenigen Stunden.

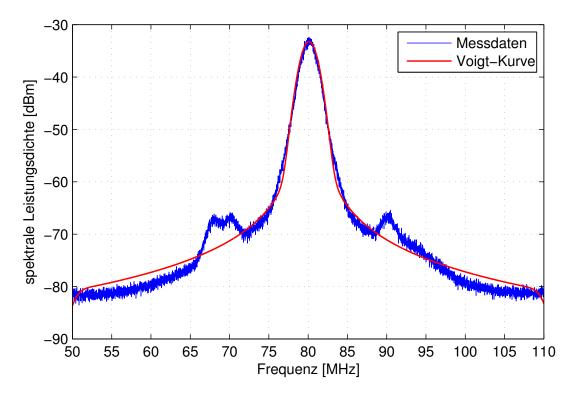


Abb. 3.4: Gemessenes Schwebungssignal (blau) mit an die Messdaten angepasstem Voigt-Profil (rot). Der starke Abfall der Regressionskurve an den Rändern ist auf die numerische Implementierung der Voigt-Kurve als Faltung einer Lorentz- und einer Gauß-Kurve mit kompaktem Träger zurückzuführen. Die Seitenbänder bei ±10 MHz werden durch eine Störung in der Elektronik des Interferometeraufbaus durch die 10 MHz-Modulation des Laserstrahls für die Spektroskopie verursacht (siehe Abschnitt 3.1.1).

An die Messdaten wurde unter der Annahme, dass sich das Phasenrauschen aus einem konstanten Anteil und einem umgekehrt proportional zur Frequenz abfallenden Anteil zusammensetzt (siehe Abschnitt 1.3.2), eine Voigt-Kurve nach Gleichung (1.40) angepasst. Dieses Vorgehen erlaubt nicht nur eine genauere Bestimmung der Linienbreite, sondern liefert auch Aufschluss über die Frequenzabhängigkeit des der Linienbreite zugrundeliegenden Phasenrauschens. Aus dem Mittelwert von 18 Messungen ergeben sich für die Lorentz- und Gauß-Anteile an der Laserlinienbreite:

$$\Delta f_{Lorentz} = (33 \pm 17) \text{ kHz}$$

$$\Delta f_{Gauß} = (1300 \pm 130) \text{ kHz}$$
(3.1)

Nach Gleichung (1.41) erhält man damit eine Linienbreite (FWHM) von

$$\Delta f = (1320 \pm 130) \,\text{kHz}$$
 (3.2)

Es zeigt sich also, dass der Gauß-Anteil an der Linienbreite und damit das 1/f-Phasenrauschen bei dem untersuchten Laser dominieren. Dies erklärt auch die sehr kleine Linienbreite, die unter der Annahme von frequenzunabhängigem Phasenrauschen mit der kurzen Verzögerungsfaser gemessen wurde (Argumentation siehe Abschnitt 2.2).

3.2.2 Infraroter Laser

In Abbildung 3.5 ist das Schwebungssignal des Slave-Lasers bei $\lambda=960\,\mathrm{nm}$ auf den Transfer-Resonator stabilisiert sowie unstabilisiert, jeweils zusammen mit einer angepassten Voigt-Kurve nach Gleichung (1.40), dargestellt. Es spielte für die Messungen keine Rolle, ob der Transfer-Resonator auf die Frequenz des roten Lasers und der rote Laser auf die Modulationstransferspektroskopie stabilisiert war. Dies bestätigt das obige Ergebnis, dass die Stabilisierung des roten Lasers auf die Modulationstransferspektroskopie nur auf Zeitskalen deutlich größer als die Verzögerungszeit von $52\,\mathrm{\mu s}$ wirksam ist. Wie bei der Untersuchung des roten Lasers wurde die Linienbreite durch Anpassen einer Voigt-Kurve unter Annahme von konstantem und 1/f-Phasenrauschen bestimmt. Die aus der Mittelung von $26\,\mathrm{Messungen}$ erhaltenen Werte für die Linienbreite (FWHM) Δf und die jeweiligen Lorentz- und Gauß-Anteile $\Delta f_{Lorentz}$ bzw. $\Delta f_{Gauß}$ sind in der nachfolgenden Tabelle dargestellt:

	$\Delta f [\mathrm{kHz}]$	$\Delta f_{Lorentz}$ [kHz]	$\Delta f_{Gau\beta} [\mathrm{kHz}]$
stabilisiert	279 ± 13	5.0 ± 1.1	276 ± 13
nicht stabilisiert	353 ± 29	5.1 ± 1.5	350 ± 28

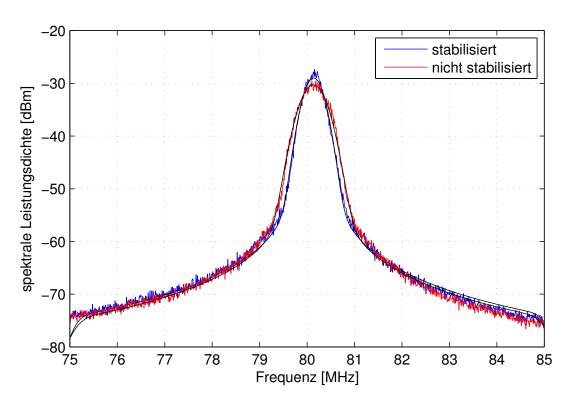


Abb. 3.5: Gemessenes Schwebungssignal mit an die Messdaten angepasstem Voigt-Profil, jeweils auf den Transfer-Resonator stabilisiert (blau) und unstabilisiert (rot). Der starke Abfall der angepassten Voigt-Kurve (schwarz) an den Rändern ist auf die numerische Implementierung der Voigt-Kurve als Faltung einer Lorentz- und einer Gauß-Kurve mit kompaktem Träger zurückzuführen.

Es zeigt sich, dass wie beim roten Laser das frequenzabhängige 1/f-Phasenrauschen und damit der Gauß-Abteil an der Linienbreite dominiert. Allerdings lässt sich hier eine Reduzierung der Linienbreite Δf um gut 20 Prozent feststellen. Diese Reduktion der Linienbreite ist hauptsächlich auf den Gauß-Anteil, also das 1/f-Rauschen, das bei niedrigen Rauschfrequenzen relevant ist, beschränkt. Daraus lässt sich folgern, dass die bestehende Regelung eine relativ kleine Bandbreite hat und so nur auf Fluktuationen bei niedrigen Frequenzen reagieren kann.

Insgesamt kann somit für die kombinierte Linienbreite des gesamten Lasersystems zur Rydberg-Anregung mit einem Wert im Bereich von 1,5-2,0 MHz gerechnet werden.

3.3 Durchgeführte Verbesserungen

Neben dem kompletten Umbau der Stabilisierung des Lasersystems zur Rydberg-Anregung, wie bereits in Abschnitt 3.1 dargestellt, wurden eine Reihe von Verbesserungen durchgeführt, um schließlich Linienbreiten unter 20 kHz zu erreichen. Diese beinhalten Modifikationen sowohl an der Regelungselektronik der Laser und der Stabilisierung, als auch an den akustooptischen Modulatoren im Strahlengang und deren Steuerung. Die einzelnen Maßnahmen sind in den folgenden Abschnitten ausführlich dargestellt.

3.3.1 Regelungselektronik der Laserdiode

Wie aus den Linienbreitenmessungen in Abschnitt 3.2 hervorgeht, wies die bestehende Regelung der beiden Diodenlaser eine zu geringe Bandbreite auf, als dass eine wirksame Reduzierung der Linienbreite auf kurzen Zeitskalen möglich gewesen wäre. Ein Grund hierfür war die zu langsame Regelungselektronik für den Diodenstrom des Master-Lasers (siehe Abbildung 3.6). Deren Aufgabe ist es, gesteuert durch die schnelle Rückkopplung des PID-Reglers, über einen MOSFET einen Teil des Diodenstroms von der Laserdiodensteuerung abzuzweigen. Die alte Ausführung nach [39] wurde durch eine Schaltung nach [48] mit höherer Bandbreite ersetzt. Die Funktion dieser Schaltung (siehe Abbildung 3.6) lässt sich wie folgt beschreiben: Das Regelsignal der schnellen Rückkopplung (Spannungsquelle V_1) wird über ein Potentiometer als regelbaren Spannungsteiler und einen Hochpass (gebildet durch Kondensator C_1 und Widerstand R_2) an den Gate-Anschluss des MOSFET angelegt, wobei die Gate-Spannung durch die Dioden $D_1 - D_4$ begrenzt wird. Der Hochpass dient dazu den durch die Kapazitäten des MOS-FETs und der Dioden gebildeten Tiefpass zu kompensieren. Über den MOSFET wird dann ein variabler Teil des Versorgungsstroms von der Diodensteuerung (Stromquelle I_1) abgezweigt. Dadurch lässt sich zum einen eine hohe Regelungsbandbreite des Diodenstroms erzielen, zum anderen ist die Laserdiode vor zu hohen Strömen geschützt, da der maximale Strom durch die externe Diodensteuerung vorgegeben wird.

Das Verhalten des Diodenstroms beider Schaltungen bei eingehender sinusförmiger Modulation wurde zusätzlich zu den Messungen im folgenden Abschnitt 3.3.1.1 am PC simuliert (siehe Anhang B.1).

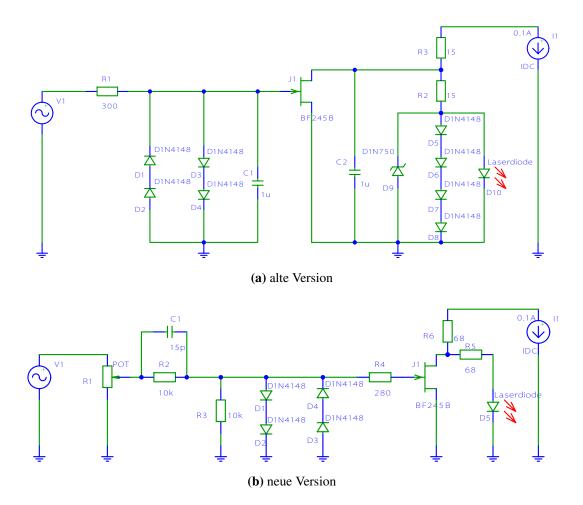


Abb. 3.6: Alte und neue Ausführung der Regelungselektronik für den Diodenstrom des Master-Lasers. Der Modulationseingang für die schnelle Rückkopplung ist als Spannungsquelle V_1 dargestellt, die Laserdiodenregelung als Stromquelle I_1 . Weitere Erklärungen siehe Text.

3.3.1.1 Charakterisierung der Regelungselektronik

Um die Bandbreite der neuen Schaltung mit derjenigen der bereits Bestehenden zu vergleichen, wurde der Frequenzgang der Amplitude und Phase der Intensitätsmodulation der Laserdiode über die schnelle Rückkopplung bestimmt. Dazu wurde an den Modulationseingang eine sinusförmige Spannung mit Amplitude $0,45\,\mathrm{mV}$ angelegt und die Intensität des Laserlichts mit einer Fotodiode¹² gemessen. Amplitude und Phase der Intensitätsmodulation wurden dabei mit Hilfe eines digitalen Oszilloskops¹³ relativ zum Eingangssignal für verschiedene Frequenzen aufgenommen. Das Ergebnis für den roten Laser ist in Abbildung 3.7 dargestellt.

¹²Eigenbau, Verstärkung mit Bandbreite 30 MHz

¹³LeCroy WaveRunner 64 Xi 600 MHz

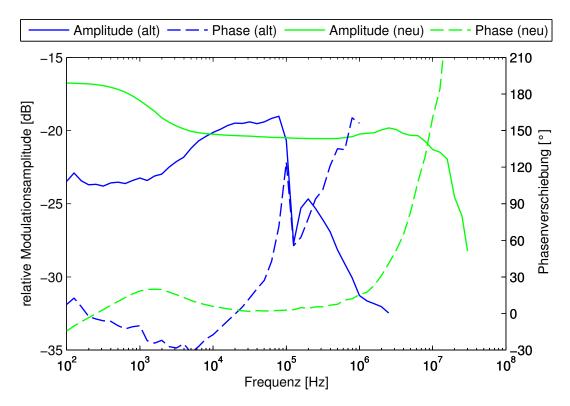


Abb. 3.7: Frequenzgang der Modulationsamplitude (durchgezogen) und Phase (gestrichelt) der Intensität des 780 nm-Lasers, bezogen auf das sinusförmige Eingangssignal, jeweils für die alte (blau, siehe Abbildung 3.6a) und die neue Schaltung (grün, siehe Abbildung 3.6b)

Wie aus der Abbildung deutlich wird, fällt die relative Modulationsamplitude bei beiden Schaltungen bei einer bestimmten Grenzfrequenz steil ab, was sich mit der durch die Kapazitäten der Dioden und des MOSFETs bedingten Tiefpasseigenschaft erklären lässt; gleichzeitig steigt die Phasenverschiebung relativ zum Eingangssignal stark an. Bei der alten Schaltung nimmt die relative Modulationsamplitude bis zu dieser Frequenz zu. Bei der neuen Schaltung dagegen steigt die relative Modulationsamplitude nach einem anfänglichen leichten Abfall bei höheren Frequenzen durch den Hochpass am Modulationseingang wieder auf ein lokales Maximum an, wodurch sich die Bandbreite von etwa 100 kHz bei der bestehenden Schaltung auf 10 MHz erhöht. Der kurze Einbruch der Amplitude der alten Schaltung bei Frequenzen knapp über 100 kHz lässt sich nicht durch die Eigenschaften der Elektronik erklären, wie auch der Vergleich mit der Simulation der Schaltung zeigt (siehe Anhang B.1); er trat jedoch bei wiederholten Messungen ebenfalls auf und spiegelt sich auch im Frequenzgang der Phase wieder. Es handelt sich also um einen tatsächlich vorhandenen speziellen Effekt dieser Kombination aus Elektronik und Laserdiode, da er zudem bei der neuen Schaltung nicht mehr auftritt.

Zu beachten ist jedoch, dass die so bestimmten Grenzfrequenzen nur bedingt ein Maß für die tatsächliche Regelbandbreite der Laserfrequenz darstellen, da an Stelle der eigentlich relevanten Frequenzmodulation die Intensitätsmodulation gemessen wurde. Durch Konversion der Frequenzmodulation in eine Intensitätsmoluation mit Hilfe des Resonators oder eines Interferometers wäre zwar theoretisch auch eine direkte Bestimmung der Frequenzmodulationsamplitude möglich gewesen; praktisch gestaltet sich diese Methode aber im unstabilisierten Zustand aufgrund langsamer Drifts der mittleren Frequenz weg von der jeweiligen Resonanzfrequenz als

schwierig. Die Bandbreite der Intensitätsmodulation gibt jedoch eine obere Grenze für diejenige der Frequenzmodulation an; für niedrige Frequenzen (abhängig von der jeweiligen Laserdiode) sind die Modulationsamplituden der Frequenz und der Intensität sogar streng proportional [49]. Somit liefert die Grenzfrequenz der Intensitätsmodulation zumindest ein sinnvolles Maß für die Grenzfrequenz der Frequenzmodulation. Unter dieser Annahme wurden die Einstellung des Potentiometers R_1 und die Kapazität des Kondensators C_1 für die neue Schaltung (siehe Abbildung 3.6b) optimiert. Abbildung 3.8 zeigt den gemessenen Frequenzgang der Modulationsamplitude und der Phasendifferenz entsprechend Abbildung 3.7 für verschiedene Werte von C_1 und R_1 .

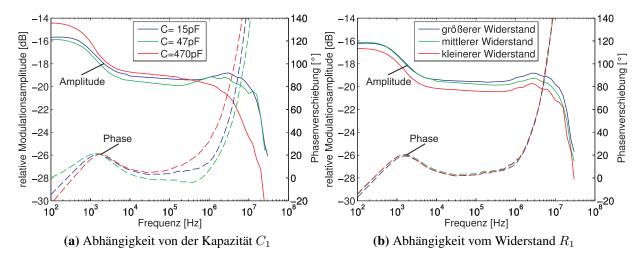


Abb. 3.8: Frequenzgang der Modulationsamplitude (durchgezogen) und Phase (gestrichelt) der Intensität des 780 nm-Lasers, bezogen auf das sinusförmige Eingangssignal, jeweils für verschiedene Kondensatoren C_1 (bei mittlerem Widerstand R_1) und Potentiometerstellungen R_1 (bei Kapazität $C_1=15\,\mathrm{pF}$) der neuen Schaltung.

Wie aus der Abbildung hervorgeht, verschiebt sich das lokale Maximum vor dem Abfall der relativen Modulationsamplitude für kleinere Kapazitäten C_1 zu höheren Frequenzen. Dies lässt sich durch die Grenzfrequenz

$$f_c = \frac{1}{2\pi R_1 C_1} \tag{3.3}$$

die umgekehrt proportional zur Kapazität ist, erklären. Um eine maximale Regelungsbandbreite zu erreichen wurde für C_1 der Kondensator mit Kapazität $C=15\,\mathrm{pF}$ gewählt.

Die Einstellung des Potentiometers R_1 ändert die Modulationsamplitude dagegen im Wesentlichen lediglich um einen konstanten Faktor wie Abbildung 3.8a zeigt; der Frequenzgang der Phasendifferenz ist für alle Einstellungen praktisch identisch. Da diese Einstellung somit keinen Einfluss auf die Regelungsbandbreite hat, wurde für das Potentiometer die Mittelstellung gewählt, da es sich gezeigt hat, dass bei dieser Einstellung die Stabilisierung des Lasers geringfügig unempfindlicher gegen äußere Störungen ist.

Dieselbe Elektronik mit den gleichen Einstellungen wurde auch für den infraroten Laser der Wellenlänge 960 nm verwendet. Die Messung der Modulationsamplitude der Lichtintensität wie oben zeigt ebenfalls einen starken Abfall bei Frequenzen über 10 MHz (siehe Abbildung 3.9).

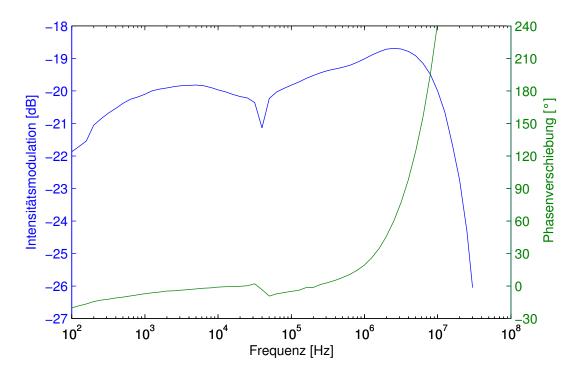


Abb. 3.9: Frequenzgang der Modulationsamplitude (blau) und Phase (grün) der Intensität des 960 nm-Lasers, bezogen auf das sinusförmige Eingangssignal, für die neue Schaltung (siehe Abbildung 3.6b)

Die leichte Abweichung des sonstigen Verlaufs des Frequenzgangs von dem des roten Lasers (siehe Abbildung 3.7) ist auf die spezifischen Transferfunktionen der verschiedenen Laserdioden zurückzuführen. Der kurze Einbruch der Amplitude zwischen 10 und 100 kHz trat auch bei wiederholten Messungen auf und spiegelt sich auch in der Phase wieder. Der Vergleich mit der Simulation der Schaltung im Anhang B.1 zeigt, dass es sich hierbei ebenfalls um einen Effekt der Laserdiode handelt.

3.3.2 Optimierung des Reglers für den roten Laser

Der für die Stabilisierung des roten Lasers verwendete kommerzielle PID-Regler¹⁴ weist auf der Vorderseite drei Schalterleisten mit jeweils 10 möglichen Stellungen auf, die den Filtern FLI (fast limited integrator), FLD (fast limited differentiator) und SLI (slow limited integrator) zugeordnet sind. Über diese Filter lässt sich die Transferfunktion des Reglers steuern. Diese hat einen signifikanten Einfluss auf die Linienbreite des Lasers sowie die Empfindlichkeit der Stabilisierung auf äußere Störungen. Um die optimalen Einstellungen für minimale Linienbreite bei ausreichender Stabilität zu finden, wurden die Schalterstellungen systematisch variiert, während die Linienbreite mit dem verzögerten Selbst-Heterodyn-Interferometer (siehe Abschnitt 2.1) überwacht wurde. Hierbei wurde ausgehend von einer Einstellung ohne Filter (FLI=1, FLD=1, SLI=10) nach und nach der durchgelassene Spektralbereich von oben (Erhöhung von FLI und FLD) und unten (Verminderung von SLI) eingeschränkt, wobei für jeden Wert die Einstellung

¹⁴Fast Analog Linewidth Control FALC 110, Toptica Photonics AG, Gräfelfing

der Hauptverstärkung (main gain) optimiert wurde. Abbildung 3.10 zeigt die spektrale Leistungsdichte der jeweils aufgenommenen Schwebungssignale zusammen mit der Linienbreite des Schwebungssignals (FWHM). Da sich an die Linienform weder eine Lorentz-, noch eine Gauß- oder Voigt-Kurve anpassen ließ und somit das Rauschspektrum neben einem konstanten und einem 1/f-Anteil (siehe Abschnitt 1.4) noch weitere kompliziertere Beiträge aufweist, lässt sich aus dem Schwebungssignal nicht exakt auf die Laserlinienbreite zurückschließen. Die Linienbreite des Schwebungssignals stellt jedoch eine sichere Obergrenze für die Laserlinienbreite dar, sofern diese überhalb der Auflösungsgrenze des Interferometers liegt, die in Abschnitt 2.3 zu $\Delta f_{min} = (19.2 \pm 0.4)$ kHz bestimmt wurde. Liegt die Breite des gemessenen Schwebungssignals jedoch unterhalb dieses Wertes, so ist dies zwar ein sicheres Anzeichen dafür, dass die Linienbreite des Lasers ebenfalls kleiner als Δf_{min} ist, über den Wert dieser Breite lässt sich dagegen in diesem Fall keine Aussage mehr treffen. Dies ist insbesondere der Fall, wenn neben der sich entwickelnden Delta-Funktion ein oszillierender Anteil im Leistungsspektrum des Schwebungssignals erkennbar wird (siehe Diskussion in Abschnitt 1.4.3 und insbesondere Abbildung 1.3), was beides hier jedoch noch nicht auftritt.

Die abschließend mit diesem Verfahren gefundenen Einstellungen sind in Tabelle 3.2 aufgeführt.

	Filter	Einstellung
fast limited integrator	FLI	7
fast limited differentiator	FLD	3
slow limited integrator	SLI	10

Tab. 3.2: Optimale Filtereinstellungen des FALC 110 für den roten Laser

Hierbei ließ sich feststellen, dass die Einstellung des Slow Limited Integrators (SLI) weniger kritisch ist, sofern hinreichend kleine Werte (SLI < 8) gewählt werden; für größere Werte für SLI lässt sich bei keiner Einstellung der Hauptverstärkung eine Stabilisierung erzielen und die Linienbreite des Schwebungssignal bewegt sich dann in der Größenordnung des nicht stabilisierten Lasers, also über einem MHz (siehe Abschnitt 3.2.1).

Mit den optimalen Einstellungen dagegen lies sich ein Schwebungssignal erzielen, dessen Linienbreite nur wenig über der Auflösungsgrenze von etwa 20 kHz liegt. Es ist damit also davon auszugehen, dass sich die Linienbreite des Lasers ebenfalls in diesem Bereich bewegt. Später hat es sich gezeigt, dass eine Erhöhung des Werts des FLD auf 4 zu einer mechanisch unempfindlicheren Stabilisierung führt, wobei sich die Laserlinienbreite nur unwesentlich vergrößert. Anschließend wurde die Geschwindigkeit des ULI (unlimited integrators), der über das piezogesteuerte Gitter langsame Drifts ausgleicht, bis knapp unter den Wert erhöht, bei dem die Stabilisierung empfindlich gegen mechanische Störungen wurde. Der maximal mögliche Wert lag bei

$$ULI = 100 \frac{V/s}{V}$$

Eine merkliche Reduzierung der Linienbreite auf der beobachteten Zeitskala von $\tau_0=52\,\mu s$ (vorgegeben durch die Verzögerungszeit der Faser, siehe Abschnitt 2.3) ließ sich dabei jedoch nicht feststellen.

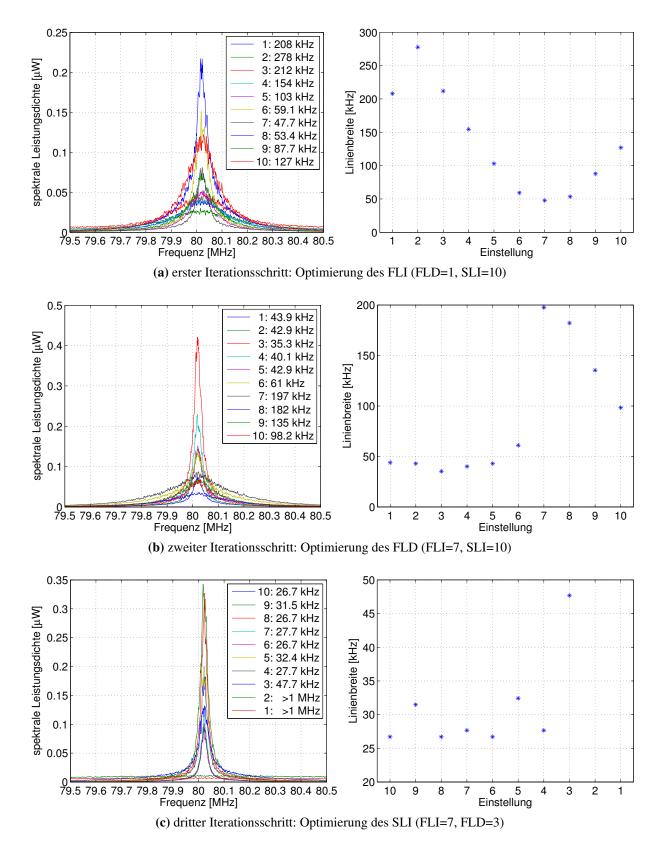


Abb. 3.10: Spektrale Leistungsdichte des am verzögerten Selbst-Heterodyn-Interferometers detektierten Schwebungssignals (links, logarithmische Darstellung in Anhang B.2) und deren Linienbreite (rechts) für verschiedene Filtereinstellungen am Regler des roten Lasers. Zur besseren Unterscheidbarkeit der Spektren wurde die Leistungsdichte linear in nW aufgetragen. Dieselben Schaubilder in logarithmischer Auftragung sind in Anhang B.2 zu finden.

3.3.2.1 Verbesserung der AOM-Treiber

Die akustooptischen Modulatoren (AOM) im Aufbau des Lasersystems zur Rydberg-Anregung werden mit Frequenzgeneratoren¹⁵ mit nachgeschalteten RF-Verstärkern¹⁶ betrieben. Die Amplitude und Frequenz des Treibers können entweder manuell über ein internes Potentiometer oder extern über einen PC gesteuert durch einen Analogeingang vorgegeben werden. Hierbei hat es sich gezeigt, dass das Rauschen des Analogkanals zur Steuerung der Frequenz zu einer Verbreiterung des Signals am Ausgang des Treibers führt, die sich auch deutlich auf die Linienbreite des Lasers auswirkt. Abbildung 3.11a zeigt einen Vergleich der Spektren des Ausgangssignals bei externer und interner Steuerung der Frequenz für zwei unterschiedliche frequenzgesteuerte Oszillatoren (voltage controlled oscillator - VCO). Bei interner Ansteuerung reduziert sich die Linienbreite des AOM-Treibers um einen Faktor von mehr als sieben. Der neue VCO weist sogar eine um drei Größenordnungen kleinere Linienbreite auf. Dieser Effekt ist auch in den Spektren der Schwebungssignale der beiden Laser am verzögerten Selbst-Heterodyn-Interferometers sichtbar. Abbildung 3.11b zeigt als Beispiel den infraroten Laser. Bei Festlegung der Oszillatorfrequenz treten im Spektrum Oszillationen auf, die bei externer Steuerung nicht auftreten. Diese sind ein Zeichen dafür, dass die Linienbreite des Lasers unter der Auflösungsgrenze des Interferometers von etwa 20 kHz liegt (siehe Abschnitte 1.4.3 und 2.3). Beim neuen VCO ist die Amplitude dieser Oszillationen noch größer, außerdem ist der Peak bei der Zentralfrequenz ausgeprägter, was auf eine weitere Reduzierung der Linienbreite schließen lässt.

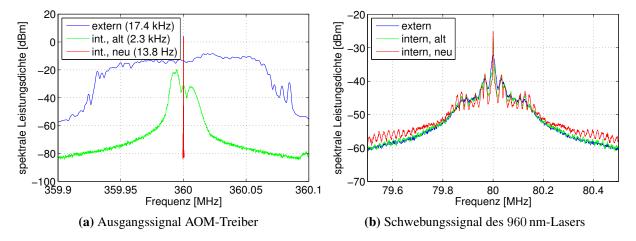


Abb. 3.11: Vergleich der Spektren der verschiedenen AOM-Treiber: Links das Ausgangssignal des AOM-Treibers und rechts das entsprechende Schwebungssignal des 960 nm-Lasers am Selbst-Heterodyn-Interferometer, jeweils für die externe und interne Steuerung, letztere für den bisherigen alten VCO und dem besseren neuen VCO.

Ein AOM-Treiber wurde von der Elektronikwerkstatt so umgebaut, dass der vom Analog-Eingang oder vom internen Potentiometer vorgegebene Frequenzwert vom Oszillator nur dann übernommen wird, wenn an einem zusätzlichen Eingang keine Spannung anliegt. Durch einen

¹⁵Eigenbau der Elektronikwerkstatt ELAB 31/05

¹⁶Mini-Circuits ZHL-1-2W

hohen Spannungspegel lässt sich dann also die Frequenz festlegen. Dadurch lässt sich zwar eine Reduzierung der Linienbreite erreichen, jedoch besteht damit weiterhin das Problem der Frequenzunsicherheit, da sich die Frequenz im Moment des Festlegens immer noch zufällig in dem durch den verrauschten Analogkanal vorgegebenen Bereich bewegt. Durch eine sorgfältigere Ausführung des Übergangs vom Analogausgang des PCs auf die BNC-Kabel an die AOM-Treiber ließ sich hier eine Verbesserung um einen Faktor von beinahe zwei erreichen (siehe Abbildung 3.12a). Um jedoch die volle Leistungsfähigkeit der stabilisierten Laser zu nutzen und trotzdem die Frequenz über den PC schnell durchfahren zu können, wie es zur Aufnahme von hochauflösenden Spektren notwendig ist, wurde als Übergangslösung der AOM des roten Lasers im Doppeldurchgang des roten Lasers mit einem Frequenzgenerator ¹⁷, der über eine GPIB-Schnittstelle angesteuert werden kann, betrieben, was die Aufnahme von Spektren über einen Frequenzbereich von 60 MHz erlaubt. Dieser Frequenzgenerator weist eine um eine Größenordnung größere Linienbreite als der neue AOM-Treiber, aber eine immer noch dreimal kleinere Linienbreite als der alte AOM-Treiber bei interner Frequenzsteuerung auf (siehe Abbildungen 3.12b und 3.11a). Durch manuelles Setzen der internen Frequenz für den Treiber des AOMs des infraroten Lasers im Doppeldurchgang lässt sich dieser Bereich um etwa 300 MHz verschieben. Da die Verbreiterung durch diesen AOM durch die Konversion in blaues Licht doppelt in die Linienbreite des Anregungsslichts eingeht, wurde hierfür der neue verbesserte VCO¹⁸ mit festgelegter Frequenz verwendet. Für die Schalt-AOMs im einfachen Durchgang, deren Verbreiterung deshalb eine geringere Rolle spielt, wurden weiterhin die alten Treiber mit intern gesetzter Frequenz verwendet.

Diese Übergangslösung wird in Zukunft durch neue AOM-Treiber mit digitaler Ansteuerung der Frequenz, die bereits bei der Elektronikwerkstatt im Bau befindlich sind, ersetzt werden. Damit wird eine vollständige Ansteuerung über den PC bei minimaler Linienbreite möglich.

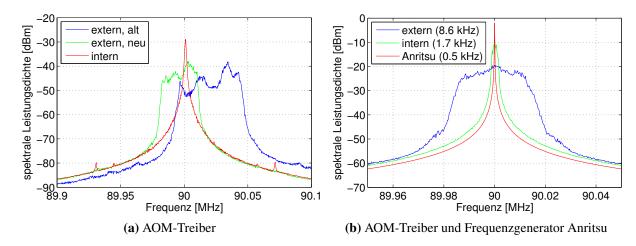


Abb. 3.12: Verschiedene Spektren der Ausgangssignale der zum Betrieb der AOMs verwendeten Frequenzquellen: Links Verbesserung der externen Ansteuerung der AOM-Treiber, rechts Vergleich des VCOs der AOM-Treiber (extern und intern angesteuert) mit dem Anritsu Frequenzgenerator.

¹⁷Anritsu MG3641A Synthesized Signal Generator 125 kHz - 1040 MHz

¹⁸Dessen Ausgangssignal wird frequenzverdoppelt (Mini-Circuits FD-2+) und verstärkt (Vorverstärker Mini-Circuits ZFL-500 und 3 dB-Abschwächer hinter der Endstufe).

3.4 Charakterisierung des verbesserten Aufbaus

In diesem Abschnitt werden abschließende Linienbreitenmessungen der beiden Laser mit dem verzögerten Selbst-Heterodyn-Interferometer aus Kapitel 2 nach Durchführung sämtlicher Verbesserungen gezeigt. Um die Aussagekraft dieser Messungen zu untersuchen, werden zunächst Ergebnisse einer alternativen Methode zur Linienbreitenmessung am roten Laser vorgestellt. Der abschließende Nachweis der Gültigkeit dieser Messungen durch die mit dem verbesserten Lasersystem erzielten spektroskopischen Ergebnisse wird dann jedoch erst in Abschnitt 7.4 in Teil II erbracht.

3.4.1 Fehlersignal des roten Lasers

Mit Hilfe des verzögerten Selbst-Heterodyn-Interferometers (siehe Kapitel 2) lässt sich die Linienbreite des Lasers nur auf einer festen Zeitskala bestimmen, die durch die Verzögerungszeit τ_0 und damit durch die Länge der Faser bestimmt ist; Fluktuationen und Drifts auf größeren Zeitskalen führen zu parallelen Frequenzverschiebungen am Ende beider Interferometerarme, was nicht in das Schwebungssignal eingeht (siehe Abschnitt 1.4). Die Verzögerungszeit der verwendeten Faser wurde in Abschnitt 2.3 zu $\tau_0 = (52 \pm 1)\,\mu s$ bestimmt. Für das Experiment ist jedoch die Linienbreite auf der Zeitskala der Dauer für die Aufnahme eines Spektrums die in der Größenordnung von 50 ms liegt, relevant. Es ist deshalb sinnvoll zu untersuchen in wiefern die Ergebnisse von Messungen mit dem Selbst-Heterodyn-Interferometer Rückschlüsse auf größere Zeitskalen erlauben.

Eine Möglichkeit hierzu besteht in der Messung des Fehlersignals am Regler. Dieses Signal gibt den Anteil des Lichts an, der von dem Resonator reflektiert wird, und stellt somit ein Maß für die Frequenzabweichung von der Resonanz des Resonators dar. Der für die Stabilisierung des roten Lasers verwendete kommerzielle Regler¹⁹ weist einen zusätzlichen Monitor-Ausgang auf, der ein Signal proportional zum Regelsignal für die Diodenstrom-Steuerungselektronik (siehe Abschnitt 3.3.1) ausgibt. Dies hat den Vorteil, dass sich das Signal abgreifen lässt, ohne dass sich der Pegel des in den Regler eingehenden oder des an die Steuerungselektronik ausgehenden Signals und damit eventuell die Güte der Stabilisierung verändert. Des Weiteren lässt sich dieses Signal über die im Aufbau bereits bestehende Sättigungsspektroskopie an einer Rubidium-Dampfzelle relativ einfach in tatsächliche Frequenzabweichungen eichen. Das hierzu nötige Vorgehen ist in Anhang B.3 ausführlich dargestellt.

Über verschiedene Zeitbereiche wurde so das Fehlersignal des roten Lasers frei laufend, nur über das Gitter mittels des ULI (unlimited integrator) stabilisiert, sowie über Gitter und Diodenstrom stabilisiert mit einem digitalen Oszilloskop 20 aufgenommen. In Abbildung 3.13 ist ein typisches Ergebnis für einen Zeitbereich von $100\,\mu s$ bzw. $1\,s$ dargestellt. In dem kurzen Zeitbereich beträgt die Abweichung bis zu $\pm 100\,k Hz$ vom Sollwert, während die Fluktuationsamplitude auf der größeren Zeitskala auf den doppelten Wert von etwa $200\,k Hz$ anwächst. Es ist also offensichtlich, dass die Linienbreite von der μs - auf die Sekunden-Zeitskala zunimmt. Um diesen Effekt quantitativ zu erfassen, bieten sich verschiedene Größen an, die aus der zeitlichen Entwicklung der Frequenzabweichung berechnet werden können.

¹⁹Fast Analog Linewidth Control FALC 110, Toptica Photonics AG

²⁰LeCroy WaveRunner 64 Xi 600 MHz

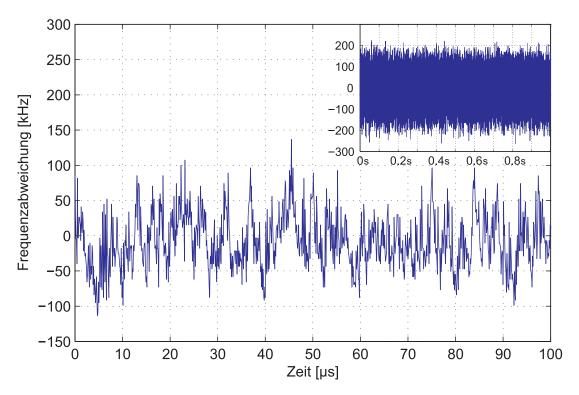


Abb. 3.13: Frequenzabweichung des stabilisierten roten Lasers von der Resonanzfrequenz des Resonators in den ersten 100 μs; in der Einfügung oben ist der volle Zeitbereich bis 1 s dargestellt.

Stichprobenstandardabweichung

Die Stichprobenvarianz liefert ein Maß für die Stabilität eines zeitabhängigen Signals, hier der Frequenzabweichung $\Delta f(t)$ von der Resonanz des Resonators [50]:

$$\sigma_{\Delta f}^{2}(N) = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^{N} \left(\Delta f_{i} - \frac{1}{N} \sum_{j=1}^{N} \Delta f_{j} \right)^{2}$$
 (3.4)

Hierbei ist die Anzahl N der Stichproben über die Stichprobenperiode τ , die Zeit zwischen zwei Messpunkten y_i , mit der Intervalllänge T verknüpft:

$$T = \tau \cdot N \tag{3.5}$$

Um die Abhängigkeit der Frequenzabweichung f(t) von der Intervalllänge quantitativ zu erfassen und somit ein Maß für den Verlauf der Linienbreite über verschiedene Zeitskalen zu erhalten, wurde die mittlere Stichprobenstandardabweichung $\langle \sigma_{\Delta f} \rangle$ als die Quadratwurzel der in Gleichung (3.4) definierten Varianz für verschiedene Intervalllängen berechnet. Dazu wurde die gemessene Frequenzabweichung $\Delta f(t)$ in Intervalle der unterschiedlicher Länge T geteilt. Über die Standardabweichung innerhalb dieser Intervalle wurde dann gemittelt. Das Ergebnis für eine gesamte Messzeit von $200\,\mathrm{ms}$ ist in Abbildung 3.14 dargestellt.

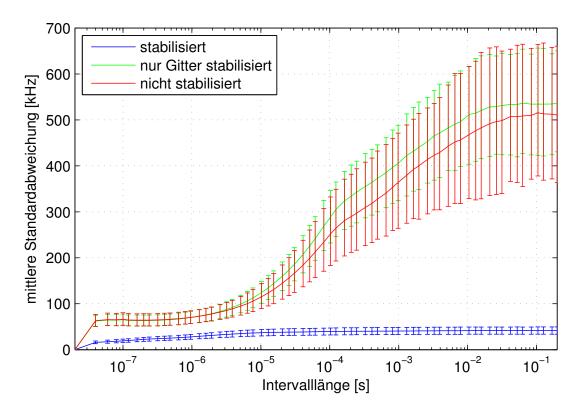


Abb. 3.14: Mittlere Stichprobenstandardabweichung der Frequenz des roten Lasers für eine gesamte Messzeit von $200\,\mathrm{ms}$ und eine Stichprobenperiode von $\tau=20\,\mathrm{ns}$ für verschiedene Intervalllängen T, jeweils nicht stabilisiert, nur über das Gitter stabilisiert sowie über Gitter und Diodenstrom stabilisiert. Die Fehlerbalken berücksichtigen den Fehler der Kalibration (siehe Anhang) und die Abweichung aus jeweils fünf Messungen.

Wie aus der Abbildung 3.14 hervorgeht, nimmt die mittlere Standardabweichung mit wachsenden Intervalllängen zu, wobei die Werte für den nicht stabilisierten und den nur über das Gitter stabilisierten Laser immer über denen des voll stabilisierten Lasers liegen. Ab einer Intervalllänge von etwa 10 µs nimmt die Standardabweichung des voll stabilisierten Lasers nur noch unwesentlich zu, während die anderen Werte stark zunehmen. Hierbei scheint der unstabilisierte Laser geringere Fluktuationen aufzuweisen als der über das Gitter stabilisierte Laser. Dies ist unter anderem darauf zurückzuführen, dass der unstabilisierte Laser für große Zeiten aus dem Bereich herausdriftet, in dem die Frequenz-Kalibration gültig ist. Die dadurch auftretenden großen Fehler lassen somit auf größeren Zeitskalen keine sinnvollen Aussagen über den unstabilisierten Laser zu.

Interpretiert man nun die mittlere Stichprobenstandardabweichung als ein Maß für die Linienbreite des Lasers, so lassen sich aus den Daten in Schaubild 3.14 die folgenden Schlüsse ziehen: Ein Vergleich der Absolutwerte der nach 2 gemessenen Linienbreiten²¹ mit der hier über das Fehlersignal bestimmten mittleren Stichprobenstandardabweichung ist zwar wegen des großen Fehlers der Kalibration nicht sinnvoll; jedoch erlauben die Messungen qualitative Rückschlüsse auf die Abhängigkeit der Linienbreite von der Zeitskala. Erwartungsgemäß nimmt die Fluktuation der Laserfrequenz und damit die Linienbreite des Lasers in allen Fällen auf größeren

²¹Diese lagen bei parallel durchgeführten Referenzmessungen unter 20 kHz.

Zeitskalen zu. Für den stabilisierten Laser ist diese Zunahme für Zeitskalen, die größer als etwa $10\,\mu s$ sind, jedoch nur noch unwesentlich. Das bedeutet, dass alle langsamen Fluktuationen mit Frequenzen kleiner als $100\,\mathrm{kHz}$ vollständig von der Regelung beseitigt werden. Des Weiteren lassen die mit dem verzögerten Selbst-Heterodyn-Interferometer auf einer Zeitskala von $\tau_0=52\,\mu s$ (siehe Abschnitt 2) bestimmten Linienbreiten somit auch Rückschlüsse auf die Linienbreiten auf größeren Zeitskalen zu.

Allan-Varianz

Die Allan-Varianz [51] stellt ein Maß für die Stabilität von Uhren und Oszillatoren dar, das insbesondere für die vergleichbare Charakterisierung von hochpräzisen Frequenzstandards Verwendung findet [50][52]. Sie berechnet sich als der Mittelwert der in Gleichung (3.4) definierten Stichprobenvarianz für zwei aufeinanderfolgende Stichproben (N=2 in Gleichung (3.4)) der dimensionslosen normalisierten Frequenzabweichung $y_n = \frac{\Delta f_n}{f_0}$ [50][52]:

$$\sigma_y^2(\tau) = \frac{1}{2} \left\langle (y_2 - y_1)^2 \right\rangle \tag{3.6}$$

Die Allan Varianz σ_y^2 hängt hierbei von der Zeit τ , über die für jeweils eine Messung gemittelt wird, der so genannten Sample-Periode, ab.

Zur Berechnung der Allan-Varianz für verschiedene Sample-Perioden au wurden die über das Fehlersignal des roten Lasers bestimmten Frequenzabweichungen $\Delta f(t)$ über verschiedene Zeiten τ gemittelt und die Zweiwert-Varianz nach Gleichung (3.6) berechnet. Die minimale Sample-Periode ist somit durch die Zeitauflösung, also die Dauer zwischen zwei Messpunkten, und die maximale Sample-Periode durch die gesamte Messzeit gegeben. Da das Verhältnis von Messzeit zu Auflösung durch die maximale Anzahl der aufgezeichneten Punkte des verwendeten Oszilloskops²² begrenzt ist, wurden die in Abbildung 3.15 gezeigten Kurven aus Messungen über drei verschieden lange Zeitabschnitte (0,2 s, 1 s und 10 s) zusammengesetzt. Wie aus dem Schaubild 3.15 hervorgeht, weist der über Gitter und Diodenstrom stabilisierte Laser für alle Sample-Perioden größer als 100 ns eine geringere Allan-Varianz auf. Daraus lässt sich folgern, dass die Regelung nur auf Frequenzen größer als 10 MHz wirksam ist, was hervorragend mit der in Abschnitt 3.3.1.1 bestimmten Bandbreite der Regelungselektronik für den Diodenstrom übereinstimmt (siehe Abbildung 3.8b). Die Regelung über das Gitter macht sich erst auf Zeitskalen größer als etwa 50 ms bemerkbar; bis zu diesem Wert stimmt die Allan-Varianz für den nicht stabilisierten Laser und den nur über das Gitter stabilisierten Laser innerhalb der Fehlergrenzen überein. Für Sample-Perioden größer als 1 s nähern sich dann die Werte des nur über das Gitter stabilisierten Lasers dem des zusätzlich über den Diodenstrom geregelten Lasers an. Daraus lässt sich folgern, dass Fluktuationen mit kleineren Frequenzen als 1 Hz vollständig über das Gitter korrigiert werden.

²²maximal 10⁷ Punkte auf jeweils zwei Kanälen bei LeCroy WaveRunner 64 Xi 600 MHz

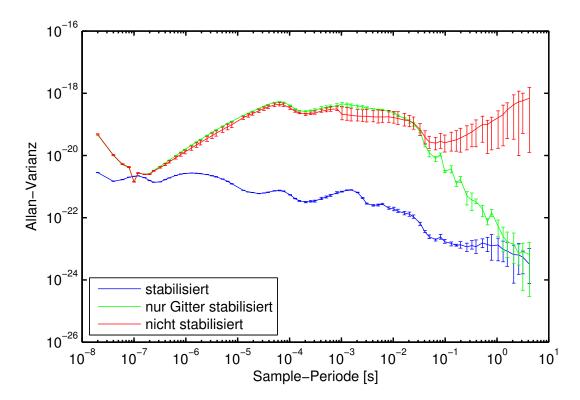


Abb. 3.15: Allan-Varianz des roten Lasers in Abhängigkeit von der Sample-Periode, jeweils nicht stabilisiert, nur über das Gitter stabilisiert sowie über Gitter und Diodenstrom stabilisiert. Die Graphen wurden aus Messungen mit verschiedenen Gesamtdauern (0,2 s, 1 s und 10 s) zusammengesetzt. Die Fehlerbalken berücksichtigen die Abweichung aus jeweils fünf Messungen.

Aus der Steigung im doppelt-logarithmischen Allan-Plot lassen sich theoretisch auch Rückschlüsse auf die Art des zugrundeliegenden Rauschens ziehen. So führt zum Beispiel reines 1/f-Rauschen (vgl. Abschnitt 1.3.2) zu einer konstanten Allan-Varianz, während weißes Rauschen (vgl. Abschnitt 1.3.1) zu einer linearen Abnahme im Allan-Plot führt. Eine komplette Zuordnung der verschiedenen Rauschtypen zu verschiedenen Verläufen im Allan-Plot ist in [50] gegeben.

Da jedoch in Abbildung 3.15 keine solch klaren Bereiche ausgemacht werden können, lässt sich lediglich folgern, dass das zugrundeliegende Rauschen eine kompliziertere Frequenzabhängigkeit aufweist. Einzig dem Bereich zwischen etwa 200 ns und $100\,\mu s$ des nicht bzw. nur über das Gitter stabilisierten Lasers lässt sich eindeutig ein $1/f^2$ -Rauschen, wie es für eine Zufallsbewegung (random walk) typisch ist, zuordnen. Hier ist außerdem ein scharfer Einbruch bei einer Sample-Periode von exakt $100\,n s$ sichtbar, der sich durch die sinusförmige $10\,m MHz$ -Modulation ergibt. Bei einer Sample-Periode, die genau einem ganzzahligen Vielfachen der zugehörigen Periodendauer entspricht, mittelt sich diese Modulation exakt zu Null was zu einem entsprechenden Einbruch in der Allan-Varianz führt [53]. Da die ausgewerteten Sample-Perioden nicht exakt mit höheren Vielfachen von $100\,n s$ übereinstimmen, lassen sich keine weiteren solche Einbrüche feststellen.

3.4.2 DSH-Linienbreitenmessung

In Abbildung 3.16 sind die Fortschritte bei der Stabilisierung der beiden Laser zur Rydberg-Anregung durch alle in Abschnitt 3.3 geschilderten Verbesserungen dargestellt. Beide Laser zeigen nun im stabilisierten Zustand Oszillationen mit der durch die Faserlänge vorgegebenen Frequenz, wie sie charakteristisch für Linienbreiten unterhalb der Auflösungsgrenze des Interferometers von hier etwa 20 kHz sind (siehe Abschnitte 1.4.3 und 2.3). Auch wenn die Spektren der Schwebungssignale beider Laser eine kompliziertere Form als das in Abschnitt 2.3 diskutierte einfache Modell zeigen, lässt sich daraus dennoch schließen, dass beide Laser auf der Zeitskala von $\tau_0=52\,\mu s$ Linienbreiten deutlich unter 20 kHz aufweisen. Dies stellt im Vergleich zum nicht stabilisierten Zustand und zur bisherigen Stabilisierung, die nur auf deutlich längeren Zeitskalen wirksam ist (siehe Abschnitt 3.2) eine Verbesserung um mehr als eine Größenordnung dar. Wie ebenso aus Abbildung 3.16b hervorgeht, ist die Linienbreite des infraroten Lasers im unstabilisierten Zustand bei der Verwendung des DL pro als Master-Laser mit etwa 100 kHz bereits um einen Faktor drei kleiner als beim alten Eigenbau-Diodenlaser. Dieser hier auf einer Zeitskala von $\tau_0=52\,\mu s$ bestimmte Wert stimmt mit dem vom Hersteller für den DL pro angegebenen Linienbreite auf einer Zeitskala von 5 μs überein.

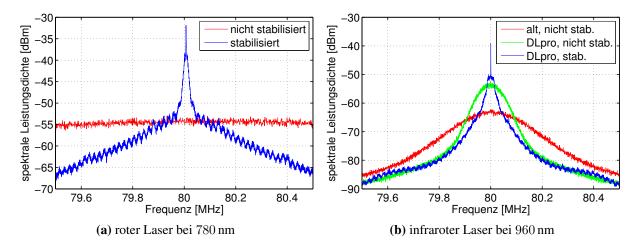


Abb. 3.16: Vergleich der mit dem verzögerten Selbst-Heterodyn-Verfahren erhaltenen Spektren des roten und des infraroten Lasers, jeweils im stabilisierten und unstabilisierten Zustand. Beim infraroten Laser ist zudem noch eine alte Messung mit dem selbstgebauten Master-Laser statt dem nun verwendeten DL pro gezeigt.

Weitere Verbesserungen der Linienbreite sind in Kürze zu erwarten, sobald der rote Master-Laser ebenfalls durch einen bereits vorhandenen DL pro ersetzt wird und für die Stabilisierung des infraroten Lasers ein neuer Regler verwendet wird. Für die hier gezeigten Messungen wurde noch der eigens für den Eigenbau-Diodenlaser optimiert angefertigte Regler verwendet.

4 Zusammenfassung

Zur Charakterisierung des vorhandenen Lasersystems zur Rydberg-Anregung wurde ein verzögertes Selbst-Heterodyn-Interferometer aufgebaut (Abschnitt 2.1). Durch umfassende theoretische Überlegungen (Kapitel 1) und experimentelle Untersuchungen mit verschiedenen Verzögerungsstrecken (Abschnitt 2.2) wurden die Begrenzungen dieses Verfahrens demonstriert. So ist das Auflösungsvermögen des Interferometers durch die Länge der als Verzögerungsstrecke verwendeten optischen Faser festgelegt. Die Auflösungsgrenze, die durch den Kehrwert der Laufzeit des Lichts durch die Faser gegeben ist, wurde für den verwendeten Aufbau zu knapp 20 kHz bestimmt (Abschnitt 2.3). Laserlinienbreiten unterhalb dieser Grenze können nur dann zuverlässig gemessen werden, wenn das Rauschspektrum des untersuchten Lasers konstant ist, was im vorliegenden Fall nicht erfüllt ist (siehe Abschnitt 2.2). Die verwendete Faserlänge von gut 10 km erwies sich jedoch im Rahmen dieser Arbeit als ausreichend. Die Aussagekraft dieser Linienbreitenmessungen wurde schließlich durch Vergleich der Messungen mit anderen Verfahren (Abschnitt 3.4.1) überprüft und belegt.

Die gesamte Stabilisierung des Lasersystems zur Rydberg-Anregung wurde umgebaut (Abschnitt 3.1) und optimiert (Abschnitt 3.3). Dazu waren insbesondere Änderungen an der Elektronik der Laserdioden und der verwendeten AOM-Treiber nötig. Hierbei erwies sich das zuvor aufgebaute verzögerte Selbst-Heterodyn-Interferometer als wertvolles Hilfsmittel, da es die kontinuierliche Überwachung der Linienbreite während den verschiedenen Optimierungsschritten erlaubt.

Die Linienbreiten der Laser bei 780 nm und 960 nm konnte schließlich bei optimalen Einstellungen auf jeweils unter $20\,\mathrm{kHz}$ reduziert werden. Zusammen mit der Linienverbreiterung durch die Frequenzverdopplung und die weiteren Schalt-AOMs im Strahlengang (siehe Abschnitt 3.1), deren Einfluss bei den Messungen nicht berücksichtigt wurde, ist somit für das gesamte Lasersystem eine kombinierte Linienbreite im Bereich von $100-200\,\mathrm{kHz}$ zu erwarten, was im Vergleich zum alten Aufbau einer Verbesserung um etwa eine Größenordnung entspricht. Dies wird durch die mit dem verbesserten Lasersystem erzielten spektroskopischen Ergebnisse in Abschnitt 7.4 in Teil II bestätigt.

Teil II Photoassoziation von Rydberg-Molekülen

5 Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die Grundlagen besprochen, die zum Verständnis der durchgeführten Spektroskopieexperimente in Kapitel 7 notwendig sind. Auf eine allgemeine Einführung über Rydberg-Atome (Abschnitt 5.1.1) folgen Berechnungen der Lebensdauer (Abschnitt 5.1.2) von Rydberg-Zuständen, die später zur Interpretation der entsprechenden Messungen in Abschnitt 7.2 herangezogen werden. Anschließend werden die untersuchten weitausgedehnten Rydberg-Moleküle im Rahmen des Fermi-Greene-Modells behandelt und erste Prognosen für deren Bindungsenergien angegeben (Abschnitt 5.2). Im letzten Abschnitt 5.3 finden sich schließlich Berechnungen zu Molekülen in elektrischen Feldern, die bei der Auswertung der spektroskopischen Ergebnisse in Abschnitt 7.3 benötigt werden.

5.1 Rydberg-Atome

Rydberg-Atome sind Atome, bei denen mindestens ein Elektron in ein Niveau mit hoher Hauptquantenzahl n angeregt ist. Wesentliche Eigenschaften, wie zum Beispiel die Größe und die hohe Polarisierbarkeit von Rydberg-Atomen, werden durch das hochangeregte Elektron bestimmt und lassen sich demnach laut dem Korrespondenzprinzip [54] weitgehend klassisch erklären. Rydberg-Atome sind damit auch ein gutes Beispiel für den Übergang zwischen Quantenmechanik und klassischer Mechanik.

5.1.1 Allgemeine Eigenschaften

Nach dem von Sommerfeld erweiterten [55] semiklassischen Bohrschen Atommodell [12] bewegen sich die Elektronen auf Ellipsenbahnen um den Kern. Die Länge der großen Halbachse wird dabei von der Energie des Elektrons vorgegeben, während die relative Länge der kurzen Halbachse durch den Drehimpuls bestimmt wird.

Große Drehimpulse

Für große Drehimpulse bewegt sich das hochangeregte Elektron auf einer Bahn weit entfernt vom Atomkern und den übrigen Elektronen. Das Potential in diesem Bereich entspricht aufgrund der Abschirmung der Ladung des Atomkerns durch die kernnahen Elektronen relativ genau dem Potential im Wasserstoff-Atom mit Kernladungszahl Z=1:

$$V(r) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r} \tag{5.1}$$

Dessen Eigenschaften lassen sich in sehr guter Näherung mit Hilfe des Bohrschen Atommodells, bei dem sich das Elektron auf einer Kreisbahn mit Radius r um den Kern bewegt, weitgehend klassisch beschreiben. Aus der Bedingung, dass die Coulombkraft $F_C = -\frac{dV}{dr}$ als Zentripetalkraft $F_Z = \frac{p_\phi^2}{mr^3}$ wirkt, folgt:

$$r = \frac{4\pi\epsilon_0}{e^2} \frac{p_\phi^2}{m_e}$$
 (5.2)

Unter Hinzunahme der semiklassischen Quantisierungsbedingung für den Drehimpuls $p_{\phi} = m_e rv$ (2. Bohrsches Postulat [1]):

$$\oint p_{\phi} d\phi = 2\pi p_{\phi} = nh \text{ mit } n \in \mathbb{N}$$
(5.3)

ergibt sich, dass der Bahnradius r_n quadratisch mit der Hauptquantenzahl n anwächst:

$$r_n = a_0 n^2 \text{ mit } a_0 = \frac{4\pi\epsilon_0 \hbar^2}{m_e e^2}$$
 (5.4)

Die Energie ehält man dann einfach als die Summe von kinetischer und potentieller Energie:

$$E_n = T + V = \frac{p_{\phi}^2}{2m_e r_n^2} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{r_n} = -\frac{R_{Ryd}}{n^2} \text{ mit } R_{Ryd} = \frac{m_e e^4}{32\pi^2 \epsilon_0^2 \hbar^2}$$
 (5.5)

Daraus folgt für die Energien von Übergängen zwischen zwei Niveaus n_1 und n_2 :

$$\Delta E_{12} = \frac{R_{Ryd}}{n_1^2} - \frac{R_{Ryd}}{n_2^2} \tag{5.6}$$

Diese Ergebnisse beschreiben das Wasserstoff-Atom und Rydberg-Atome in Zuständen mit hohem Drehimpuls.

Niedere Drehimpulse und Quantendefekt

Die im vorhergehenden Abschnitt gefundene Gleichung (5.6) entspricht von der Form bereits weitgehend den 1890 von Johannes Rydberg empirisch gefundenen Zusammenhängen der Spektrallinien von Alkali-Atomen [1][9]. Er fand, dass sich die Wellenzahlen $\overline{\nu} = \frac{E}{hc}$ der Spekrallinien in Serien der folgenden Form gruppieren lassen:

$$\overline{\nu} = \overline{\nu}_{\infty,l} - \frac{\overline{R}_{Ryd}}{n - \delta_l} \quad l = s, \, p, \, d$$
 (5.7)

Wobei n alle ganzzahligen Werte, beginnend bei 1, 2 und 3 für die so genannten sharp-, principal- und diffuse-Serien, annehmen kann und δ_l eine l-abhängige Konstante darstellt. Erst sechs Jahre später erkannten unabhängig voneinander Rydberg und Schuster [10], dass sich die Seriengrenzen aus dem zweiten Summanden in Gleichung (5.7) einer jeweils anderen Serie für n=1 und ergeben. Die Wellenzahlen der s-, p-, und d-Serien lassen sich dann schreiben als:

$$\overline{\nu_n^s} = \frac{\overline{R}_{Ryd}}{1 - \delta_p} - \frac{\overline{R}_{Ryd}}{(n - \delta_s)^2}$$
 (5.8)

$$\overline{\nu_n^p} = \frac{\overline{R}_{Ryd}}{1 - \delta_s} - \frac{\overline{R}_{Ryd}}{(n - \delta_p)^2}$$
(5.9)

$$\overline{\nu_n^d} = \frac{\overline{R}_{Ryd}}{1 - \delta_p} - \frac{\overline{R}_{Ryd}}{(n - \delta_d)^2}$$
 (5.10)

Vergleicht man dieses Ergebnis mit Gleichung (5.6), so wird deutlich, dass die einzelnen Serien Übergänge zwischen einem gemeinsamen unteren Niveau und einem Niveau mit variabler Hauptquantenzahl n repräsentieren, deren Energien gegeben sind durch:

$$E_{n,l} = -\frac{R_{Ryd}}{(n - \delta_l)^2} \tag{5.11}$$

Dieser Ausdruck entspricht, bis auf den so genannten Quantendefekt δ_l , dem oben erhaltenen Ergebnis für das H-Atom und Rydberg-Zustände von Mehrelektronenatomen mit hohem Drehimpuls. Die Ursache für diese Abweichung liegt in der unterschiedlichen Bahn der Elektronen mit niedrigem Drehimpuls. Solche Elektronen bewegen sich nach Sommerfeld auf stark elliptischen Bahnen, deren Perihel nahe am Atomrumpf liegt. In diesem Bereich weicht das Coulomb-Potential durch die Wechselwirkung mit dem Atomkern und den Rumpfelektronen vom oben angenommenen reinen 1/r-Verlauf ab, was zu einer Energieabsenkung führt, die von der Elliptizität und damit vom Drehimpuls abhängt. Die Zustände mit unterschiedlichem Quantendefekt δ_l lassen sich also mit Zuständen unterschiedlichen Drehimpulses identifizieren. Für Rydberg-Zustände lässt sich der Quantendefekt klassisch aus der Polarisierung des Atomrumpfes berechnen [56]. Die führenden Terme des auf das Rydberg-Elektron wirkenden Potentials lauten in Abhängigkeit von der Dipolpolarisierbarkeit α_d und der Quadrupolpolarisierbarkeit α_q [57]:

$$V = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left(-\frac{1}{r} - \frac{\alpha_d}{r^4} - \frac{\alpha_q}{r^6} \right)$$
 (5.12)

In einem Analogieschluss [56] erhält man dann die Energie durch Mittelung dieses Potentials über einen vollen Umlauf auf der Ellipsenbahn des Rydbergelektrons. Die Keplerbahn eines Zustandes mit der Energie $E_n = -\frac{R_{Ryd}}{n^2}$ $(n \in \mathbb{N})$ und dem Drehimpuls $p_\phi = \hbar l$ $(l = 0, 1, \ldots, n-1,$ quantisiert nach Sommerfeld [55]) im reinen Coulomb-Feld lautet:

$$r(\phi) = \frac{a_0 l^2}{1 + \epsilon \cos \phi} \quad \text{mit } \epsilon = \sqrt{1 - \frac{l^2}{n^2}}$$
 (5.13)

Zu berechnen ist nun der Erwartungswert

$$\langle r^{-m} \rangle = \frac{1}{T} \int_0^T r^{-m} dt \quad \text{für } m = 1, 4, 6$$
 (5.14)

Mit der Periodendauer $T=2\pi\left(\frac{4\pi\epsilon_0}{e^2}\right)^2\frac{\hbar^3}{m_e}n^3$ aus dem dritten Keplerschen Gesetz und der Beziehung $dt=\frac{1}{\dot{\phi}}d\phi=\frac{m_er^2}{\hbar l}d\phi$ folgt:

$$\langle r^{-m} \rangle = a_0^{-m} \frac{l^{3-2n}}{2\pi n^3} \int_{-\pi}^{\pi} (1 + \epsilon \cos \phi)^{m-2} d\phi$$
 (5.15)

Integration und Einsetzen in Gleichung (5.12) liefert:

$$E_{n,l} = \langle V \rangle = R_{Ryd} \left[-\frac{1}{n^2} - \frac{2}{n^3} \left(\frac{3\alpha_d}{4a_0^3} l^{-5} - \frac{35\alpha_q}{16a_0^5} l^{-9} + O\left(\frac{l^2}{n^2}\right) \right) \right]$$
 (5.16)

Der Vergleich mit der Entwicklung von Gleichung (5.11)

$$E_{n,l} = R_{Ryd} \left[-\frac{1}{n^2} - \frac{2}{n^3} \delta_l + O\left(\frac{\delta_l^2}{n^2}\right) \right]$$
 (5.17)

führt schließlich auf den Quantendefekt:

$$\delta_l = \frac{3\alpha_d}{4a_0^3} l^{-5} - \frac{35\alpha_q}{16a_0^5} l^{-9} \tag{5.18}$$

was exakt mit der quantenmechanischen Rechnung in Näherung bis zur selben Ordnung übereinstimmt [58]. Die Polarisierbarkeiten des Atomrumpfes müssen dann jedoch quantenmechanisch bestimmt werden (siehe zum Beispiel [59]), da das Korrespondenzprinzip hier nicht mehr gilt.

Bislang wurde die Bahn der Elektronen noch als reine Kepler-Ellipse angenommen. Berücksicht man jedoch die oben angegebene Abweichung vom Coulomb-Potential (5.12), so lässt sich zeigen [56], dass die Bahn in der Nähe des Atomrumpfes leicht gestört wird, was zu einer Periheldrehung führt, wie sie auch im Sommerfeldschen Atommodell des H-Atoms durch den relativistischen Masseneffekt hervorgerufen wird. Ein entsprechender Effekt tritt bei der Bahnbewegung des Planeten Merkur um die Sonne auf. Interessanterweise lässt sich dieses Phänomen in völliger Analogie zur obigen Behandlung des Quantendefekts bei Rydberg-Atomen durch Einführung eines so genannten Gravitationsdefekts behandeln [56]. Abschließend sei betont, dass die Ausführungen in diesem Abschnitt keinesfalls den aktuellen Stand der Forschung repräsentieren sondern lediglich die Sonderstellung von Rydberg-Atomen

Abschließend sei betont, dass die Ausfuhrungen in diesem Abschnitt keinesfalls den aktuellen Stand der Forschung repräsentieren sondern lediglich die Sonderstellung von Rydberg-Atomen an der Grenze von klassischer Physik und Quantenmechanik belegen sollen. Für eine aktuellere quantenmechanische Beschreibung des Quantendefekts und eine Interpretation als Phasenverschiebung der wasserstoffähnlichen Wellenfunktion sei auf [60] verwiesen.

5.1.2 Lebensdauer

Die Lebensdauer hochangeregter Zustände stellt eine charakteristische Eigenschaft von Rydberg-Atomen dar; sie kann sich, je nach Zustand, um mehrere Größenordnungen von typischen Lebensdauern niedrigerer Niveaus unterscheiden. Im Gegensatz zu den im vorhergehenden Abschnitt behandelten Eigenschaften von Rydberg-Atomen, die sich weitgehend aus den Gesetzen der klassischen Physik herleiten lassen, muss zur Berechnung dieser Lebensdauern auf die Quantenphysik zurückgegriffen werden.

Spontane Emission

Allgemein ist die spontane Übergangsrate eines Zustandes mit Hauptquantenzahl n und Drehimpulsquantenzahl l in ein tieferliegenden Zustand mit Quantenzahlen n' und l' durch den Einsteinkoeffizienten $A_{n'l',nl}$ gegeben [11]:

$$A_{n'l',nl} = \frac{4}{3} \frac{e^2 \omega_{nl,n'l'}^3}{4\pi \epsilon_0 \hbar c^3} \frac{max(l,l')}{2l+1} \left| \langle n'l' | r | nl \rangle \right|^2$$
 (5.19)

Dieser hängt im Wesentlichen vom energetischen Abstand $\hbar\omega_{nl,n'l'}^3$ der Niveaus und dem Betragsquadrat des Übergangsmatrixelements ab. Die durch den spontanen Zerfall bedingte Lebensdauer τ_{nl} ergibt sich dann als die inverse Summe über die Einstein-Koeffizienten $A_{n'l',nl}$

aller möglichen Zerfallskanäle:

$$\tau_{nl} = \left[\sum_{n'l'} A_{n'l',nl}\right]^{-1} \tag{5.20}$$

Hierbei wird die Summation durch die Auswahlregeln optischer Übergänge eingeschränkt. Für niedere Drehimpulsquantenzahlen $l \ll n$ ist aufgrund der Skalierung mit der dritten Potenz der Übergangsfrequenz $\omega_{nl,n'l'}$ der Übergang in das niederste Niveau mit l-1 (bzw. l=1 für S-Zustände) dominant. Wegen des mit $\propto \tilde{n}^{-3}$ abnehmenden Energieabstands benachbarter Niveaus nähert sich diese für große n einem konstanten Grenzwert an, sodass die Lebensdauer im Wesentlichen durch die Skalierung des Übergangsmatrixelements gegeben ist. Da der Überlapp der Wellenfunktionen des Rydberg-Zustand und des Grundzustandes gering ist, wird dieses durch die Normierung der Rydberg-Wellenfunktion $\propto n^{-3}$ bestimmt [11].

Für $l \approx n$ sind jedoch wegen der Auswahlregel $\Delta_l = \pm 1$ für optische Dipolübergänge nur Übergänge in benachbarte Niveaus erlaubt. Für benachbarte Zustände ist der Überlapp der Wellenfunktionen groß, sodass das Dipolmatrixelement weitgehend dem Erwartungswert $\langle r \rangle$ entspricht, der mit \tilde{n}^2 skaliert (siehe Gleichung (5.4)). Zusammen mit der Übergangsfrequenz $\omega_{nl,n'l'} \propto \tilde{n}^{-3}$ zwischen benachbarten Zuständen ergibt sich dann eine Lebendauer $\propto \tilde{n}^5$. Aus diesem Grund weisen solche so genannte zirkuläre Rydberg-Zustände eine stark erhöhte Lebensdauer auf.

Zusammengefasst lässt sich für die Lebensdauer von Rydberg-Zuständen der folgende Zusammenhang angeben:

$$\tau_{nl} = \tau' \cdot (n - \delta_l)^{\gamma} \text{ mit } \gamma = \begin{cases} 3 & \text{für } l \ll n \\ 5 & \text{für } l \approx n \end{cases}$$
 (5.21)

Diese Formel stimmt sehr gut mit genaueren theoretischen Berechnungen [61] und experimentellen Ergebnissen [62] für $l \ll n$ überein.

Einfluss der Schwarzkörperstrahlung

Die im vorigen Abschnitt erhaltenen Lebensdauern gelten nur am absoluten Nullpunkt der Temperatur. Für nicht verschwindende Temperaturen T müssen die durch die Schwarzkörperstrahlung stimulierten Absorptions- und Emissionsprozesse mitberücksichtigt werden, die insgesamt zu einem zusätzlichen Zerfallskanal führen. Die nun temperaturabhängige Zerfallsrate $1/\tau_{nl}^T$ lautet dann [11]:

$$\frac{1}{\tau_{nl}^T} = \frac{1}{\tau_{nl}} + \frac{1}{\tau_{nl}^{SK}} \tag{5.22}$$

Zur Rate $1/\tau_{nl}$ der spontanen Emission aus Gleichung (5.21) muss also noch die Rate $1/\tau_{nl}^{SK}$ der durch Schwarzkörperstrahlung stimulierten Übergänge addiert werden. Diese ergibt sich aus dem Produkt des entsprechenden Einstein-Koeffizienten für die spontane Emission (siehe Gleichung (5.19)) und der Besetzungszahl \overline{n} der entsprechenden Mode. Für letztere gilt nach dem Planckschen Strahlungsgesetz:

$$\overline{n}(\omega) = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega}{k_BT}} - 1} \tag{5.23}$$

¹Folgt unmittelbar aus Gleichung (5.6) durch Taylorentwicklung für große n.

Um Übergänge in sämtliche möglichen Niveaus n', l' zu berücksichtigen, müssen die entsprechenden Raten summiert werden:

$$\frac{1}{\tau_{nl}^{SK}} = \sum_{n'} \overline{n}(\omega_{nl,n'l'}) A_{n'l',nl}$$
(5.24)

Wegen der Frequenzabhängigkeit der Besetzungszahl $\overline{n}(\omega)$ liegt das Maximum der Übergangsrate anders als bei den oben behandelten spontanen Emissionsprozessen nun bei Endzuständen n' nahe am Ausgangsniveau n [11][63], also bei niedrigen Übergangsfrequenzen $\omega_{n'l',nl} \ll k_B T$, sodass für die Besetzungszahl \overline{n} die Entwicklung von Gleichung (5.23) verwendet werden kann:

$$\overline{n}(\omega) = \frac{k_B T}{\hbar \omega} + O\left(\left(\frac{\hbar \omega}{k_B T}\right)^2\right)$$
 (5.25)

Einsetzen von (5.25) und (5.19) in den Ansatz (5.24) liefert dann:

$$\frac{1}{\tau_{nl}^{SK}} = \frac{4}{3} \frac{e^2 k_B T}{4\pi \epsilon_0 \hbar^2 c^3} \sum_{n'l'} \omega_{nl,n'l'}^2 \frac{max(l,l')}{2l+1} \left| \langle n'l' | r | nl \rangle \right|^2$$
 (5.26)

Unter Verwendung der Summenregel [11]

$$\sum_{n'l'} \omega_{nl,n'l'}^2 \frac{max(l,l')}{2l+1} \left| \langle n'l' | r | nl \rangle \right|^2 = \frac{4R_{Ryd}^2 a_0^2}{\hbar^2 \overline{n}^2}$$
 (5.27)

folgt das Endergebnis für die durch die Schwarzkörperstrahlung bedingte zusätzliche Zerfallsrate [11][64]:

$$\frac{1}{\tau_{nl}^{SK}} = \frac{4\alpha^3 k_B T}{3\hbar} \frac{1}{\overline{n}^2} \tag{5.28}$$

wobei α hier die Feinstrukturkonstante bezeichnet.

5.2 Rydberg-Moleküle

In Abgrenzung zu hochangeregten Zuständen von Molekülen [22] und gebundenen Zuständen aus je zwei Atomen im Rydberg-Zustand [23] werden in dieser Arbeit Moleküle aus einem Rydberg-Atom und einem oder mehreren Grundzustandsatomen betrachtet. Qualitativ lässt sich der Bindungsmechanismus, der diesen Molekülen zu Grunde liegt, durch die Polarisation des Grundzustandsatoms durch das weit vom Atomrumpf entfernte Rydberg-Elektron und die daraus resultierende attraktive Wechselwirkung erklären. Um jedoch die tatsächliche Existenz von gebundenen Zuständen erklären zu können und ein qualitatives Verständnis einiger einfacher Eigenschaften zu gewinnen, muss ein quantenmechanischer Ansatz herangezogen werden. In Abschnitt 5.2.1 wird zunächst der von Fermi entwickelte Formalismus des Pseudopotentials vorgestellt, der dann anschließend in Abschnitt 5.2.2 auf zur Beschreibung der weitausgedehnten Rydberg-Moleküle verwendet wird.

5.2.1 Fermis Pseudopotential

Das Modell des Bindungsmechanismus der hier behandelten Rydberg-Moleküle geht auf einen 1934 von Fermi eingeführten Formalismus zur Beschreibung der Streuung eines niederenergetischen Elektrons an einem neutralen Atom zurück [15]. Ziel war die Erklärung der beobachteten Linienverschiebung hochangeregter Zustände im Spektrum von Alkali-Metallen durch den Zusatz von Edelgasen [14].

Ausgangspunkt der Betrachtung ist die stationäre Schrödinger-Gleichung des Elektrons in einem Potential, das sich aus dem des ionischen Atomrumpfes U und denen der umgebenden Neutralatome V_i zusammensetzt:

$$-\frac{\hbar^2}{2m_e}\Delta\psi + U\psi + \sum_i V_i\psi = E\psi$$
 (5.29)

Im folgenden wird nun das Elektron als niederenergetisch und das Wechselwirkungspotential V als isotrop und kurzreichweitig angenommen; außerhalb eines Wechselwirkungsradius ρ soll das Potential V vollständig verschwinden. Unter diesen Voraussetzungen ist die de Broglie-Wellenlänge $\lambda_{dB} = \frac{h}{\sqrt{2m_e E_{kin}}}$ des Rydberg-Elektrons viel größer als der Wechselwirkungsradius ρ . Die aus diesen Annahmen folgenden Größenverhältnisse sind in Abbildung 5.1 skizziert.

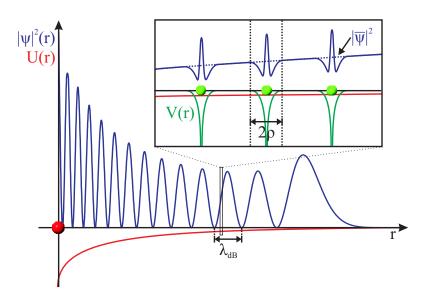


Abb. 5.1: Skizze der Größenverhältnisse, die sich aus der Annahme eines niederenergetischen Rydberg-Elektrons und einer kurzreichweitigen Wechselwirkung mit den Neutralatomen (hier als attraktive Potentialtöpfe gezeichnet) ergeben. Neben der radialen Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte $|\psi|^2(r)$ des Rydberg-Elektrons sind das Potential U(r) des positiv geladenen Atomrumpfes (rote Kugel) und die Potentiale V(r) der Neutralatome (grüne Kugeln) mit Reichweite ρ dargestellt. Die Auswirkung der im Text beschriebenen räumlichen Mittelung der Wellenfunktion zu $\left|\overline{\psi}\right|^2(r)$ ist gestrichelt angedeutet; im Wesentlichen verschwinden dabei lediglich die lokalen Effekte der Wechselwirkung mit den Neutralgasatomen auf die Wellenfunktion. Die eingezeichnete de Broglie-Wellenlänge λ_{dB} soll nur deren Größenordnung angeben, da sie eigentlich ortsabhängig ist.

Die Schrödinger-Gleichung (5.29) wird nun über ein Volumen gemittelt, dass klein gegenüber der de Broglie-Wellenlänge λ_{dB} sein soll, sodass das Potential U(r) des Atomrumpfes auf diesem Bereich näherungsweise konstant ist (siehe Abbildung 5.1). Andererseits soll der Bereich, über den gemittelt wird, jedoch groß gegenüber dem Wechselwirkungsradius ρ und dem mittleren Abstand der Neutralatome sein, sodass immer über den Bereich mindestens eines Neutralatoms gemittelt wird. Dies hat zur Folge, dass sich die Funktion $\overline{\psi}(\vec{r})$, die den Mittelwert der Wellenfunktion ψ in der so charakterisierten Umgebung des Punktes \vec{r} angibt, außerhalb des Wechselwirkungsbereichs mit Radius ρ um jeweils ein Neutralatom nur unwesentlich von der Wellenfunktion $\psi(\vec{r})$ unterscheidet. Durch die Mittelung verschwinden lediglich die lokalen Auswirkungen der Wechselwirkung mit den Neutralatomen auf die Wellenfunktion (siehe Abbildungen 5.1 und 5.2a). Unter diesen Voraussetzungen gilt außerdem $\Delta \overline{\psi} = \overline{\Delta \psi}$ [15][65] und es folgt für die Mittelung der Schrödinger-Gleichung (5.29):

$$\Delta \overline{\psi} + \frac{2m_e}{\hbar^2} (E - U) \overline{\psi} - \frac{2m_e}{\hbar^2} \overline{\sum_i V_i \psi} = 0$$
 (5.30)

Betrachtet wird nun die Umgebung eines Punktes in einem Abstand r mit $\lambda_{dB} > r > 0$ von einem streuenden Neutralatom. Diese Umgebung erstreckt sich also über Bereiche mit verschwindender und nichtverschwindender Wechselwirkung V(r) mit dem Neutralatom. Außerhalb des Wechselwirkungsbereichs $(r > \rho)$ ist die Wellenfunktion ψ in erster Näherung gleich dem Mittelwert $\overline{\psi}$ über die betrachtete Umgebung und konstant (siehe Abbildung 5.2a), da jene klein gegenüber λ_{dB} ist. Innerhalb der Wechselwirkungszone $(r < \rho)$ dagegen ist nach Voraussetzung die Energie E - U gegenüber der Wechselwirkung vernachlässigbar. Die Wellenfunktion hängt dann praktisch lediglich vom Abstand r zum streuenden Neutralatom ab. Für die Wellenfunktion ψ in der betrachteten Umgebung gilt somit also:

$$\psi = \begin{cases} \overline{\psi} = const. & \text{für } r > \rho \\ \psi(r) & \text{für } r < \rho \end{cases}$$
 (5.31)

Im Wechselwirkungsbereich $r < \rho$ vereinfacht sich die Schrödinger-Gleichung (5.29) dann zu:

$$\frac{1}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2\frac{\partial\psi}{\partial r}\right) = \frac{2m_e}{\hbar^2}V(r)\psi(r)$$
(5.32)

Die Form des Laplace-Operators legt die Substitution

$$\psi = \frac{u(r)}{r} \tag{5.33}$$

nahe, und man erhält:

$$\frac{d^2u}{dr^2} = \frac{2m_e}{\hbar^2}V(r)u(r) \tag{5.34}$$

Daraus folgt, dass sich die Funktion u(r) für große Abstände r, wo das Potential V(r) verschwindet, asymptotisch an eine Gerade in r annähert. Die Steigung dieser Geraden ist durch die Bedingung festgelegt, dass die Wellenfunktion $\psi(r)$ für $r>\rho$ konstant gleich dem Mittelwert $\overline{\psi}$ wird (siehe Gleichung (5.31) und Abbildung 5.2a). Die asymptotische Form von u(r) außerhalb des Wechselwirkungsbereichs lässt sich also schreiben als:

$$u(r) = \overline{\psi} \cdot (r - a) \text{ für } r > \rho \tag{5.35}$$

Die Größe a bezeichnet den Schnittpunkt der Asymptote mit der Abszisse und hat demnach die Dimension einer Länge. Diese wird heute als Streulänge² bezeichnet und ist von der genauen Form des Wechselwirkungspotentials V abhängig. Ein typischer Verlauf von u(r) ist in Abbildung 5.2b skizziert.

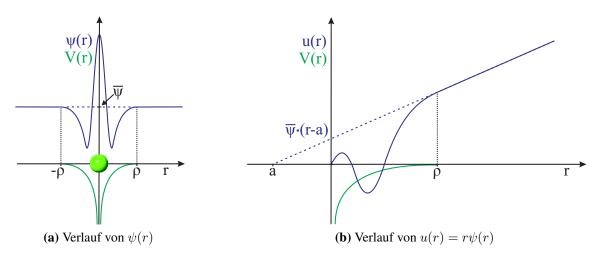


Abb. 5.2: Typischer Verlauf der Wellenfunktion $\psi(r)$ (links) bzw. der substituierten Größe $u(r)=r\psi(r)$ (rechts). Die gemittelte Wellenfunktion $\overline{\psi}$ wird auf einem Bereich in der Größenordnung des Wechselwirkungsradius ρ als näherungsweise konstant angenommen (vgl. Abbildung 5.1), woraus der asymptotische Verlauf von u(r) in der Abbildung rechts folgt. Wegen der Endlichkeit der Wellenfunktion ψ ist u(0)=0.

Mit Hilfe der Gleichungen (5.34) und (5.35) kann man nun den Wechselwirkungsterm in Gleichung (5.30) berechnen, wenn man von einer homogenen Teilchenzahldichte n der streuenden Neutralatome ausgeht:

$$\frac{2m_e}{\hbar^2} \overline{\sum_i V_i \psi} = n \frac{2m_e}{\hbar^2} \overline{V \psi} = n \frac{2m_e}{\hbar^2} \int V \psi d^3 r = 4\pi n \frac{2m}{\hbar^2} \int V \frac{u}{r} r^2 d^3 r \qquad (5.36)$$

$$= 4\pi n \int \frac{d^2 u}{du^2} d^3 r = 4\pi n \left(\frac{du}{dr} r - u\right)$$

$$\frac{2m_e}{\hbar^2} \overline{\sum_{i=1}^n V_i} = 4\pi n a \overline{\psi}$$
(5.37)

Damit lässt sich die gemittelte Schrödinger-Gleichung (5.30) schreiben als:

$$\Delta \overline{\psi} + \frac{2m_e}{\hbar^2} \left(E - V_0 - U \right) \overline{\psi} = 0 \tag{5.38}$$

mit dem Potential

$$V_0 = \frac{\hbar^2}{m_e} 2\pi na \tag{5.39}$$

²Die hier verwendete heutige Definiton der Streulänge *a* unterscheidet sich von der in [15] in der Wahl des Vorzeichens.

Bereits Fermi hat erkannt, dass dieses Potential, abhängig von der Art der Wechselwirkung und damit vom Vorzeichen der Streulänge, abstoßend oder anziehend sein kann [15], was kurz darauf von Reinsberg [65][66] durch weitergehende Berechnungen bestätigt wurde. Berücksichtigt man nun die starke Lokalisierung der Streuwechselwirkung, so lässt sich dieses Potential als Mittelung der Wechselwirkung mit vielen Neutralatomen der homogenen Anzahldichte n verstehen, bei der jedem Streuzentrum am Ort \vec{R} eine so genannte Pseudopotential-Dichte [67]

$$V_{Pseudo}(\vec{r}, \vec{R}) = \frac{\hbar^2}{m} 2\pi a \,\delta(\vec{r} - \vec{R})$$
 (5.40)

zugeordnet werden kann.

5.2.2 Molekülpotential

Eine einfache Näherung für das Molekülpotential weitausgedehnter Rydberg-Moleküle erhält man aus der im vorhergehenden Abschnitt 5.2.1 hergeleiteten Fermischen Pseudopotentialdichte V_{Pseudo}^3 . Im Gegensatz zum dort betrachteten Problem der Streuung eines Elektrons an vielen homogen verteilten Neutralatomen muss hier die wiederholte Streuung des Rydberg-Elektrons am Ort \vec{r} an einem einzigen Neutralatom am Ort \vec{R} betrachtet werden. Das effektive Potential $V(\vec{R})$ für das Neutralatom lässt sich in einer Art Molekularfeldnäherung als der Erwartungswert der Pseudopotentialdichte mit der Wellenfunktion des gestreuten Rydberg-Elektrons annähern [68][24]:

$$V(\vec{R}) = \int \psi^*(\vec{r}) V_{Pseudo}(\vec{r} - \vec{R}) \psi(\vec{r}) d^3 r = \frac{\hbar^2}{m_e} 2\pi a \left| \psi(\vec{R}) \right|^2$$
 (5.41)

Für die Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte kann in erster Näherung die ungestörte Wellenfunktion des Rydberg-Elektrons verwendet werden. Für die Streulänge a, die sich aus der Polarisation des Grundzustandsatoms mit der Polarisierbarkeit α ergibt, wird in [67] in niederster Ornung Streutheorie (s-Wellenstreuung) bis zu Termen linear in der Wellenzahl k der folgende Ausdruck angegeben:

$$a(k) = a(0) + \frac{\pi}{3} \frac{\hbar^2}{e^2 a_0^2 m_e} \alpha k + O(k^2)$$
(5.42)

Für die s-Wellen-Streulänge a(0) für verschwindende kinetische Energie existieren hierbei theoretische Voraussagen [69]. Die Abhängigkeit von der Wellenzahl k lässt sich hierbei in einer semiklassischen Näherung durch die Forderung der Energieerhaltung des ungestörten Rydberg-Elektrons durch eine Ortsabhängigkeit ausdrücken [24]:

$$E_n = E_{kin} + V_{Coulomb} \Leftrightarrow \frac{\hbar^2 k^2(R)}{2m_e} = -\frac{R_{Ryd}}{(n - \delta_l)^2} + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{R}$$
 (5.43)

Diese Näherung liefert jedoch nur im klassisch erlaubten Bereich, also für Radien $R < 2a_0n^2$, sinnvolle Ergebnisse, weshalb für größere Radien die Streulänge a_0 für verschwindende kinetische Energie verwendet wird. Abbildung 5.3a zeigt die somit durch Gleichung (5.42) beschriebene Abhängigkeit der Streulänge a vom Abstand R des Streuzentrums vom Kern des

³Auf die Gültigkeit der dort verwendeten Näherungen wird in Anhang C eingegangen.

Rydberg-Atoms für das Beispiel des 35s-Zustandes. Eingesetzt in Gleichung (5.41) ergibt sich dann das Potential:

$$V(\vec{R}) = \frac{\hbar^2}{m} 2\pi \left(a(0) + \frac{\pi}{3} \frac{\hbar^2}{e^2 a_0^3 m_e} \alpha \sqrt{-\frac{1}{(n-\delta_l)^2} + \frac{2a_0}{R}} \right) \left| \psi(\vec{R}) \right|^2$$
 (5.44)

Als Beispiel wurde das Molekülpotential für den 35s-Rydberg-Zustand von Rubidium ^{87}Rb berechnet. Ausgangspunkt dazu war eine mit dem so genannten Numerov-Algorithmus berechnete Wellenfunktion [70]. Die Abhängigkeit des Molekülpotentials V und der Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte $|\psi|^2$ vom Abstand R vom Atomkern des Rydberg-Atoms sind in Abbildung 5.3b gezeigt; da für den gewählten s-Zustand l=0 ist, sind beide Funktionen winkelunabhängig.

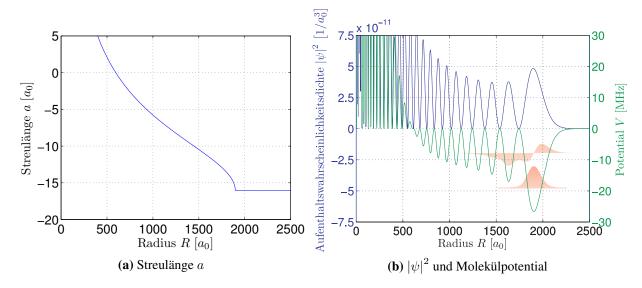


Abb. 5.3: 35s-Zustand von ^{87}Rb : Streulänge a und rechts Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte $|\psi|^2$ des Rydberg-Elektrons (blau) und das zugeordnete Molekülpotential (grün). Außerdem sind die Ausdehnung und Lage der Wellenfunktionen des Molekülgrundzustandes und ersten angeregten Niveaus aus der Lösung der Schrödinger-Gleichung mit dem Potential aus Gleichung (5.44) angedeutet (rot). Verwendet wurden die Streulänge $a(0) = -16,1 \, a_0$ für parallele Spinstellung von Rydberg-Elektron und Rb-Grundzustandsatom [69] und die Polarisierbarkeit $\alpha = 319,2 \, \frac{e^2 \, a_0^2}{2R_{Ryd}}$ [24] sowie der Quantendefekt $\delta_0 = 3,135$ [71] des 5s-Zustandes von Rb.

Es zeigt sich, dass das Potential für große Abstände attraktiv wird, so dass gebundene Zustände jeweils eines Grundzustandsatoms und eines Atoms im Rydberg-Zustand möglich sind. Die numerische Lösung [72] der Schrödinger-Gleichung mit dem Molekülpotential nach Gleichung (5.44) liefert zwei gebundene Zustände, einen Grundzustand bei etwa $-19,24\,\mathrm{MHz}$ und ein angeregtes Niveau bei etwa $-8,24\,\mathrm{MHz}$ (siehe Abbildung 5.3b). Die Bindungslänge bewegt sich im Bereich von etwa 1900 Bohrradien. Entsprechende Berechnungen führten im Jahr 2000 zur Voraussage von zweiatomigen so genannten weitausgedehnten Rydberg-Molekülen durch Greene et al. [24], was 2008 auch experimentell bestätigt wurde [25]. Nach den bisherigen Über-

legungen spricht nichts dagegen, die Streuung des Rydberg-Elektrons auch an mehreren Grundzustandsatomen zu behandeln [73], wie es auch in der ursprünglichen Betrachtung von Fermi (siehe Abschnitt 5.2.1 und [15]) der Fall ist. Gebundene Zustände aus einem Rydberg-Atom und zwei Grundzustandsatomen würden demnach in erster Näherung die doppelte Bindungsenergie des zweiatomigen Moleküls aufweisen. Die Existenz solcher Trimer-Zustände wurde bereits in [25] vorausgesagt und nun auch experimentell nachgewiesen (siehe Abschnitt 7.1 und [74]). Abschließend sei angemerkt, dass die hier dargestellte Theorie lediglich die Existenz von Molekülzuständen relativ anschaulich begründen und einige Eigenschaften wie die Grundzustandsenergie und die Bindungslänge quantitativ erklären kann. Durch Verfeinerung des Modells, wie zum Beispiel durch Berücksichtigung der p-Wellen-Streuung [67], lässt sich die Existenz weiterer angeregter Zustände qualitativ erklären. Eine Rückwirkung des gebundenen Grundzustandsatoms auf das Rydberg-Elektron ließe sich zum Beispiel analog zur Wechselwirkung mit dem Atomrumpf als Quantendefekt beschreiben. Die Vorgehensweise hierzu würde analog zu derjenigen in Abschnitt 5.1.1 verlaufen, da auch hier die Wechselwirkung durch die Polarisation des Grundzustandsatoms durch das Rydberg-Elektron gegeben ist⁴. Um jedoch sämtliche experimentell gefundene Molekülzustände auch quantitativ beschreiben zu können, ist ein weitaus größerer Aufwand von Nöten. Deshalb wurde hierfür eine Kollaboration mit dem MPI für Physik komplexer Systeme in Dresden ins Leben gerufen, deren Ergebnisse in [74] dargestellt sind.

5.2.3 Elektronische Zustände von Rydberg-Molekülen

Für die Bezeichnung der elektronischen Zustände von Rydberg-Molekülen, wie sie im vorhergehenden Abschnitt 5.2.2 beschrieben wurden, wird die in der Molekülphysik übliche Notation für zweiatomige Moleküle verwendet [75]. Der Bahndrehimpuls wird durch die Quantenzahl $\Lambda=0,1,2,\ldots$ in Analogie zu der Bezeichnung atomarer Zustände als griechischer Großbuchstabe Σ,Π,Δ,\ldots dargestellt. Diese Quantenzahl gibt die Projektion des gesamten elektronischen Bahndrehimpulses $\vec{L}=\sum \vec{l_e}$ auf die Molekülachse an. Die Multiplizität 2S+1 des Zustands, die durch die Quantenzahl S des gesamten Elektronenspins $\vec{S}=\sum \vec{s_e}$ (mit $|\vec{S}|=\hbar\sqrt{S(S+1)}$) bestimmt ist, wird als Exponent vorangestellt. Als nachgestellter Index wird schließlich die Projektion $\Omega=\Lambda+\Sigma$ des gesamten elektronischen Drehimpulses auf die Molekülachse angegeben, wobei Σ die Projektion des Gesamtspins \vec{S} bezeichnet. Damit lautet die vollständige Bezeichnung eines elektronischen Molekülzustandes :

$$^{2S+1}\Lambda_{\Omega}$$
 (5.45)

Im Experiment sind an der Bildung von Rydberg-Molekülen nur Atome in s-Zuständen beteiligt (Rydberg-Atom ns und Grundzustandsatome 5s). Bei den beobachteten Molekülen handelt es sich also um Σ -Zustände. Für die zweiatomigen Moleküle wären theoretisch das Zustands-Triplett $^1\Sigma$ oder Singulett $^0\Sigma$ denkbar, während für die Trimere das Quartett $^4\Sigma$ und Dublett $^2\Sigma$ in Frage kommen. Zur Beurteilung, welche dieser Zustände überhaupt existieren können, ist diese Basis zur Beschreibung der Molekülzustände jedoch nicht geeignet, sondern eine Beschreibung in der Basis der atomaren Zustände angebracht. In dieser werden die Projektionen

 $^{^4}$ Für das Potential kann als Ansatz Gleichung (5.12) verwendet werden, wobei in den Wechselwirkungstermen der Radius r der Elektronenbahn durch die Differenz r-R ersetzt werden muss, wobei R die radiale Position des gebundenen Grundzustandsatoms darstellt.

 $m_s = \pm \frac{1}{2}$ der Elektronenspins auf die Vorzugsrichtung angegeben. Nachfolgend sind die theoretisch denkbaren Molekülzustände und ihre Darstellung in der atomaren Basis aufgeführt (die nicht existierenden Zustände sind durchgestrichen, siehe unten):

$${}^{3}\Sigma_{1} = \uparrow \uparrow$$

$${}^{3}\Sigma_{0} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\uparrow \downarrow + \downarrow \uparrow)$$

$${}^{3}\Sigma_{-1} = \downarrow \downarrow$$

$${}^{1}\Sigma_{0} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\uparrow \downarrow - \downarrow \uparrow)$$

$$(5.46)$$

Aus dieser Darstellung geht hervor, dass bei beiden Zuständen mit $\Omega=0$ die Spins des Rydberg-Elektrons und des Leuchtelektrons des Grundzustandsatoms antiparallel sind. Da jedoch die Streulänge a(0) aus Gleichung (5.42) für antiparallele Spinstellungen des Grundzustandsatoms und des Rydberg-Elektrons positiv ist⁵ und die Wechselwirkung somit repulsiv wird, sind diese Zustände nicht bindend. Aus diesem Grund existieren also theoretisch nur die beiden Triplett-Zustände $^3\Sigma_{\pm 1}$ tatsächlich.

Entsprechend sind auch für die Trimere nur Zustände zu erwarten, bei denen sämtliche Elektronenspins parallel stehen; dies sind die Quartett-Zustände $(S=\frac{3}{2})$ mit den Projektionen $M_S=\frac{3}{2}$ auf eine ausgezeichnete Achse⁶:

$$M_S = +\frac{3}{2}: \uparrow \uparrow \uparrow$$
 $M_S = -\frac{3}{2}: \downarrow \downarrow \downarrow$ (5.47)

5.3 Moleküle im elektrischen Feld

Die Energie W eines Teilchens im elektrischen Feld \vec{E} lässt sich formal in einer Multipolentwicklung nach den Komponenten E_i darstellen als:

$$W = W_0 + \left[\frac{\partial W}{\partial E_i}\right]_0 E_i + \frac{1}{2} \left[\frac{\partial^2 W}{\partial E_i \partial E_j}\right]_0 E_i E_j + \dots$$
 (5.48)

Hier und im folgenden wird nach der Einsteinschen Summenkonvention über doppelt auftretende Indices summiert. Der erste Summand W_0 ist die Energie des Teilchens ohne äußeres elektrisches Feld \vec{E} . Der in \vec{E} lineare zweite Term beschreibt den linearen Stark-Effekt, der anschaulich aus der Wechselwirkung eines permanenten Dipolmoments $\vec{\mu} = -[\vec{\nabla}_{\vec{E}} W]_0$ mit dem elektrischen Feld \vec{E} resultiert:

$$W_{Stark}^{(1)} = -\vec{\mu} \cdot \vec{E} \tag{5.49}$$

Der dritte Summand stellt den quadratischen Stark-Effekt dar, wobei die Größe $\alpha_{ij} = -\left[\frac{\partial^2 W}{\partial E_i \partial E_j}\right]_0$ als Tensor der linearen Polarisierbarkeit bezeichnet wird:

$$W_{Stark}^{(2)} = -\frac{1}{2}\alpha_{ij}E_iE_j \tag{5.50}$$

⁵Die theoretisch berechnete Streulängen eines niederenergetischen Elektrons ($E_{kin} \approx 0$) an einem Rb-Atom im Grundzustand 5s beträgt [69]: $a_{\uparrow\downarrow}(0) = 0.627 \, a_0$ bzw. $a_{\uparrow\uparrow}(0) = -16.1 \, a_0$

⁶Da bei den dreiatomigen Molekülen zunächst keine molekülfeste Achse ausgezeichnet ist, ist die für zweiatomige Moleküle oben eingeführte Notation nicht mehr gültig. Die ausgezeichnete Achse kann dann zum Beispiel durch ein äußeres Feld vorgegeben sein.

Bei Abwesenheit eines permanenten Dipolmoments wird diese Energieverschiebung anschaulich durch die Wechselwirkung eines durch das äußere Feld \vec{E} induzierten Dipolmoments mit dem Feld \vec{E} verursacht. Weist das Teilchen dagegen ein nichtverschwindendes permanentes Dipolmoment auf, so treten in dieser Ordnung zusätzlich auch Korrekturen aus der Wechselwirkung des Dipolmoments mit dem elektrischen Feld auf (siehe Abschnitt 5.3.2.2).

In diesem Kapitel werden mit Hilfe der Störungstheorie [76] die Ausdrücke (5.49) und (5.50) für die Stark-Energien erster und zweiter Ordnung von Molekülen quantenmechanisch berechnet. Hierbei führt die Existenz weiterer Freiheitsgrade aus der Bewegung der Kerne, insbesondere die Rotation und Schwingung, im Vergleich zum Stark-Effekt bei Atomen [77] zum Auftreten zusätzlicher Effekte. Aus diesem Grund werden im folgenden Abschnitt einige wichtige Grundbegriffe zur Vibration und Rotation von Molekülen knapp eingeführt⁷.

5.3.1 Bewegung der Kerne in Molekülen

In der Born-Oppenheimer-Näherung [79] lässt sich die Bewegung der Kerne unabhängig von der Elektronenbewegung betrachten. Die kinetische Energie T ergibt sich dann aus der Summe über alle Kerne k mit Massen m_k und Geschwindigkeiten $\vec{\rho}_k$ in einem beliebigen raumfesten Koordinatensystem:

$$T = \frac{1}{2} \sum_{k} m_k \dot{\vec{\rho}}_k^2 \tag{5.51}$$

Um die Anteile der Translation, der Rotation und der Vibration des gesamten Moleküls zu separieren, ist es sinnvoll, die Koordinaten $\vec{\rho}_k$ im raumfesten Koordinatensystem wie folgt zu ersetzen [79]:

$$\vec{\rho_k} = \vec{R} + \mathbf{S}^{-1} \left(\vec{r_k}^g + \vec{d_k} \right) \tag{5.52}$$

Der Vektor \vec{R} bezeichnet hierbei den Schwerpunkt des Moleküls bezüglich der raumfesten kartesischen Koordinatenachsen x, y und z, während \vec{d}_k die Auslenkung von der Gleichgewichtsposition \vec{r}_k^g im molekülfesten Koordinatensystem mit den Achsen⁸ a, b und c angibt. Die Richtungscosinusmatrix $\bf S$ beschreibt die Drehung des molekülfesten Achsensystems relativ zu den raumfesten Koordinaten:

$$\vec{r}_{\{x,y,z\}} = \mathbf{S}\vec{r}_{\{a,b,c\}} \tag{5.53}$$

Die explizite Abhängigkeit der Drehmatrix S von den Eulerschen Winkeln findet sich zum Beispiel in [79]. Einsetzen der Substitution (5.52) in die kinetische Energie (5.51) liefert unter Berücksichtigung der Eigenschaften der einzelnen Größen abzüglich der Translationsenergie des gesamten Moleküls [80]:

$$T = T_v + T_r + T_{vr} (5.54)$$

Die kinetische Energie verteilt sich also auf einen Vibrationsanteil

$$T_v = \frac{1}{2} \sum_{k} m_k \dot{\vec{d}}_k^2 \tag{5.55}$$

⁷Eine umfassende Einführung, die auch hier vernachlässigte Effekte wie Rotations-Vibrations-Kopplung, Schwingungsdehnung und Zentrifugalaufweitung berücksichtigt, findet sich zum Beispiel in [75] oder [78].

⁸Diese werden später als die Hauptträgheitsachsen des Moleküls gewählt.

einen Rotationsanteil

$$T_r = \frac{1}{2}\vec{\omega}^T \mathbf{I}\vec{\omega} \tag{5.56}$$

sowie einen Kopplungsterm

$$T_{vr} = \sum_{k} m_k \vec{\omega} \left(\vec{d} \times \dot{\vec{d}}_k \right) \tag{5.57}$$

der in erster Näherung gegen die ersten beiden Terme vernachlässigt werden kann. Die Energie der Vibration liefert in der quantenmechanischen Betrachtung für zweiatomige Moleküle in der harmonischen Näherung [75]:

$$T_v = \hbar \omega_{vib} \left(\nu + \frac{1}{2} \right), \quad \nu = 0, 1, 2, 3, \dots$$
 (5.58)

Der Ausdruck der Rotationsenergie soll nun im Folgenden näher untersucht werden. Zur quantenmechanischen Beschreibung muss aus Gleichung (5.56), die in Abhängigkeit von der Winkelgeschiwndigkeit $\vec{\omega}$ und dem Trägheitstensor I des Moleküls im molekülfesten Koordinatensystem gegeben ist, der Hamilton-Operator \hat{H}_r abgeleitet werden. Dazu werden zunächst die Winkelgeschwindigkeiten $\vec{\omega}$ durch den Drehimpuls $\vec{J} = \vec{\nabla}_{\vec{\omega}} T_r = \mathbf{I} \vec{\omega}$ ersetzt:

$$T_r = \frac{1}{2}\vec{J}^T \mathbf{I}^{-1}\vec{J} \tag{5.59}$$

Durch eine geeignete unitäre Transformation in das Hauptachsensystem $\{a,b,c\}$ wird der Trägheitstensor I diagonal und man erhält:

$$T_r = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{I_a} J_a^2 + \frac{1}{I_b} J_b^2 + \frac{1}{I_a} J_c^2 \right)$$
 (5.60)

Die Ersetzung der Komponenten J_{α} ($\alpha=a,b,c$) des Drehimpulses im molekülfesten Hauptachsensystem durch die entsprechenden quantenmechanischen Operatoren nach der Ersetzungsregel $J_{\alpha} \to \hbar \hat{J}_{\alpha}$ liefert dann den Hamilton-Operator:

$$\hat{H}_r = A\hat{J}_a^2 + B\hat{J}_b^2 + C\hat{J}_c^2 \tag{5.61}$$

Hierbei wurden die Rotationskonstanten $A,\,B$ und C mit $A=\frac{\hbar^2}{2I_a}$ usw. eingeführt.

Aus den allgemeinen Drehimpulsvertauschungsrelationen und den Eigenschaften der Richtungscosinusmatrix **S** lässt sich elementar herleiten [79], dass eine gemeinsame Eigenbasis zum Operator des Quadrats \hat{J}^2 des Drehimpulsoperators sowie jeweils einer Komponente des Drehimpulsoperators im raumfesten Koordinatensystem $\{x, y, z\}$ und im molekülfesten Hauptachsensystem $\{a, b, c\}$ existiert:

$$\hat{J}^{2} |JKM\rangle = J(J+1) |JKM\rangle
\hat{J}_{c} |JKM\rangle = K |JKM\rangle
\hat{J}_{z} |JKM\rangle = M |JKM\rangle$$
(5.62)

Die Drehimpulsquantenzahl J ($J=0,1,2,\ldots$) ist damit ein Maß für den Betrag des Drehimpulses, während die Quantenzahlen K ($|K|\leq J$) und M ($|M|\leq J$) die Projektion des Drehimpulses auf die molekülfeste Achse c bzw. die raumfeste Achse z angeben. Damit lässt

sich nun die Rotationsenergie als der Erwartungswert des Hamilton-Operators (5.61) berechnen, was jedoch explizit nur im Fall symmetrischer Kreisel-Moleküle möglich ist. Für den Fall eines symmetrischen prolaten Moleküls gilt $I_a = I_b > I_c^9$ und man erhält:

$$W_{JKM}^{r} = \langle JKM | \hat{H}_{r} | JKM \rangle = \langle JKM | B (\hat{J}^{2} - \hat{J}_{c}^{2}) + C \hat{J}_{c}^{2} | JKM \rangle$$

$$W_{JK}^{r} = BJ(J+1) + (C-B)K^{2}$$
(5.63)

Beim linearen Molekül ist zu beachten, dass eine Rotation um die Molekülachse c nicht möglich ist¹⁰. Demnach erhält man die Energie des linearen Moleküls als Spezialfall des symmetrischen prolaten Moleküls durch Auslassen der Terme, die die Rotationskonstante C enthalten [79][81]:

$$W_{JK}^{r} = BJ(J+1) - BK^{2} (5.64)$$

In der bisherigen Betrachtungsweise, bei der nur der so genannte Hanteldrehimpuls aus der Rotationsbewegung des Moleküls berücksichtigt wurde, ist hier K=0 zu setzen, da der Hanteldrehimpuls linearer Moleküle senkrecht zur Molekülachse steht. Weisen dagegen die Elektronen im Molekül zusätzlich einen gesamten Bahndrehimpuls $\vec{L}=\sum \vec{l_e}$ oder Gesamtspin $\vec{S}=\sum \vec{s_e}$ auf, der an den Hanteldrehimpuls koppelt, so kann $K\neq 0$ werden. Die Quantenzahl J steht in diesem Fall für den Gesamtdrehimpuls des Moleküls aus der Kopplung sämtlicher Drehimpulse, während die Quantenzahl der reinen Molekülrotation keine gute Quantenzahl mehr ist $[78]^{11}$. Die Projektion K des Gesamtdrehimpulses auf die Molekülachse setzt sich dann aus den Projektionen M_L und M_S der elektronischen Drehimpulse zusammen. Im Allgemeinen müssen hierbei verschiedene Fälle, die so genannten Hundschen Kopplungsfälle, betrachtet werden, die sich in der Kopplungsstärke der einzelnen Drehimpulse unterscheiden [78][81].

5.3.2 Stark-Energien

In diesem Abschnitt sollen die Energieverschiebung von Molekülen im homogenen elektrischen Feld $\vec{E} = E\vec{e}_z$ durch den Stark-Effekt mit Hilfe quantenmechanischer Störungstheorie [76] bis zur zweiten Ordnung in E berechnet werden¹². Der dazu betrachtete Hamilton-Operator lautet:

$$\widehat{H}_{Stark} = -\hat{\vec{\mu}} \cdot \vec{E} \tag{5.65}$$

Hierbei ergibt sich der Dipolmomentoperator $\hat{\vec{\mu}}$ in Analogie zum klassischen Dipolmoment aus der permanenten und durch das elektrische Feld induzierten Verschiebung der Ladungsschwerpunkte der Kerne und Elektronen relativ zueinander im Molekül. Da das Dipolmoment üblicherweise relativ zum molekülfesten Koordinatensystem gegeben ist, während das elektrische Feld

⁹Entgegen der sonst üblichen Konvention sind die Achsen $\{a,b,c\}$ hier nicht mit aufsteigendem Trägheitsmoment gewählt, da c die ausgezeichnete Molekülachse darstellt.

 $^{^{10}}$ Anschauliche Erklärung: Aufgrund des dann verschwindend geringen Trägheitsmomentes I_c wird die zur Anregung einer Rotation um diese Achse benötigte Energie unendlich hoch. [75]

¹¹In der in der Literatur üblichen Notation werden also mit den Quantenzahlen J, K sowohl der Hanteldrehimpuls, als auch im Fall der Kopplung mit dem elektronischen Drehimpuls der Gesamtdrehimpuls beschrieben. Dies kann zwar zu Verwechslungen führen, ist jedoch sinnvoll, da in letzterem Fall die Quantenzahlen der reinen Molekülrotation nicht mehr definiert sind.

¹²Die Ergebnisse bis vierter Ordnung Störungstheorie und eine alternative Möglichkeit zur exakten Berechnung der Stark-Energien sind im Anhang D.1.4 bzw. D.1.5 angegeben.

raumfest (o.B.d.A. parallel zur z-Achse gewählt) ist, muss eine Transformation der molekülfesten Komponenten $q = \{a, b, c\}$ in die raumfesten Komponenten $i = \{x, y, z\}$ durchgeführt werden, wozu die Richtungscosinusmatrix S_{ai} verwendet wird (siehe Gleichung (5.53)):

$$\widehat{H}_{Stark} = -S_{iq}\widehat{\mu}_q E_i = -ES_{zq}\widehat{\mu}_q \tag{5.66}$$

Im letzten Schritt ist berücksichtigt, dass das elektrische Feld parallel zur z-Achse gewählt wurde ($\vec{E} = E\vec{e}_z$).

Die Störungsrechnung wird in der Basis der Molekülzustände durchgeführt, die durch ihren elektronischen e, vibronischen ν und rotatorischen Zustand r gekennzeichnet sind, wobei sich letzterer nach den oben gemachten Annahmen separieren lässt [80]:

$$|e\nu r\rangle = |e\nu\rangle |r\rangle = |e\nu\rangle |JKM\rangle$$
 (5.67)

5.3.2.1 Störungsrechnung 1. Ordnung

In erster Ordnung Störungstheorie ergibt sich die Stark-Verschiebung als der Erwartungswert des Hamilton-Operators (5.66) in der Basis der ungestörten Zustände (5.67):

$$W_{Stark}^{(1)}(e,\nu,r) = \langle e\nu r | \widehat{H}_{Stark} | e\nu r \rangle = -E \langle e\nu | \widehat{\mu}_c | e\nu \rangle \langle r | S_{zc} | r \rangle = -E\mu \frac{KM}{J(J+1)} \quad (5.68)$$

Die Größe μ stellt dabei das permanente Dipolmoment des Zustandes $|e\nu r\rangle$ entlang der c-Achse dar¹³. Das Matrixelement der Richtungscosinusmatrix ${\bf S}$ wurde, wie in Anhang D.1.1 gezeigt, durch die Quantenzahlen J, K und M ausgedrückt.

Für $K, M \neq 0$ spalten sämtliche Zustände im elektrischen Feld auf, wobei das Vorzeichen der Aufspaltung zustandsabhängig ist. Der lineare Stark-Effekt tritt also nur für Moleküle mit einem permanenten Dipolmoment μ auf, die in einem Zustand mit $K \neq 0$ vorliegen. Insbesondere zeigen somit lineare Moleküle ohne elektronischen Drehimpuls, für die K = 0 ist (siehe oben), in erster Ordnung keinen Stark-Effekt. Liegt jedoch eine Entartung von Zuständen, hervorgerufen durch den Stark-Effekt höherer Ordnung oder durch die Existenz benachbarter angeregter Zustände vor, so kann dennoch ein Stark-Effekt erster Ordnung auftreten, da dann die in den nächsten Abschnitten durchgeführte Störungsrechnung zweiter Ordnung ohne Entartung zusammenbricht [82]. Die in diesem Fall notwendige Vorgehensweise zur Berechnung der Stark-Energien findet sich in [83]

5.3.2.2 Störungsrechnung 2. Ordnung

Der Ausdruck für die Stark-Verschiebung zweiter Ordnung (ohne Entartung) lautet [80]:

$$W_{Stark}^{(2)}(e,\nu,r) = \sum_{e'\nu'r'\neq e\nu r} \frac{|\langle e\nu r | \hat{H}_{Stark} | e'\nu'r' \rangle|^{2}}{W_{e\nu r} - W_{e'\nu'r'}}$$

$$= E^{2} \sum_{e'\nu'r'\neq e\nu r} \sum_{q} \frac{1}{W_{e\nu r} - W_{e'\nu'r'}} |\langle e\nu | \hat{\mu}_{q} | e'\nu' \rangle|^{2} |\langle r | S_{zq} | r' \rangle|^{2}$$
(5.69)

 $^{^{13}}$ Für zylindersymmetrische Moleküle ist das permanente Dipolmoment immer parallel zur c-Achse: $\vec{\mu} = \mu \vec{e}_c$

In der Summe über die Zustände mit $e'\nu'r' \neq e\nu r$ kann nun der Fall mit $e'\nu' = e\nu$ abgetrennt werden:

$$W_{Stark}^{(2)}(e,\nu,r) = E^{2} \sum_{r'} \sum_{q} \frac{1}{W_{r} - W_{r'}} |\langle e\nu | \hat{\mu}_{q} | e\nu \rangle|^{2} |\langle r | S_{zq} | r' \rangle|^{2}$$

$$+ E^{2} \sum_{e'\nu' \neq e\nu} \sum_{q} \frac{1}{W_{e\nu r} - W_{e'\nu'r'}} |\langle e\nu | \hat{\mu}_{q} | e'\nu' \rangle|^{2} |\langle r | S_{zq} | r' \rangle|^{2}$$

$$= \mu^{2} E^{2} \sum_{r'} \frac{|\langle r | S_{zc} | r' \rangle|^{2}}{W_{r} - W_{r'}} + E^{2} \sum_{e'\nu' \neq e\nu} \sum_{q} \frac{|\langle e\nu | \hat{\mu}_{q} | e'\nu' \rangle|^{2}}{W_{e\nu r} - W_{e'\nu'r'}} |\langle r | S_{zq} | r' \rangle|^{2}$$

$$(5.70)$$

Hierbei wurde im letzten Schritt verwendet, dass das permanente Dipolmoment $\langle e\nu | \hat{\vec{\mu}} | e\nu \rangle$ aus Symmetriegründen parallel zur c-Achse ist (siehe oben Abschnitt 5.3.2.1). Die beiden Summanden werden nun getrennt voneinander weiter untersucht.

Permanentes Dipolmoment

Der erste Summand in Gleichung (5.70) enthält das permanente Dipolmoment μ und tritt somit nur bei polaren Molekülen auf. Einsetzen der Rotationsenergie des symmetrischen prolaten Moleküls aus Gleichung (5.63) und der Elemente der Richtungscosinusmatrix (siehe Anhang D.1.1) liefert, wie in Anhang D.1.2 explizit ausgeführt:

$$W_{Stark}^{(2,\mu)}(J,K,M) = \frac{\mu^2 E^2}{2B} \left(\frac{(J^2 - K^2)(J^2 - M^2)}{J^3(2J+1)(2J-1)} - \frac{((J+1)^2 - K^2)((J+1)^2 - M^2)}{(J+1)^3(2J+1)(2J+3)} \right)$$
(5.71)

Wie sich unschwer zeigen lässt, kann diese Verschiebung, je nach Zustand, positiv oder negativ sein. Hierbei tritt eine Entartung der Zustände mit gleicher Gesamtdrehimpulsquantenzahl J und gleichen Beträgen der Projektionsquantenzahlen K und M auf. Für große Drehimpulsquantenzahlen J geht die Energieverschiebung gegen Null, was sich anschaulich dadurch erklären lässt, dass sich das effektive Dipolmoment im raumfesten Koordinatensystem durch die schnelle Rotationsbewegung zu Null mittelt.

Für lineare Moleküle ohne elektronischen Drehimpuls \vec{S} , für die somit K=0 gilt, lässt sich der Ausdruck (5.71) weiter vereinfachen:

$$W_{Stark}^{(2,\mu)}(J,0,M) = \frac{\mu^2 E^2}{2B} \frac{J(J+1) - 3M^2}{J(J+1)(2J-1)(2J+3)}$$
(5.72)

In Abbildung 5.4a ist die Abhängigkeit von Gleichung (5.72) von der Bahndrehimpulsquantenzahl J und der Quantenzahl M der Projektion auf die Richtung des äußeren elektrischen Feldes E dargestellt. Für Niveaus mit fester Drehimpulsquantenzahl $J \geq 1$ spalten die Zustände mit unterschiedlichem Betrag der Projektionsquantenzahl M auf. Die Zustände mit betragsmäßig großer Drehimpulsquantenzahl $|M| \approx J$ werden hierbei zu negativen Energien verschoben, während die Verschiebung für kleine |M| positiv wird. Die Aufspaltung zwischen den |M|-Niveaus jeweils eines J-Zustandes ist für J=1 maximal; für große J geht die Aufspaltung gegen Null, was wie bereits oben erwähnt auf die Mittelung des Dipolmoments $\vec{\mu}$ zu Null bei zunehmender Rotation zurückzuführen ist.

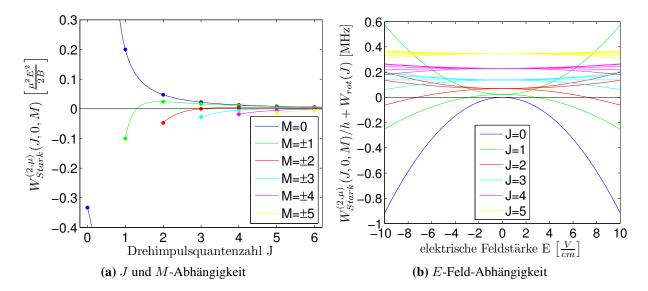


Abb. 5.4: Abhängigkeit von Gleichung (5.72) von den Quantenzahlen J und M sowie von der elektrischen Feldstärke E (rechts). Links ist die Aufspaltung der verschiedenen |M|-Zustände für jeweils feste Quantenzahl J dargestellt, während rechts ein Beispiel für die resultierende Verschiebung der Zustände gegeben ist, wobei zur besseren Unterscheidbarkeit zusätzlich die Aufspaltung der verschiedenen Rotationszustände durch die Rotationsenergie (Gleichung (5.64)) berücksichtigt wurde. Die Farben kennzeichnen in der linken Abbildung Zustände mit gleichem Betrag |M|, während in der rechten Abbildung Zustände mit gleichem J dargestellt sind.

In der Folge ergibt sich dann die in Abbildung 5.4b gezeigte quadratische Aufspaltung 14 der Niveaus im elektrischen Feld E. Die Parabeln negativer Krümmung im elektrischen Feld E sind hierbei den Zuständen mit $|M|\approx J$ zuzuordnen, während sich für Zustände mit betragsmäßig kleiner Projektionsquantenzahl M Parabeln mit positiver Krümmung ergeben. Die Energie der Unterzustände nimmt dazwischen mit wachsendem |M| zu. Bei höheren Drehimpulsquantenzahlen J nimmt die Anzahl der |M|-Unterzustände zu $(|M|\leq J)$, jedoch nimmt deren Aufspaltung ab. Ohne elektrisches Feld (E=0) tritt keine Aufspaltung auf, allerdings wird die Entartung bereits durch die Rotationsenergie (Gleichung (5.64)) aufgehoben, die zu einer konstanten Verschiebung der Rotationszustände proportional J(J+1) zu positiven Energien führt.

Induziertes Dipolmoment

Bei Molekülen mit verschwindendem permanentem Dipolmoment $\vec{\mu}$ bleibt in Gleichung (5.70) lediglich der zweite Summand übrig:

$$W_{Stark}^{(2,\alpha)}(e,\nu,r) = E^{2} \sum_{\substack{e'\nu' \neq e\nu \\ -J}} \sum_{q} \frac{|\langle e\nu | \hat{\mu}_{q} | e'\nu' \rangle|^{2}}{W_{e\nu} + W_{r} - W_{e'\nu'} - W_{r}} |\langle r | S_{zq} | r' \rangle|^{2}$$
(5.73)

¹⁴Beispiel: Molekül aus zwei ^{87}Rb im Abstand von 1900 a_0 , Dipolmoment $\mu=0.05$ Debye

Unter der Annahme, dass der elektronische und vibronische Anteil $W_{e\nu}$ viel größer als die Rotationsenergie W_r ist, lässt sich dieser Ausdruck kompakt darstellen:

$$W_{Stark}^{(2,\alpha)}(e,\nu,r) = E^2 \sum_{q} \left(-\frac{\alpha_{qq}}{2}\right) \sum_{r'} \left|\langle r|S_{zq}|r'\rangle\right|^2$$
(5.74)

mit der Substitution [80]

$$\alpha_{qq} = -2\sum_{e'\nu' \neq e\nu} \frac{|\langle e\nu | \hat{\mu}_q | e'\nu' \rangle|^2}{W_{e\nu} - W_{e'\nu'}}$$
 (5.75)

Der Vergleich von Gleichung (5.74) mit der Entwicklung (5.48) zeigt, dass es sich hierbei um einen quantenmechanischen Ausdruck für den Tensor ¹⁵ α der linearen Polarisierbarkeit handelt. Diese ist somit, im Gegensatz zum permanenten Dipomoment $\vec{\mu} = \langle e\nu | \hat{\vec{\mu}} | e\nu \rangle$, nicht die Eigenschaft eines einzelnen elektronischen und vibronischen Zustandes, sondern entsteht aus der Linearkombination von verschiedenen Zuständen.

Für zylindersymmetrische Moleküle gilt $\alpha_{aa} = \alpha_{bb}$ und man erhält, wie im Anhang D.1.3 explizit dargestellt:

$$W_{Stark}^{(2,\alpha)}(J,K,M) = -\frac{1}{2} \left[\alpha_{bb} + (\alpha_{cc} - \alpha_{bb}) \left(A_{JK} + B_{JK} M^2 \right) \right] E^2$$
 (5.76)

mit den Größen

$$A_{JK} = \frac{(J+1)^2 - K^2}{(2J+1)(2J+3)} + \frac{J^2 - K^2}{4J^2 - 1}$$

$$B_{JK} = \frac{K^2}{J^2(J+1)^2} + \frac{K^2 - (J+1)^2}{(J+1)^2(2J+1)(2J+3)} + \frac{K^2 - J^2}{J^2(4J^2 - 1)}$$
(5.77)

Wie bereits in der Einleitung erwähnt, lässt sich diese Stark-Verschiebung durch die Wechselwirkung eines induzierten Dipolmoments mit dem elektrischen Feld interpretieren. Durch die Rotation des Moleküls kann sich dann eine Asymmetrie des Polarisierbarkeitstensors bemerkbar machen. Es tritt dann, wie beim Stark-Effekt zweiter Ordnung für polare Moleküle, eine Entartung von Zuständen mit gleichem J und gleichen Beträgen |K| und |M| auf. Für ein perfekt kugelsymmetrisches Molekül ($\alpha_{bb}=\alpha_{cc}=\alpha$) wird dagegen die Stark-Energie unabhängig vom rotatorischen Zustand und man erhält den aus der Atomphysik bekannten Ausdruck für den quadratischen Stark-Effekt:

$$W_{Stark}^{(2)}(\alpha) = -\frac{1}{2}\alpha E^2 \tag{5.78}$$

Für lineare Moleküle ohne elektronischen Drehimpuls \vec{S} , lässt sich in Gleichung (5.76) K=0 setzen und man erhält:

$$W_{Stark}^{(2,\alpha)}(J,0,M) = -\frac{1}{2} \left[\alpha_{bb} + (\alpha_{cc} - \alpha_{bb}) \frac{2J^2 + 2J - 1 - 2M^2}{(2J - 1)(2J + 3)} \right] E^2$$
 (5.79)

Die Abhängigkeit des in dieser Gleichung auftretenden Koeffizienten von der Rotationsquantenzahl J und der Quantenzahl M der Projektion auf die Richtung des äußeren elektrischen

¹⁵Hierbei wird vorausgesetzt, dass der Tensor der Polarisierbarkeit α im selben Koordinatensystem wie der Trägheitstensor I diagonal ist, was für Moleküle im Allgemeinen der Fall ist [80].

Feldes ist in Abbildung 5.5a dargestellt. Der Koeffizient, der die J- und |M|-Abhängigkeit beschreibt, ist immer positv. Für maximalen Betrag der Projektionsquantenzahl (|M|=J) geht der Koeffizient für hohe Drehimpulsquantenzahlen J gegen Null und Gleichung (5.79) geht somit in den Ausdruck (5.78) mit $\alpha=\alpha_{bb}$ über. In diesem Fall liegt die Rotationsachse¹⁶ parallel zum äußeren Feld. Durch die schnelle Rotation ist dann im Mittel nur die Polarisierbarkeit α_{bb} senkrecht zur Molekülachse von Bedeutung. Für |M| < J dagegen nähert sich der Koeffizient mit wachsendem J an den Grenzwert $\frac{1}{2}$ an, woraus wiederum eine Stark-Verschiebung in der Form von Gleichung (5.78), jedoch mit der effektiven Polarisierbarkeit $\alpha=\frac{1}{2}(\alpha_{bb}+\alpha_{cc})$, folgt. In diesem Fall ist die Rotationsachse senkrecht zum äußeren Feld \vec{E} , sodass bei der Rotation des Moleküls die Molekülachse abwechselnd senkrecht und parallel zu \vec{E} steht. Bei einer schnellen Rotation (große Quantenzahlen J) ergibt sich also effektiv der Mittelwert der Polarisationen senkrecht und parallel zur Molekülachse.

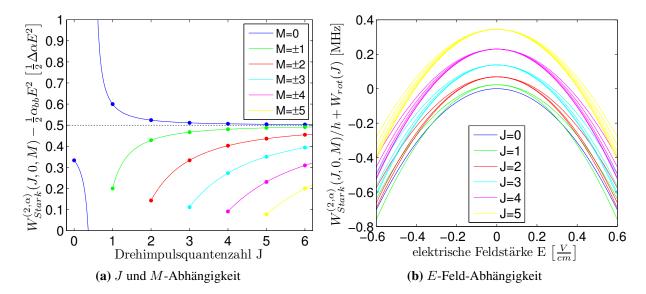


Abb. 5.5: Abhängigkeit von Gleichung (5.79) von den Quantenzahlen J und M sowie von der elektrischen Feldstärke E (rechts). Links ist die Aufspaltung der verschiedenen |M|-Zustände für jeweils feste Quantenzahl J dargestellt, während rechts ein Beispiel für die resultierende Verschiebung der Zustände gegeben ist, wobei zur besseren Unterscheidbarkeit zusätzlich die Aufspaltung der verschiedenen Rotationszustände durch die Rotationsenergie (Gleichung (5.64)) berücksichtigt wurde. Die Farben kennzeichnen in der linken Abbildung Zustände mit gleichem Betrag |M|, während in der rechten Abbildung Zustände mit gleichem J dargestellt sind.

Die resultierende quadratische Stark-Aufspaltung im elektrischen Feld E ist in Abbildung 5.5b dargestellt¹⁷. Es ergeben sich für alle Zustände Parabeln mit negativer Krümmung, die jedoch jeweils leicht von J und |M| abhängt. Mit wachsender Drehimpulsquantenzahl J nimmt die Anzahl der Unterniveaus zu (|M| < J). Der Bereich, über den die Krümmung variiert, wird

¹⁶Diese ist wegen K = 0 (siehe Abschnitt 5.3.1) senkrecht zur Molekülachse.

 $^{^{17}}$ Beispiel: Molekül aus zwei ^{87}Rb im Abstand von $1900~a_0$, Polarisierbarkeiten $\alpha_{bb}=0.8~\alpha$ und $\alpha_{cc}=1.2~\alpha$ mit $\alpha=4.19\frac{\rm MHz}{\rm V~cm}$ für den 35s-Zustand von ^{87}Rb

nur von der Differenz der Polarisierbarkeiten α_{cc} und α_{bb} senkrecht bzw. parallel zur Molekülachse und somit der Asymmetrie des Moleküls bestimmt; der in Abbildung 5.5a dargestellte Koeffizient bewegt sich für alle J im Bereich zwischen 0 und etwa $\frac{1}{2}$. Insbesondere wird auch die energetische Reihenfolge der |M|-Unterniveaus bei festem J nur durch das Vorzeichen von $\alpha_{cc} - \alpha_{bb}$ bestimmt. Wie oben beim Stark-Effekt mit permanentem Dipolmoment wird die Entartung der Niveaus ohne äußeres Feld bereits durch die Rotationsstruktur aufgehoben.

Für hohe elektrische Feldstärken E müssen auch Terme höherer Ordnung berücksichtigt werden. Die Ergebnisse bis einschließlich vierter Ordnung in E sind im Anhang D.1.4 angegeben. Eine Möglichkeit zur Berechnung der Stark-Energien für beliebige Feldstärken findet sich im Anhang D.1.5

6 Experimentelle Realisierung

Der allgemeine Ablauf eines Experiments zur Erzeugung und zum Nachweis von Rydberg-Atomen und der dazu verwendete Aufbau soll im folgenden kurz dargestellt werden. Komponenten, die für diese Arbeit von größerer Bedeutung sind, werden in den nachfolgenden Abschnitten detaillierter beschrieben. Für eine ausführliche Dokumentation des Aufbaus sei auf [84] und [85] verwiesen.

Kernstück des Experiments ist eine herkömmliche Apparatur zur Bose-Einstein-Kondensation von Rubidium ^{87}Rb [86]. Zusätzlich enthält die Vakuumkammer jedoch elektrische Feldplatten und Detektoren für geladene Teilchen (siehe Abschnitt 6.3), die die Detektion und Manipulation von Rydberg-Atomen erlauben. Dieser Aufbau ist um ein stabilisiertes Lasersystem (siehe Abschnitt 3.1) erweitert, das über einen Zwei-Photonen-Übergang die Anregung von Rubidium-Atomen in Rydberg-Zustände mit Hauptquantenzahlen größer als n=20 erlaubt.

Der Ablauf eines Experiments lässt sich in die Abschnitte Präparation, Anregung und Detektion gliedern und dauert insgesamt jeweils etwa eine Minute (siehe Schema in Abbildung 6.1).

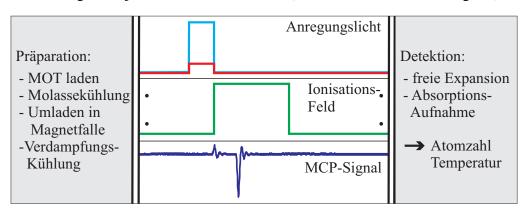


Abb. 6.1: Schematische Darstellung des Ablaufs eines Experiments: Nach Präparation der ultrakalten Atomwolke werden mehrere Sequenzen aus Rydberg-Anregung und Rydberg-Detektion ausgeführt. Anschließend wird die Dichteverteilung und Temperatur der verbleibenden Atome in der Wolke über eine Absorptionsaufnahme nach der freien Expansion der Wolke bestimmt. Weitere Details sind im Text gegeben.

Die längste Zeit nimmt hierbei mit etwa $40\,\mathrm{s}$ die Erzeugung einer Wolke ultrakalter Rubidium-Atome in Anspruch (siehe Abschnitt 6.1). In dieser Wolke werden dann mit einem Lichtpuls variabler Länge (typischerweise $3-20\,\mu\mathrm{s}$) Rydberg-Atome und Moleküle angeregt. Zum Nachweis werden diese durch Anlegen eines elektrischen Feldes in der Größenordnung von $200\,\mathrm{V/cm}$ für etwa $60\,\mu\mathrm{s}$ ionisiert und in Richtung der als Detektoren verwendeten Multikanalplatten (siehe Abschnitt 6.3) beschleunigt. In einer Atomwolke lassen sich im Abstand von etwa $3\,\mu\mathrm{s}$ mehrere Sequenzen aus Rydberg-Anregung und Detektion durchführen. Typischerweise wird dabei in jeder Sequenz die Frequenz der Anregungslaser verändert um ein Spektrum

zu erhalten. Die maximal Anzahl an in einer Wolke durchführbaren Sequenzen lag zu Beginn bei 51 und konnte im Rahmen dieser Arbeit durch Verbesserungen an der Hard- und Software zur Messdatenaufnahme (siehe Abschnitt 6.3) auf über 500 erhöht werden. Anschließend an die Rydberg-Sequenz werden schließlich die restlichen Grundzustandsatome nach Abschalten der Falle und einer freien Expansion über eine variable Zeitspanne im Bereich von 5-40 ms durch eine Absorptionsaufnahme detektiert. Diese erlaubt die Bestimmung von Anzahl, Dichteverteilung und Temperatur in der Falle.

6.1 Präparation ultrakalter Atome

Die Rydberg-Anregung einer Wolke von ultrakalten Rubidium-Atomen wird in den hier beschriebenen Experimenten in einer Magnetfalle durchgeführt, um die für die Bildung von weitausgedehnten Rydberg-Molekülen notwendigen hohen Atomzahldichten von bis zu $1,5\cdot 10^{13} \text{cm}^{-3}$ bei Temperaturen im Bereich weniger μK zu gewährleisten. Das Laden der Falle und Kühlen der Atome findet dabei in mehreren Schritten statt.

Zunächst wird mit einem Atomstrahl aus einem auf 160° C geheizten Ofen über eine differentielle Pumpstrecke durch einen Zeeman-Abbremser eine magnetooptische Falle (magneto-optical trap - MOT) geladen. Die Temperatur der Atome wird dann im nächsten Schritt durch optische Molasse-Kühlung [87] von anfänglich $2\,\text{mK}$ auf etwa $20\,\mu\text{K}$ bei Atomzahlen von $2\cdot 10^9$ reduziert. Die vorgekühlten Atome werden dann in die Magnetfalle umgeladen, in der dann durch Radiofrequenzverdampfungskühlung [87] eine Endtemperatur von wenigen μK bei Atomzahlen von etwa $3\cdot 10^6$ erreicht wird. Niederere Temperaturen bis hin zur Bose-Einstein-Kondensation wären zwar mit der verwendeten Apparatur möglich [84], hier aber nicht nötig und wegen den großen Atomzahlverlusten bei der Verdampfungskühlung nicht erwünscht.

Von Bedeutung für die Interpretation der hier vorgestellten Ergebnisse ist die Ausführung der verwendeten Magnetfalle als Kleeblatt-Falle mit nichtverschwindendem Magnetfeld im Zentrum [39]. Dieses Offset-Feld im Bereich von etwa $10^{-4}\,\mathrm{T}$ ist notwendig, um Verluste durch Majorana-Spin-Flip-Prozesse [88] in der Fallenmitte zu vermeiden. Der Einfluss dieses Magnetfeldes auf das gemessene Spektrum wird in Abschnitt 6.4 diskutiert. Eine abschließende Übersicht über typische Parameter der verwendeten Magnetfalle ist in Tabelle 6.1 gegeben.

Parameter	typischer Wert
Offset-Feld	80 μT
Feldgradient	$6.07 \cdot 10^{-3} \frac{T}{Am}$
Feldkrümmung	$0.5 \frac{T}{Am^2}$
radiale Fallenfrequenz	18 Hz
axiale Fallenfrequenz	310 Hz
Temperatur	$3,5\mu\mathrm{K}$
maximale Dichte	$1.5 \cdot 10^{13} \mathrm{cm}^{-3}$
Durchmesser $(1/e^2)$	28 μm
Länge $(1/e^2)$	380 µm

Tab. 6.1: Typische Parameter der Magnetfalle [39][25]

6.2 Rydberg-Anregung

6.2.1 Anregungsschema

In Abbildung 6.2 ist das Termschema der für die Rydberg-Anregung relevanten Zustände von ⁸⁷Rb dargestellt. Im linken Teil der Abbildung ist die Hyperfeinstrukturaufspaltung¹ dargestellt, während im rechten Teil zusätzlich auch die Zeeman-Aufspaltung der magnetischen Unterniveaus im Magnetfeld der Falle berücksichtigt ist. Sie bewegt sich typischerweise im Bereich weniger MHz (siehe Abschnitt 6.4). Die Rydberg-Anregung findet ausgehend vom Hyperfeinniveau $f=2, m_f=2$ des Grundzustandes $5s_{1/2}$, in dem die Atome in der Magnetfalle präpariert werden, in den $n s_{1/2}$ -Rydberg-Zustand statt. Hier wird das magnetische Unterniveau mit $m_i = \frac{1}{2}$ gewählt, da dieser Zustand im Magnetfeld wegen der übereinstimmenden g-Faktoren die gleiche Zeeman-Verschiebung wie das Ausgangsniveau erfährt [39]; die Übergangsfrequenz dieser beiden Zustände wird damit also magnetfeldunabhängig. Da ein direkter optische Übergang zwischen den beiden s-Zuständen Dipol-verboten ist, wird die Rydberg-Anregung als Zwei-Photonen-Übergang realisiert. Der rote Laser wird hierbei durch akustooptische Modulatoren variabel bis zu 400 MHz relativ zum Zwischenniveau $5p_{3/2}$, f=3, $m_f=\frac{3}{2}$ bei einer Frequenz von $f=384,228\,\mathrm{THz}$ ($\lambda=780,241\,\mathrm{nm}$) um Δ blauverstimmt. Die Verstimmung gewährleistet eine hinreichend starke Anregungsstärke des Zwei-Photonen-Übergangs bei geringen Verlusten durch Absorption auf dem unteren Ein-Photonen-Übergang. Eine Begründung der Wahl des Zwischenniveaus ist in [89] durch Berechnung der Rabi-Frequenzen der möglichen Übergänge gegeben. Für die Frequenz des blauen Lasers ergibt sich dann eine Frequenz im Bereich von $f = 622,554\,\mathrm{THz}$ ($\lambda = 481,549\,\mathrm{nm}$). Die Polarisation des Anregungslichts wird durch die Auswahlregeln [77] als σ^+ für das rote Licht und σ^- für das blaue Licht festgelegt.

Im Experiment tritt neben der erwarteten Linie des Übergangs in den $n\,s_{1/2},\,m_j=\frac{1}{2}$ zusätzlich auch eine schwächere rotverschobene Linie auf, die auf eine Anregung in das magnetische Unterniveau mit $m_j=-\frac{1}{2}$ zurückzuführen ist. Dieser Effekt lässt sich durch das Auftreten anderer Polarisationskomponenten im verwendeten Anregungslicht, bedingt zum einen durch eine nicht perfekte Justage, zum anderen durch die Inhomogenität des Magnetfeldes, erklären. Letztere führt dazu, dass die Quantisierungsachse nur exakt entlang der langen Achse der Falle parallel zum eingestrahlten Licht ist. Eine eingehende Diskussion der dadurch alternativ auftretenden Übergänge findet sich in [39].

6.2.2 Anregungslicht

Der Aufbau zur Erzeugung des Laserlichts bei Wellenlängen von $480\,\mathrm{nm}$ und $780\,\mathrm{nm}$ zur Rydberg-Anregung wurde bereits ausführlich in Abschnitt 3.1 beschrieben. Das Licht beider Wellenlängen wird unabhängig über optische Fasern zur Vakuumkammer geführt. Dort wird die Polarisation durch jeweils eine $\lambda/2$ - und eine $\lambda/4$ -Wellenplatte so angepasst, dass in die Vakuumkammer perfekt rechts- (rot) bzw. links-zirkulares (blau) Licht eingestrahlt wird. Dadurch werden eventuell auftretende Polarisationsdrehungen an Spiegeln und Linsen kompensiert.

¹Die hier untersuchten Rydberg-Zustände im Bereich von n=30-40 weisen nur eine vernachlässigbare Hyperfeinstrukturaufspaltung im Bereich weniger $10 \, \text{kHz}$ auf [70], da diese mit $1/\overline{n}^3$ skaliert [77].

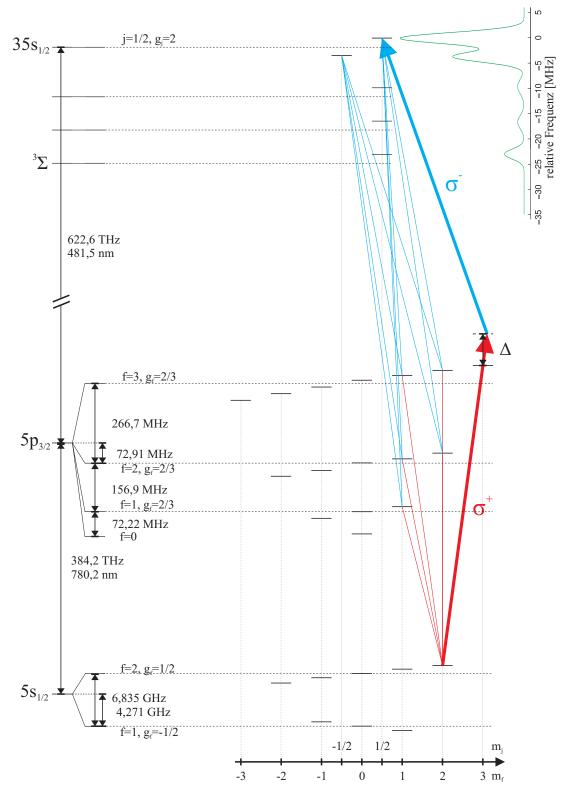


Abb. 6.2: Termschema der für die Rydberg-Anregung in den relevanten Zuständen am Beispiel des 35s. [44][89] Neben dem erwünschten Zwei-Photonen-Übergang sind weitere Übergänge, die durch die unvollständige Polarisation ermöglicht werden und zur Besetzung der $m_j = -\frac{1}{2}$ -Komponente des Rydberg-Zustandes führen, eingezeichnet. Das rechts oben abgebildete Spektrum ergibt sich beim Durchfahren der Frequenz des Anregungslichts über die eingezeichneten molekularen und atomaren Rydberg-Zustände. Die Abbildung ist nicht maßstabsgetreu.

Anschließend werden beide Strahlen überlappt und entlang der langen Achse der Atomwolke parallel in die Kammer eingestrahlt. Das rote Licht wird hierbei auf einen $1/e^2$ -Radius von 0,5 mm kollimiert, während das blaue Licht auf einen $1/e^2$ -Radius von $40\,\mu m$ am Ort der Atome fokussiert wird. Die Leistung des blauen Lichts vor der Kammer betrug bei den ersten Experimenten etwa $50\,m W$ und konnte im Verlauf dieser Arbeit durch bessere Justage und die Verwendung kürzerer optischer Fasern auf über $80\,m W$ erhöht werden. Die Leistung des roten Lasers dagegen wird durch Filter auf den Bereich weniger μW abgeschwächt, um eine erhöhte Heizrate durch resonante Streuung zu vermeiden.

6.3 Nachweis von Rydberg-Atomen und Molekülen

6.3.1 Funktionsprinzip

Der Nachweis der Rydberg-Atome und Moleküle erfolgt durch Feldionisation und anschließender Detektion der dabei entstandenen Ionen. Dazu wird anschließend an den Rydberg-Anregungspuls ein variables elektrisches Feld in der Größenordnung von typischerweise 400 V/cm angelegt, das die entstandenen Rydberg-Atome ionisiert und gleichzeitig in Richtung des Detektors beschleunigt. Hierfür wird eine Multikanalplatte in Chevron-Anordnung (multichannel plate - MCP)³ verwendet. Diese besteht aus zwei hintereinander angeordneten, jeweils 0,5 mm dicken Bleiglasplatten (effektiver Durchmesser 8,5 mm), die von jeweils ca. 10⁶ parallelen Kanälen mit einem Durchmesser von jeweils 10 µm durchsetzt sind (Abstand der Kanalachsen 12 µm, relativ zur Achse um 12° verkippt). Zwischen Vorder- und Rückseite dieser Platten wird eine Spannungsdifferenz in der Größenordnung von 2 kV angelegt. Teilchen, die mit hinreichender Energie auf die Vorderseite eines Kanals treffen, lösen aus den Wänden Sekundärelektronen aus, die durch die Potentialdifferenz auf eine Anode an der Rückseite der Platten beschleunigt werden. Durch die Sekundärionisation tritt hierbei eine lawinenartige Verstärkung auf. Der Ladungspuls auf der Anode wird dann über einen Strom-Spannungs-Wandler von einer Digitalisierungskarte⁴ registriert. Die Anzahl N_{Ryd} der Rydberg-Atome wird mit einem MATLAB-Skript durch Vergleich der Fläche F der Spannungspulse mit einem Referenzsignal bestimmt (siehe Abbildung 6.3). Die Anzahl der Rydberg-Atome ist proportional zur Fläche des detektierten Signals:

$$F = \frac{1}{\kappa} \cdot N_{Ryd} \tag{6.1}$$

Die zur Auswertung benötigte Proportionalitätskonstante κ wurde bereits durch Rydberg-Anregung und Atomzahlmessung mittels Absorptionsbildern durchgeführt [39]. Demnach beträgt das Verhältnis der Anzahl N_{Ryd} von Rydberg-Atomen in der Kammer zur Pulsfläche F:

$$\kappa = \frac{N_{Ryd}}{F} = (3.9 \pm 0.6) \cdot 10^{10} \frac{\text{Atome}}{\text{Vs}}$$
(6.2)

²In einer Messung im letzten Abschnitt 7.4 erfolgt die Einstrahlung dagegen antiparallel, um die auftretende Doppler-Verbreiterung zu reduzieren.

³El-Mul Typ B012VA, Vertrieb durch tectra GmbH

⁴zunächst National Instruments NI 5102, im Rahmen dieser Arbeit ersetzt durch Simultanmesskarte PCI-9812 von ADLINK Technology, EU-Vertrieb über DAQDATA GmbH

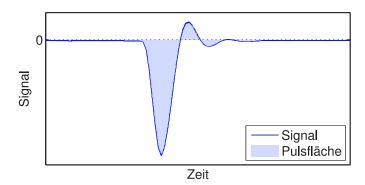


Abb. 6.3: Form eines Spannungspulses an der Digitalisierungskarte und Pulsfläche F (Erklärung siehe Abschnitt E.1.1)

In diese Proportionalitätskonstante gehen verschiedene Parameter ein (siehe auch das Schema in Abbildung 6.4):

Die Rydberg-Atome werden ionisiert und auf die Vorderseite der MCP beschleunigt, wo sie Elektronen aus der MCP auslösen. Die Anzahl dieser Primärelektronen ist über die Detektionseffizienz ϵ und die Elementarladung $e=1,6022\cdot 10^{-19} \mathrm{C}$ proportional zur Anzahl der Rydberg-Atome. Für die Gesamtladung der Primärelektronen Q_{in} auf der Vorderseite der MCP gilt demnach:

$$Q_{in} = \epsilon \cdot e N_{Ryd} \tag{6.3}$$

Diese Ladung wird in der MCP durch lawinenartige Sekundärionisation um den Faktor g_{MCP} verstärkt, sodass auf die Anode der MCP die Ladung Q_{out} auftrifft:

$$Q_{out} = g_{MCP} \cdot Q_{in} \tag{6.4}$$

Diese Ladung fließt über einen Widerstand R^5 und eine Schaltung mit Verstärkung g_S ab; man erhält also ein Spannungssignal:

$$U(t) = R \cdot I(t) = g_S R \cdot \frac{dQ_{out}}{dt}(t)$$
(6.5)

Die Pulsfläche F ergibt sich dann als zeitliches Integral über die Spannung U(t) (siehe Abbildung 6.3):

$$F = \int_{t_a}^{t_e} |U(t)| dt$$

$$= g_S R \cdot \int_{t_a}^{t_e} \left| \frac{dQ_{out}}{dt} \right| dt$$

$$= g_S R \cdot Q_{out}$$
(6.6)

Einsetzen der Gleichungen (6.3) und (6.4) in (6.6) liefert den linearen Zusammenhang zwischen Pulsfläche F und Rydberg-Atomzahl N_{Ryd} :

$$F = g_S R \cdot g_{MCP} \cdot \epsilon \cdot e N_{Ryd} \equiv \frac{1}{\kappa} \cdot N_{Ryd}$$
 (6.7)

⁵exakter Wert nicht bekannt, da als Potentiometer ausgeführt

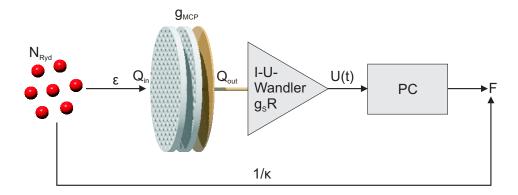


Abb. 6.4: Schematische Darstellung des Zusammenhangs zwischen Anzahl der Rydberg-Atome N_{Ryd} und Pulsfläche F bei der selbstgebauten Schaltung: Die Rydberg-Atome werden feldionisiert, auf die Vorderseite der MCP beschleunigt und lösen dort Primärelektronen aus; die Effizienz dieser Prozesse beträgt zusammengefasst ϵ . Die Ladung $Q_{in} = \epsilon e N_{Ryd}$ wird durch lawinenartige Sekundärionisation in der MCP um den Faktor g_{MCP} verstärkt und durch die Schaltung aus Strom-Spannungswandler und Verstärker in einen Spannungspuls U(t) umgewandelt, der dann am PC zur Pulsfläche F aufintegriert wird. Die Proportionalitätskonstante zwischen Rydberg-Atomzahl und

6.3.2 Weitergehende Charakterisierung der MCP

Pulsfläche ist $\frac{1}{\kappa}$.

Die bisherige Kalibration stellt lediglich einen Zusammenhang zwischen den Rydberg-Atomen in der Kammer und dem gemessenen Spannungssignal her. Unbekannt bleibt hierbei insbesondere, welche Anteile die Detektionseffizienz ϵ , die Verstärkung g_{MCP} sowie die Verstärkung g_S und der Widerstand R des Strom-Spannungs-Wandlers am Gesamtsignal haben. Für die Verstärkung der MCP wird vom Hersteller mit $g_{MCP,min}=5\cdot 10^6$ bei einer angelegter Spannung von $2\,\mathrm{kV}$ lediglich eine Untergrenze für voll funktionsfähige Exemplare angegeben.

Um die unbekannten Größen zu bestimmen wurden Pulsflächenhistogramme des verwendeten Aufbaus aus MCP mit der verwendeten selbstgebauten Schaltung aus Strom-Spannungs-Wandler und Verstärker (siehe [90]) erstellt. Die Primärelektronen auf der Vorderseite der MCP wurden hierbei durch Photoemission bei Bestrahlung der MCP in der Kammer mit einer handelsüblichen UV-Lampe⁶ zur Polymerisierung von UV-Klebstoffen erzeugt. Diese Messung wurde dann wiederholt, wobei die selbst gebaute Schaltung durch einen kommerziellen Ladungsvorverstärker⁷ mit nachgeschaltetem pulsformenden Verstärker⁸ ersetzt wurde. Ersterer wandelt einen eingehenden Ladungspuls Q in ein dazu proportionales Spannungssignal U um, wobei die Proportionalitätskonstante laut Datenblatt $c_V = \frac{U}{Q} = 1,5\,\frac{\text{mV}}{\text{pC}}$ beträgt. Letzterer erzeugt aus einem beliebig geformten Spannungspuls einen Gauss-förmigen Puls konstanter Breite, dessen Höhe proportional zur Höhe des Eingangspulses ist (siehe Abbildung 6.5). Für die Verstärkung g_{PF} des Pulsformers konnten hierbei die Werte 10^2 und 10^3 gewählt werden. Der Zusammenhang zwischen Rydberg-Atomzahl und Pulsfläche bei dieser Schaltung ist in Abbildung 6.6 schematisch dargestellt.

⁶Jovident CU-80: Wellenlängenbereich 380 − 510 nm, Leistung 300 mW

⁷Cremat CR-113 charge sensitive preamplifier

 $^{^8\}mathrm{Cremat}$ CR-200-250ns Gaussian shaping amplifier, Verstärkung $g_{PF}=10^2$ oder 10^3

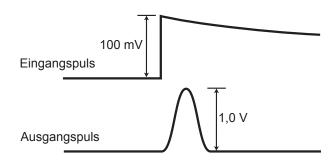


Abb. 6.5: Skizze zur Funktion des pulsformenden Verstärkers (für Verstärkung $g_{PF} = 10$, Datenblatt CR-200)

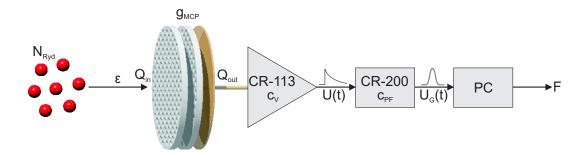


Abb. 6.6: Zustandekommens der Pulsfläche F bei der kommerziellen Schaltung: Der Zusammenhang zwischen Rydberg-Atomzahl N_{Ryd} und Ladung Q_{out} an der Anode der MCP ist bei beiden Schaltungen identisch (siehe Abbildung 6.4). Die Ladung Q_{out} wird durch den ladungsempfindlichem Vorverstärker CR-113 in ein Spannungssignal U(t) umgewandelt, das der pulsformende Verstärker CR-200 in Gauß-förmige Spannungspulse umwandelt. Diese werden dann am PC zur Pulsfläche F aufintegriert.

Aus den so erhaltenen Daten wurden mit Hilfe verschiedener MATLAB-Skripte Histogramme der Pulsflächen erstellt. Die hierzu nötige Vorgehensweise zur Aufbereitung und Auswertung der Daten ist im Anhang E.1 ausführlich beschrieben.

6.3.3 Bestimmung der Pulsfläche eines Einzelereignisses

Da sich bei beiden Schaltungen das Signal nicht deutlich vom Rauschen absetzte, konnte die Pulsfläche, die durch ein einzelnes Photon auf der Vorderseite der MCP ausgelöst wird, nicht einfach als Maximum des Pulsflächenhistogramms abgelesen werden. Deshalb wurden die erhaltenen Histogramme mit theoretisch zu erwartenden Verteilungen verglichen.

Die Verteilung der Pulshöhen setzt sich aus der ursprünglichen Wahrscheinlichkeitsverteilung der Photonen, die auf die MCP treffen, der Wahrscheinlichkeit der Photoionisation auf der Vorderseite der MCP und der Antwortfunktion der MCP selbst zusammen. Es kann angenommen werden, dass die Häufigkeitsverteilung der Photoelektronen als Faltung der Poisson-Verteilung der Photonenzahl und dem binären Zufallsprozess der Photoionisation einer Poisson-Verteilung folgt [91][92]:

$$P_{\lambda}(n) = \frac{\lambda^n}{n!} e^{-\lambda} \tag{6.8}$$

Hierbei ist n ganzzahlig und λ der Erwartungswert der Verteilung der Photoelektronen, der die mittleren Anzahl der auf die MCP auftreffenden Photonen und die Quanteneffizienz der Photoemission beinhaltet. Die Antwort der MCP auf n auf die Vorderseite auftreffende Photonen ist ebenso eine Poisson-Verteilung, wobei der Erwartungswertes jeweils dem n-fachen des Erwartungswert des Einphotonenereignisses entspricht [92]. Die Verteilung der Ladung, die auf die Anode der MCP trifft, ergibt sich dann als Summe über alle n-Photonenereignisse, wobei die Verteilung der Mehrphotonenereignisse die Einhüllende darstellt. Da die Pulsfläche F nach Gleichung (6.7) proportional zur Ladung an der Anode ist, folgt also für die Pulsflächenverteilung:

$$f(x) = a \sum_{n} \frac{\lambda^{n}}{n!} e^{-\lambda} \left[\frac{(nF_0)^{x}}{x!} e^{-nF_0} \right]$$
 (6.9)

Hierbei ist F_0 der Erwartungswert für die Pulsfläche eines Einzelereignisses und a ein konstanter Faktor, in den die Detektionseffizienz und die Verstärkungen von MCP und Strom-Spannungs-Wandler mit eingehen. Die ganzzahlige Variable x gibt die Nummer des Flächenintervalls im Histogramm an. Diese Gleichung wurde über die Amplitude a und den Erwartungswert λ der Verteilung der Photoelektronen an die gemessenen Pulsflächenhistogramme angepasst, wobei für den Erwartungswert F_0 der Pulsflächen der Einzelereignisse verschiedene Werte gewählt wurden. Hierbei erwies es sich als mehr als ausreichend, Mehrphotonenereignisse nur bis einschließlich n=20 zu berücksichtigen. Dadurch ließ sich der Erwartungswert für die Pulsfläche F_0 eines Einzelereignisses und jeweils eine obere und untere Grenze bestimmen.

Selbstgebaute Schaltung

Die beste Übereinstimmung mit dem gemessenen Histogramm ist in Abbildung 6.7 gezeigt. Zusammen mit sinnvollen Ober- und Untergrenzen (siehe Anhang E.2.2) erhält man als Erwartungswert für die Pulsfläche eines Einzelereignisses:

$$F_{0,a} = (1,35 \pm 0,3) \,\text{nVs} \tag{6.10}$$

Kommerzielle Schaltung

Entsprechend erhält man für die kommerzielle Schaltung bei den Verstärkungen 10^2 und 10^3 (siehe Abbildungen 6.8a bzw. 6.8b sowie Anhang E.2.2):

Verstärkung 10²:
$$F_{0,n2} = \left(7.1^{+2.9} / _{-2.6}\right) \text{ nVs}$$
 (6.11)

Verstärkung 10³:
$$F_{0,n3} = \left(60^{+35}/_{-17}\right) \text{ nVs}$$
 (6.12)

Innerhalb der Fehlergrenzen ist die Pulsfläche eines Einzelereignisses bei der Verstärkung 10^3 erwartungsgemäß um den Faktor 10 größer als bei der Verstärkung 10^2 . In beiden Fällen liegen die Einzelereignisse im Rauschen, weshalb dieser Aufbau verworfen wurde und weiterhin die selbstgebaute Schaltung verwendet wird.

Die zugehörige Pulshöhe erhält man über Gleichung (E.2):

Verstärkung 10²:
$$U_{0,n2} = \left(12.6^{+5.0}/_{-5.6}\right) \text{ mV}$$
 (6.13)

Verstärkung
$$10^3$$
: $U_{0,n3} = (106 \pm 60) \,\text{mV}$ (6.14)

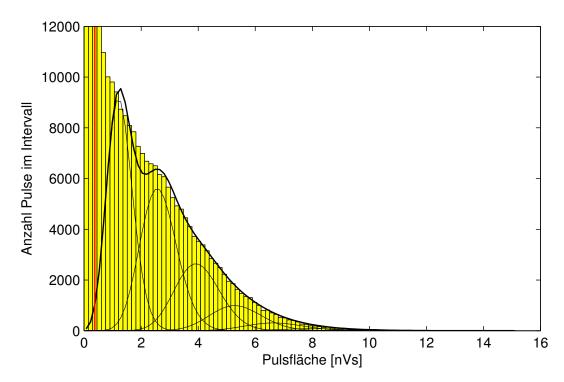


Abb. 6.7: Pulsflächenhistogramm für die selbstgebaute Schaltung (vgl. Abbildung E.2) und theoretisch erwarteter Verlauf (durchgezogene Linie). Zusätzlich eingezeichnet ist die Poissonförmige Antwort der MCP auf die n-Photonenereignisse als dünne Linien. Die Position des Schwellwertes $0,374\,\mathrm{nVs}$ ($\widehat{=}1,0\,\mathrm{mV}$) für die Pulserkennung ist als vertikale rote Linie eingezeichnet.

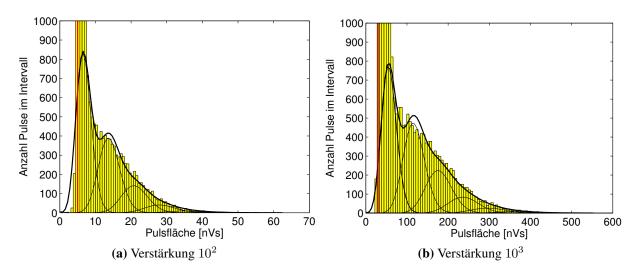


Abb. 6.8: Pulsflächenhistogramme für die kommerzielle Schaltung bei verschiedenen Verstärkungen (vgl. Abbildung E.5) und theoretisch erwarteter Verlauf (durchgezogene Linie). Zusätzlich eingezeichnet ist die Poisson-förmige Antwort der MCP auf die *n*-Photonenereignisse als dünne Linien. Die Position des Schwellwertes bei 0,626 nVs bzw. 5,529 nVs (≘10 mV bzw. 60 mV) für die Pulserkennung ist jeweils als vertikale rote Linie eingezeichnet.

6.3.4 Bestimmung der Verstärkung der MCP

Die Pulshöhe U ist proportional zur Ladung Q_{in} , die auf die Vorderseite der MCP trifft: Für die kommerzielle Schaltung ist die Proportionalitätskonstante hierbei das Produkt aus der Verstärkung g_{MCP} der MCP, dem Konversionsfaktor $c_V=1,5\frac{\text{mV}}{\text{pC}}$ des ladungsempfindlichen Vorverstärkers und der Verstärkung $g_{PF}=10^2$ bzw. 10^3 des Pulsformers 9 :

$$U = g_{MCP} \cdot g_{PF} \cdot c_V \cdot Q_{in} \tag{6.15}$$

Da die Ladung auf der Vorderseite bei einem Einzelereignis genau eine Elementarladung $e=1,6022\cdot 10^{-19} {\rm C}$ beträgt, lässt sich damit die Verstärkung g_{MCP} der MCP berechnen:

$$g_{MCP} = \frac{U_0}{g_{PF} \cdot c_V \cdot e} \tag{6.16}$$

Da sich für die Verstärkung $g_{PF}=10^2$ der Erwartungswert der Pulshöhe eines Einzelereignisses besser eingrenzen ließ, werden diese Werte verwendet und man erhält:

$$q_{MCP} = (5.2 \pm 2.3) \cdot 10^5 \tag{6.17}$$

Dieser Wert liegt etwa eine Größenordnung unter dem vom Hersteller angegebenen Wert für eine voll funktionsfähige MCP, was sich vermutlich auf natürliche Alterungsprozesse zurückführen lässt.

6.3.5 Charakterisierung der selbstgebauten Schaltung

Mit den gewonnenen Daten lässt sich nun das Produkt von Verstärkung g_S und Widerstand R der selbstgebauten Schaltung bestimmen, das die Proportionalitätskonstante zwischen Ladung hinter der MCP Q_{out} und Pulsfläche F darstellt (vgl. Gleichung (6.7)):

$$g_S R = \frac{F_a}{Q_{out}} = \frac{F_a}{g_{MCP}Q_{in}} \tag{6.18}$$

Mit der mit Hilfe der kommerziellen Schaltung über Gleichung (6.16) bestimmten Verstärkung der MCP folgt für ein Einzelereignis:

$$g_S R = \frac{F_{a,0}}{\frac{U_{n,0}}{g_{PF} \cdot c_V \cdot e}} e = g_{PF} \cdot c_V \frac{F_{a,0}}{U_{n,0}}$$
(6.19)

Einsetzen der Werte liefert:

$$g_S R = \left(16^{+19} / _{-7}\right) k\Omega$$
 (6.20)

⁹Datenblatt Cremat CR-113 bzw. CR-200

6.3.6 Bestimmung der Detektionseffizienz

Mit Hilfe der Kalibration in [39] (siehe Gleichung (6.2)) lässt sich nun auch die Detektionseffizienz ϵ für die Rydberg-Atome, also der Anteil an Rydberg-Atomen, die ein Ereignis an der MCP auslösen, bestimmen. Es gilt nach dieser Definition:

$$F_{Rud} = \epsilon N_{Rud} F_0 \tag{6.21}$$

Nach [39] ist das Verhältnis von Pulsfläche F_{Ryd} und Rydberg-Atomzahl N_{Ryd} :

$$\kappa = \frac{N_{Ryd}}{F_{Ryd}} = (3.9 \pm 0.6) \frac{1}{\text{Vs}}$$
(6.22)

Damit folgt:

$$\epsilon = \frac{1}{\kappa F_0} \tag{6.23}$$

Mit der oben bestimmten mittleren Pulsfläche $F_{0,a}=(1.35\pm0.3)\,\mathrm{nVs}$ für ein Einzelereignis bei der selbstgebauten Schaltung erhält man die Detektionseffizienz:

$$\epsilon = (1.9 \pm 0.7) \% \tag{6.24}$$

6.4 Einfluss des Offset-Magnetfeldes der Falle

Wie bereits in Abschnitt 6.1 erwähnt, muss bei der Interpretation der gemessenen Spektren das Magnetfeld der Kleeblatt-Falle berücksichtigt werden, das aufgrund des Offset-Feldes B_0 auch im Fallenzentrum nicht verschwindet. In diesem Abschnitt soll erläutert werden, wie aus den experimentell bestimmten Spektren Größen wie die Bindungsenergien verschiedener Molekülzustände bestimmt werden können. Dazu wird mit Absicht die in diesem Fall etwas umständliche Basis der Molekülzustände herangezogen, um zu zeigen, dass diese Betrachtungsweise auf die selben Ergebnisse führt wie ein einfacheres Bild, das die Atome in den Rydberg-Molekülen separat behandelt (siehe dazu den letzten Abschnitt in 6.4.2).

6.4.1 Rydberg-Atome

Für einen atomaren Zustand mit magnetischer Quantenzahl m und Landé-Faktor g lautet die Energieverschiebung durch den Zeeman-Effekt mit dem Bohrschen Magneton $\mu_B=9,2740\cdot 10^{-24}\,{\rm J}_{\rm T}$ [77]:

$$E_{ZB} = q\mu_B B_0 m \tag{6.25}$$

Die Anregung findet aus dem Hyperfeinniveau $f=2, m_f=2$ des Grundzustandes $5s_{1/2}$ statt, das einen g_f - Faktor von $\frac{1}{2}$ aufweist [44]. Da das Anregungslicht nicht vollständig σ^+ -polarisiert ist (siehe Abschnitt 6.2.1) werden beide magnetischen Unterniveaus $m_j=\pm\frac{1}{2}$ des Rydberg-Zustandes $n\,s_{1/2}$, mit einem Landé-Faktor von $g_j=2$ besetzt [89]. Die magnetfeldbedingte Verschiebung der zugehörigen Linienpositionen im Spektrum ergibt sich aus der Differenz der

Zeeman-Energien von Endzustand und Ausgangsniveau. Im Fall der $m_j=+\frac{1}{2}$ -Komponente heben sich diese gerade auf, da das Produkt von g-Faktor und magnetischer Quantenzahl m beider Zustände übereinstimmt; diese Linie ist somit magnetfeldunabhängig ($\Delta f_{\uparrow,B}=0$). Die Position des Zustandes mit $m_j=-\frac{1}{2}$ ist dagegen im Magnetfeld B_0 verschoben um:

$$h\Delta f_{\downarrow,B} = 2\mu_B B_0 \cdot \left(-\frac{1}{2}\right) - \frac{1}{2}\mu_B B_0 \cdot 2 = -2\mu_B B_0$$
 (6.26)

Für ein typisches Offsetfeld von $B_0=80\,\mu\mathrm{T}$ ergibt sich somit eine Verschiebung von etwa $\Delta f_{\perp,B}=-2,4\,\mathrm{MHz}.$

6.4.2 Rydberg-Moleküle

Bei der Photoassoziation von zweiatomigen Rydberg-Molekülen sind im Prinzip nach Abschnitt 5.2.3 zwei verschiedene elektronische Zustände möglich, die sich in der Orientierung des Gesamtelektronenspins unterscheiden. Das Offset-Magnetfeld B_0 führt im Experiment dazu, dass die Kopplung des Elektronenspins \vec{S} und des Hanteldrehimpulses aufgebrochen wird. An Stelle der Projektion Σ des Spins \vec{S} auf die Molekülachse ist nun dessen Projektion M_S auf die Feldrichtung von \vec{B}_0 eine gute Quantenzahl¹⁰. Entsprechend beziehen sich die Basiszustände in Gleichung (5.46) nun auf die Orientierung im Magnetfeld. Da die Atome in der Magnetfalle vollständig im Zustand $5s_{1/2},\,m_f=2$ (in dem $m_s=+\frac{1}{2}$ ist) spinpolarisiert sind, und der Elektronenspin des Grundzustandsatoms im Rydberg-Molekül bei der Photoassoziation nicht beeinflusst werden kann, ist im Experiment nur die Anregung des Zustandes ${}^3\Sigma_1 = \uparrow \uparrow$ möglich. Da, wie bereits erwähnt, das Offset-Magnetfeld B_0 der Falle hinreichend stark ist, sodass die Kopplung des Spins \vec{S} an das äußere Magnetfeld stärker ist als an den Hanteldrehimpuls, tritt bei den Molekülzuständen an Stelle des molekularen Zeeman-Effekts [93] der Paschen-Back-Effekt auf. Dieser führt für lineare Moleküle ohne elektronischen Bahndrehimpuls \vec{L} in Abhängigkeit von der Quantenzahl M_S der Projektion des gesamten Elektronenspins \vec{S} auf die Richtung des äußeren Magnetfeldes \vec{B}_0 zu einer Energieverschiebung von [78]:

$$E_{Z,PB} = 2\mu_B B_0 M_S \tag{6.27}$$

Für $L \neq 0$ würde zu dem angegebenen Ausdruck noch ein Term hinzutreten, der zur Aufspaltung der Zustände mit unterschiedlicher Projektion von \vec{L} auf die Molekülachse und die Feldrichtung führt [78]. Im schwachen Magnetfeld würde die Kopplung des Gesamtspins \vec{S} und des Hanteldrehimpuls zum Gesamtdrehimpuls J zu einer Zeeman-Aufspaltung proportional zu $\frac{M}{J(J+1)}$ führen [78]. Die Aufspaltung der Zustände mit unterschiedlicher Projektion M des Gesamtdrehimpulses \vec{J} auf die Feldrichtung nimmt dann mit wachsender Quantenzahl J ab, da sich das nun molekülfeste magnetische Moment durch die zunehmende Rotation zu Null mittelt. Diese beiden Fälle sind jedoch für das Experiment nicht relevant.

Die Verschiebung der Position der experimentell beobachteten Linie des $^3\Sigma$, $M_S=1$ -Zustandes ergibt sich somit als die Differenz der Paschen-Back-Energie des Molekülzustands

¹⁰Folglich ist auch die in Abschnitt 5.2.3 eingeführte Projektionsquantenzahl $\Omega = \Lambda + \Sigma$, die im hier betrachteten Spezialfall $\Lambda = 0$ gleich Σ ist, keine gute Quantenzahl mehr.

und der Zeeman-Energien der beiden Atome im Ausgangszustand (Grundzustand $5s_{1/2}$ mit $f=2,\ m_f=2$) im Offset-Feld B_0 :

$$h\Delta f_{\uparrow\uparrow,B} = 2\mu_B B_0 \cdot 1 - 2\left(\frac{1}{2}\mu_B B_0 \cdot 2\right) = 0 \tag{6.28}$$

Da die Linienpositionen sowohl der Rydberg-Atome mit $m_j = +\frac{1}{2}$ und der sichtbaren Moleküllinie mit $M_S = 1$ magnetfeldunabhängig sind, ergibt sich die Bindungsenergie des zweiatomigen Rydberg-Moleküls somit einfach als der spektrale Abstand dieser beiden Linien. Eine Feldkorrektur wie in [25] angegeben ist somit also nicht nötig. Das selbe gilt für angeregte vibronische Molekülzustände.

Bei den dreiatomigen Rydberg-Molekülen sind nach Abschnitt 5.2.3 im Prinzip ebenfalls zwei elektronische Zustände möglich, von denen tatsächlich aber aus den selben Gründen wieder nur der Zustand $\uparrow\uparrow\uparrow$ mit maximaler Projektion M_S des Elektronenspins \vec{S} auf die Feldrichtung im Experiment angeregt werden kann. Die spektrale Position der zugehörigen Linie ist unter Berücksichtigung des Paschen-Back-Effekts der Moleküle nach Gleichung (6.27) und des Zeeman-Effekts der Grundzustandsatome nach Gleichung (6.25) wieder magnetfeldunabhängig:

$$h\Delta f_{\uparrow\uparrow\uparrow,B} = 2\mu_B B_0 \cdot \frac{3}{2} - 3\left(\frac{1}{2}\mu_B B_0 \cdot 2\right) = 0 \tag{6.29}$$

Somit ergibt sich auch die Bindungsenergie der Trimer-Moleküle genauso wie die der zweiatomigen Molekülen einfach aus der Differenz der gemessenen spektralen Positionen der atomaren Rydberg-Linie mit $m_j=+\frac{1}{2}$ und der beobachteten molekularen Linie.

Abschließend sei darauf hingewiesen, dass es zur Bestimmung der Magnetfeldabhängigkeit der Moleküllinien im Spektrum an Stelle der oben geführten Diskussion anhand von Molekülzuständen ebenso zulässig ist, das Rydberg-Atom separat zu betrachten. Da nämlich bei der Photoassoziation der hier betrachteten weitausgedehnten Rydberg-Moleküle die beteiligten Grundzustandsatome ihren elektronischen Zustand nicht ändern, können diese in der Betrachtung weggelassen werden. Die spektrale Verschiebung der Moleküllinien im externen Magnetfeld ergibt sich dann aus dem Zeeman-Effekt des Rydberg-Atoms, der dem des ungebundenen Rydberg-Atoms entspricht. Der Vergleich der für die Molekülzustände erhaltenen Ergebnisse mit dem atomaren Zeeman-Effekt des isolierten Rydberg-Atoms in Abschnitt 6.4.1, zeigt, dass dies tatsächlich auch der Fall ist. Das Fehlen einer magnetfeldabhängigen Moleküllinie, die der atomaren Rydberg-Linie mit $m_j=-\frac{1}{2}$ entsprechen würde, ist dabei darauf zurückzuführen, dass aufgrund der dann positiven Streulänge a(0) und der somit repulsiven Wechselwirkung kein gebundener Zustand mit antiparallelen Elektronenspins existiert (siehe Abschnitt 5.2.3) und die Grundzustandsatome vollständig spinpolarisiert sind.

7 Spektroskopische Ergebnisse

In diesem Kapitel werden schließlich die spektroskopischen Ergebnisse dargestellt, die parallel zu der Verbesserung des Lasersystems erzielten wurden. So wurde zum erstmaligen Nachweis der dreiatomigen weitausgedehnten Rydberg-Moleküle in Abschnitt 7.1 noch der alte Aufbau nach 3.1.1 verwendet, während in die nachfolgenden Experimente zur Bestimmung der Lebensdauer verschiedener atomarer und molekularer Zustände (Abschnitt 7.2) bereits erste Verbesserungen, vor allem hinsichtlich der Rydberg-Detektion, eingegangen sind. Die Untersuchung des Stark-Effekts (Abschnitt 7.3) wurde dann mit dem vollständig optimierten Lasersystem durchgeführt. Im letzten Abschnitt 7.4 wird schließlich die im Rahmen dieser Arbeit erzielte Verbesserung der Auflösung anhand verschiedener Spektren demonstriert. Insbesondere wird gezeigt, dass der verwendete Aufbau zur Photoassoziationsspektroskopie nun Doppler-limitiert ist.

7.1 Nachweis von dreiatomigen Rydberg-Molekülen

Wie im Abschnitt 5.2.2 aufgeführt, lassen einfache theoretische Überlegungen nach der erstmaligen Beobachtung von zweiatomigen Molekülen [25] auch die Existenz gebundener Zustände aus zwei Grundzustandsatomen und einem Rydberg-Atom erwarten. Die Bindungsenergie sollte dabei in erster Näherung unter Vernachlässigung der Wechselwirkung der beiden Grundzustandsatome beim doppelten Wert der zweiatomigen Moleküle liegen. Das in Abschnitt 5.2.2 behandelte einfache theoretische Modell liefert somit eine Energie um $-38,4\,\mathrm{MHz}$, während die Verdopplung der experimentell [25] bestimmten Bindungsenergie der Dimere einen Wert von $(-45,2\pm1,0)\,\mathrm{MHz}$ erwarten lässt. Mit dieser Erwartung wurden Spektren über einen weiteren Frequenzbereich aufgenommen. Da zu diesem Zeitpunkt die Anzahl aufnehmbarer Punkte noch durch die alte Digitalisierungskarte (siehe 6.3) auf maximal 51 begrenzt war, wurde das in Abbildung 7.1 gezeigten Spektrum durch Zusammensetzen zweier überlappender Frequenzbereiche anhand der Position der Dimer-Linie gewonnen. Nach Mittelung über 50 Messungen tritt tatsächlich bei

$$\frac{1}{h}E_{B,Trimer} = (-45.5 \pm 0.8) \text{ MHz}$$
 (7.1)

eine Linie aus dem Rauschen hervor. Da der Nullpunkt der Frequenzskala in Abbildung 7.1 bei der Linie des atomaren Rydberg-Zustandes mit $m_j=+\frac{1}{2}$ gewählt ist, stellt dieser Wert, wie in Abschnitt 6.4 ausführlich dargelegt, die Bindungsenergie des Moleküls dar. Innerhalb der Fehlergrenzen entspricht dies erwartungsgemäß dem Zweifachen der Bindungsenergie des Dimerzustands, die in dieser Messung bei

$$\frac{1}{h}E_{B,Dimer} = (-22.8 \pm 0.5) \text{ MHz}$$
 (7.2)

liegt. Dieser Wert stimmt wiederum mit dem Ergebnis $(-22,4\pm0,5)$ MHz aus früheren Messungen [25] überein. Die Abweichung von dem einfachen theoretischen Modell in Abschnitt 5.2.2 lässt sich einerseits durch die dort verwendeten relativ groben Näherungen erklären; eine zusätzliche Berücksichtigung der p-Wellenstreuung [67] dürfte hierbei zu einer Verbesserung der Ergebnisse führen. Andererseits hängt das Ergebnis der Berechnungen stark von der Streulänge a(0) des e^--Rb -Stoßes ab, für die bislang nur theoretisch berechnete Werte existieren. Ersetzt man die in Abschnitt 5.2.2 verwendete Streulänge a(0)=-16,1 a_0 durch einen Wert von $(18,0\pm0,5)$ a_0 , so stimmen die theoretisch erhaltenen Werte für die Bindungsenergie des Molekülgrundzustands der Dimere und Trimere mit den experimentellen Ergebnissen überein. Mit diesem Wert lassen sich dann ebenfalls Messungen bei höheren Quantenzahlen [25][74] reproduzieren.

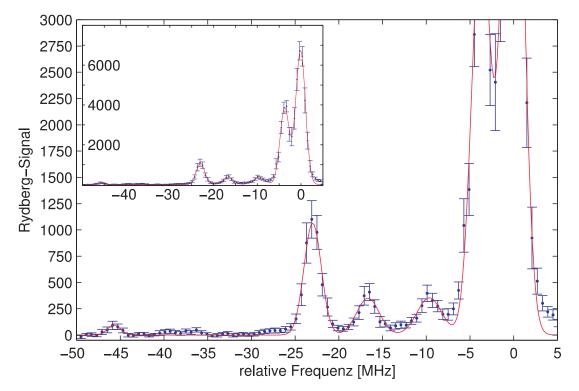


Abb. 7.1: Spektrum des 35s-Rydberg-Zustandes (v.l.n.r.): dreiatomige und zweiatomige Moleküle im Grundzustand, zwei angeregte zweiatomige Molekülzustände, $m_j = -\frac{1}{2}$ und $+\frac{1}{2}$ -Komponenten der freien Rydberg-Atome. Zum Größenvergleich ist in der Einfügung das volle Spektrum dargestellt. Die Linie der $m_j = +\frac{1}{2}$ -Komponente des atomaren Rydberg-Zustandes ist jedoch auch dort aufgrund der Sättigung des Detektors abgeschnitten. Die Punkte geben die Mittelwerte und die Unsicherheiten aus jeweils 50 Teilmessungen an, die rote durchgezogene Linie ist die Summe mehrerer an diese Daten angepasster Gauß-Kurven. Das Spektrum ist aus Teilmessungen über zwei überlappende Spektralbereiche zusammengesetzt (siehe Text).

7.2 Messung der Lebensdauern von Rydberg-Atomen und Molekülen

Wie bereits in Abschnitt 5.1.2 erwähnt, stellt die Lebensdauer von hochangeregten Zuständen eine charakteristische Eigenschaft von Rydberg-Atomen dar. In diesem Abschnitt wird nun untersucht, wie die Bindung mit einem Grundzustandsatom in unterschiedlichen Molekülzuständen zu einer Veränderung der Lebensdauer relativ zu derjenigen des freien Rydberg-Atoms führt. Dazu wurden Spektren aufgenommen, bei denen die Wartezeit zwischen dem Anregungslaserpuls und der Detektion durch Feldionisation variiert wurde. Abbildung 7.2a zeigt ein Spektrum ohne Wartezeit zwischen Anregung und Detektion, in dem die betrachteten Linien farblich gekennzeichnet sind. Insbesondere werden hier der Trimer-Zustand (siehe Abschnitt 7.1), der so genannte tiefgebundene Dimerzustand [74], der Dimer-Grundzustand und ein angeregter Dimer-Zustand untersucht. Abbildung 7.2b zeigt den zeitlichen Verlauf des maximalen Rydberg-Signals der verschiedenen Spezies. Da der Detektor bei einem Rydberg-Signal von etwa 10.000 sättigt, wurden zur Bestimmung der atomaren Lebensdauer Spektren mit einer geringeren Leistung des roten Anregungslasers verwendet; die Absolutwerte des Signals auf der atomaren Linie sind also nicht mit denen der Molekülzustände vergleichbar. Außerdem beginnen die Messdaten dort erst bei einer Wartezeit von 30 µs, da für kürzere Zeiten ebenfalls der Detektor sättigt.

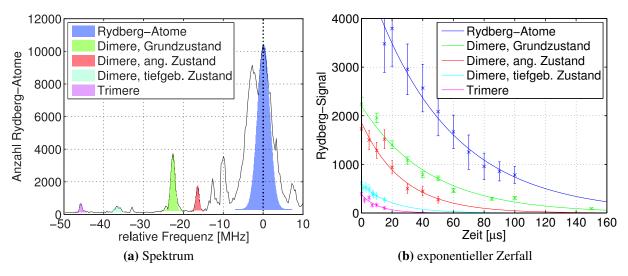


Abb. 7.2: Messung der Lebensdauern von Rydberg-Atomen und verschiedenen Molekülzuständen des 35s-Zustandes: Links ein Spektrum, in dem die untersuchten Spezies gekennzeichnet sind, rechts der exponentielle Zerfall der zugehörigen Populationen. Die weiteren Linien im Spektrum sind zum einen die $m_j = -\frac{1}{2}$ -Komponente des atomaren Rydberg-Zustandes (siehe Abschnitt 6.2.1 und Seitenbänder der stärkeren Linien bei $\pm 10\,\mathrm{MHz}$, die auf Probleme mit dem Rydberg-Anregungslasersystem zurückzuführen sind (siehe Abschnitt 3.1.2)). Durch sie wird insbesondere ein angeregter Molekülzustand bei knapp $-10\,\mathrm{MHz}$ verdeckt (vgl. Abbildung 7.1). Die Absolutwerte für die Rydberg-Atome in der Abbildung rechts sind nicht mit denen der Molekülzustände vergleichbar (siehe Text). Die angegebenen Fehler beziehen sich auf die Unsicherheit aus jeweils $5\,\mathrm{Messungen}$.

Nach Abzug einer konstanten Offset-Population von 90 wurde an die Messdaten in Abbildung 7.2b jeweils ein exponentieller Zerfall der Form

$$N(t) = N(0) \cdot e^{-\frac{t}{\tau}} \tag{7.3}$$

angepasst. Die daraus resultierenden Werte für die Lebensdauer τ und die Anfangspopulation N(0) der unterschiedlichen Spezies sind in Tabelle 7.1 zusammen mit der Position im Spektrum relativ zur atomaren Rydberg-Linie mit $m_j=+\frac{1}{2}$, die nach Abschnitt 6.4 der Bindungsenergie entspricht, angegeben.

Spezies	Lebensdauer [µs]	Anfangspopulation	Position [MHz]
Rydberg-Atome	$51,5 \pm 5,4$	5140 ± 600	0 ± 0.40
Dimere, Grundzustand	43.8 ± 5.8	2210 ± 300	$-22,65 \pm 0,44$
Dimere, angeregter Zustand	27.0 ± 7.1	1960 ± 360	$-16,45 \pm 0,46$
Dimere, tiefgebundener Zustand	19.5 ± 4.6	587 ± 48	$-36,49 \pm 0,52$
Trimere	11.5 ± 6.7	370 ± 122	$-45,73 \pm 0,46$

Tab. 7.1: Lebensdauer τ und Anfangspopulation N(0) von Rydberg-Atomen $(m_j=+\frac{1}{2})$ und verschiedenen Molekülzuständen des 35s-Zustandes sowie die jeweilige relative Position im Spektrum. Die angegebenen Fehler von τ und N(0) ergeben sich als die doppelte Standardabweichung aus der Regression; der Fehler der relativen Position wird durch die Unsicherheit bei in der Bestimmung des Nullpunktes an der atomaren Rydberg-Linie dominiert.

Bevor die Unterschiede in den Lebensdauern der verschiedenen Spezies interpretiert werden, wird zunächst die Lebensdauer der Rydberg-Atome näher betrachtet, da für deren Zerfallsmechanismus bereits theoretische Modelle existieren (siehe Abschnitt 5.1.2). Hierbei müssen neben der spontanen Emission in niederere Niveaus auch durch Schwarzkörperstrahlung induzierte Übergänge berücksichtigt werden (siehe Abschnitt 5.1.2). Die Atomwolke weist zwar Temperaturen von wenigen μ K auf; da jedoch die Temperatur der umgebenden Vakuumkammer bei Raumtemperatur liegt, muss hier die Schwarzkörperstrahlung bei $T=300~{\rm K}$ berücksichtigt werden. Neben diesen beiden Zerfallskanälen können auch noch eine ganze Reihe weiterer Effekte zu einer Reduzierung der Lebensdauern führen. So können bei hohen Dichten sowohl Stöße [94] als auch kollektive Effekte zu einer erhöhten Zerfallsrate führen. Zu letzteren zählen die inkohärente verstärkte spontane Emission [95], die mit der Atomzahl N skaliert, und die kohärente Superradianz [96][97] oder Superfluoreszenz [98], die mit N^2 skaliert.

Um zu untersuchen, welche dieser Effekte in den durchgeführten Messungen eine Rolle spielen, wird nun die gemessene Lebensdauer der freien Rydberg-Atome im 35s-Zustand zusammen mit Werten aus früheren Messungen für die s-Zustände mit n=36, 37 [25] und 43 [85] mit verschiedenen experimentellen und theoretischen Referenzwerten verglichen (siehe Abbildung 7.3). Bei den von Gounand [61] angegebenen Werten für T=0 K handelt es sich um eine an theoretisch berechnete Werte angepasste Kurve der Form (vgl. Gleichung (5.21) in Abschnitt 5.1.2)

$$\tau_n = \tau' \cdot (n - \delta_0)^{\gamma} \tag{7.4}$$

mit den Parametern $\tau'=1,43\,\mathrm{ns}$ und $\gamma=2,94\,\mathrm{und}$ dem Quantendefekt für s-Zustände $\delta_0=3,135\,\mathrm{aus}$ [71]. Die Werte für $T=300\,\mathrm{K}$ berücksichtigen nach Gleichung (5.22) zusätzlich die durch Schwarzkörperstrahlung verursachte Zerfallsrate in der Näherung von Gleichung

(5.28). Beterov et al. [63] geben eine empirische Formel aus einzelnen aus umfangreichen numerischen Rechnungen erhaltenen Lebensdauern für unterschiedliche Temperaturen an; diese ist für $T=0\,\mathrm{K}$ und $T=300\,\mathrm{K}$ zusammen mit einigen explizit angegebenen Werten abgebildet. Die Abweichung der Ergebnisse von Beterov et al. und Gounand ist auf die von Letzterem gemachten relativ groben Näherungen zurückzuführen. Von Nascimento et al. [62] stammt schließlich eine Regressionskurve an experimentelle Daten, die Schwarzkörperstrahlung bei $T=300\,\mathrm{K}$ berücksichtigt (Gleichungen (5.22), (5.21) und (5.28)). Die Parameter stimmen exakt mit den von Gounand gefundenen überein und korrigieren die fehlerhaften Ergebnisse in [99]. Zudem ist der Verlauf der Lebensdauer nach Gleichung (5.28), wie sie theoretisch nur unter ausschließlicher Berücksichtigung des stimulierten Zerfalls durch Schwarzkörperstrahlung bei $T=300\,\mathrm{K}$ zu erwarten wäre, gezeigt.

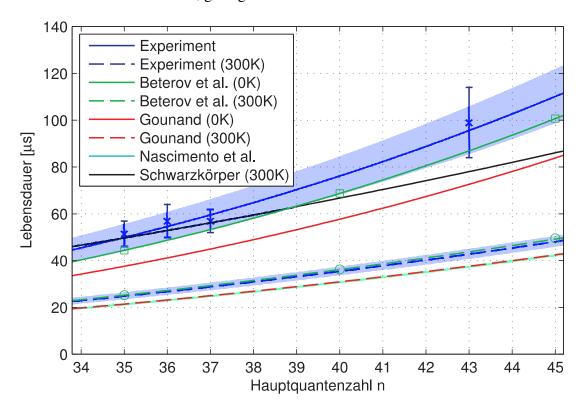


Abb. 7.3: Vergleich der gemessenen Lebensdauern mit experimentellen [62] und theoretischen [61][63] Referenzwerten. Der Fehlerbereich der angepassten Kurve ist schattiert dargestellt, der von Nascimento et al. angegebene Fehler ist verschwindend gering.

Wie aus Abbildung 7.3 hervorgeht liegen die durch spontane Emission ($T=0\,\mathrm{K}$) und die durch stimulierte Emission bei $T=300\,\mathrm{K}$ bedingten Lebensdauern in der selben Größenordnung. Die Schwarzkörperstrahlung führt somit bei Raumtemperatur in etwa zu einer Halbierung der Lebensdauer relativ zu derjenigen am absoluten Nullpunkt, was sich sowohl in den theoretischen als auch in den experimentell bestimmten Referenzwerten widerspiegelt. Dennoch liegen die hier gemessenen Werte eher im Bereich der Daten ohne Berücksichtigung des zusätzlichen Zerfallskanals durch die Schwarzkörperstrahlung. Von Löw et al. [85] wurde dieser Effekt durch eine mögliche Reduktion der spektralen Modendichte in der metallischen Vakuumkammer erklärt. Der Hauptgrund für die beobachteten erhöhten Lebensdauern liegt jedoch in der nicht

zustandsselektiven Detektion der Rydberg-Atome. Wie in Abschnitt 6.3 erklärt, wird die Anzahl der Rydberg-Atome durch Feldionisation und anschließende Detektion der entstandenen Ionen gemessen. Das dazu verwendete Feld liegt im Bereich von etwa $E=400\,\frac{\rm V}{\rm cm}$. Unter Verwendung des klassischen Ionisationsfeldes¹

$$E_{ion} = \frac{R_{Ryd}}{8ea_0} \frac{1}{\overline{n}^4} \tag{7.5}$$

als Abschätzung² folgt, dass dadurch sämtliche Rydberg-Zustände mit Hauptquantenzahlen von mindestens etwa n=27 feldionisiert werden. Mit dem verwendeten Aufbau wird also nicht die Population des angeregten Rydberg-Niveaus (hier 35s), sondern die der Summe sämtlicher Rydberg-Zustände mit Hauptquantenzahlen über n=27 detektiert. Da nun aber die durch die Schwarzkörperstrahlung induzierten Übergänge im Gegensatz zur spontanen Emission hauptsächlich in benachbarte Niveaus stattfinden (siehe Diskussion in Abschnitt 5.1.2), spiegelt sich die Depopulation des eigentlich untersuchten Niveaus überhaupt nicht in der gemessenen Lebensdauer wider. Da zudem Effekte wie Superradianz und Stöße ebenfalls hauptsächlich zu Übergängen in benachbarte Niveaus führen [95], dürfte die beobachtete exponentielle Abnahme der gesamten Rydberg-Population im Wesentlichen nur durch den spontanen Zerfall bedingt sein. Bei der im Experiment bestimmten Zerfallsrate handelt es sich also in erster Näherung um den Zerfall durch spontane Emission des untersuchten Zustandes und der durch andere Prozesse besetzten benachbarten Niveaus. Nimmt man nun an, dass deren Population klein gegenüber der Besetzung des Ausgangszustandes ist, oder dass sich die Zerfallsrate, mit der diese benachbarten Zustände durch spontane Emissionsprozesse zerfallen, nicht wesentlich von der des untersuchten Ursprungsniveaus unterscheidet, so lassen sich die experimentellen Daten folgendermaßen interpretieren. Der gemessene Wert der Lebensdauer entspricht dann dem der reinen Lebensdauer durch spontane Emission ohne Berücksichtigung weiterer Zerfallskanäle. Dies erklärt die gute Übereinstimmung der Messdaten zumindest mit den neueren Berechnungen von Beterov et al., deren Ergebnisse für 0 K innerhalb der Fehlergrenzen der experimentellen Ergebnisse liegen (siehe Abbildung 7.3). Anpassen von Gleichung (7.4) an die gemessenen Daten liefert dann die Parameter:

$$\tau' = (2.2 \pm 0.2) \text{ ns} \quad \gamma = 2.9 \pm 0.2$$
 (7.6)

Der Exponent liegt hierbei wie bei Gounard erwartungsgemäß nahe am Grenzwert $\gamma=3$ für niedrige Drehimpulsquantenzahlen l (siehe Abschnitt 5.1.2). Addiert man nun außerdem zur gemessenen Zerfallsrate die durch Schwarzkörperstrahlung bei $T=300\,\mathrm{K}$ bedingte Zerfallsrate in der Näherung von Gleichung (5.28), so deckt sich der erhaltene Verlauf ebenso weitgehend mit dem entsprechenden von Beterov et al. berechneten Verlauf.

Abschließend sei jedoch angemerkt, dass der Ablauf der hier zu Grunde liegenden Messungen, wie oben ausgeführt, grundsätzlich nicht zur Bestimmung der Lebensdauern von einzelnen Rydberg-Niveaus geeignet ist. Um eine zustandsselektive Messung der Rydberg-Population zu ermöglichen, müsste das Ionisationsfeld in einer Rampe hochgefahren und der zeitliche Verlauf des Rydberg-Signal beobachtet werden, wie es zum Beispiel in [62] realisiert ist. Zudem

¹Folgt elementar durch Gleichsetzen der Energie $E_{\overline{n}}$ des Zustandes (Gleichung (5.11)) mit dem modifizierten Coulomb-Potential $V(z) = V_{Coul}(z) + Eez$ an dessen Sattelpunkt z [11].

²Durch Tunnelprozesse findet auch unterhalb der klassischen Ionisationsschwelle merkliche Feldionisation statt.

dürften dann bei den hohen Dichten in der verwendeten Magnetfalle die bereits oben erwähnten Effekte wie Superradianz und Stoßprozesse eine merkliche Rolle spielen.

Somit liefern die in Tabelle 7.1 angegebenen Lebensdauern zwar keine Informationen über die eigentliche Lebensdauer der einzelnen Zustände unter Berücksichtigung sämtlicher Zerfallskanäle, jedoch lassen sich unter den oben gemachten Annahmen Aussagen über die Lebensdauer unter ausschließlicher Berücksichtigung der spontanen Emission treffen. Diese Annahmen sollten auch im Fall der Moleküle gelten, da die Bindungsenergie aller betrachteten Molekülzustände deutlich kleiner als der energetische Abstand zu benachbarten Rydberg-Zuständen ist. Demnach folgt aus den Werten in Tabelle 7.1, dass die Lebensdauer der zweiatomigen Moleküle im Grundzustand im Vergleich zu den freien Atomen leicht reduziert ist, wenn auch nicht so stark wie in älteren Messungen [25]. Dies legt die Vermutung nahe, dass die der Reduzierung der Lebensdauer zugrundeliegenden Effekten von Eigenschaften der Atomwolke wie Temperatur und Dichte abhängen. Für die angeregten Molekülzustände und die dreiatomigen Moleküle verkürzt sich der Wert um einen Faktor von etwa 2 bzw. 4. Die Existenz des gebundenen Grundzustandsatoms muss also zu weiteren Zerfallskanälen führen, die nicht in benachbarte Rydberg-Niveaus münden und somit mit der verwendeten experimentellen Sequenz detektiert werden. Denkbar wäre zum einen der Einfang des Rydberg-Elektrons durch das Grundzustandsatom, was zur Bildung eines Ionenpaares führt [100]:

$$Rb(35s) + Rb(5s) \longrightarrow Rb^{+} + Rb^{-}$$
 (7.7)

Anschließend kollidiert das in diesem Prozess gebildete Ionenpaar aufgrund der Coulomb-Anziehung mit großer Wahrscheinlichkeit und bildet dabei unter Emission eines freien Elektrons ein Rb_2^+ -Molekülion [101]:

$$Rb^+ + Rb^- \longrightarrow Rb_2^+ + e^- \tag{7.8}$$

Zum anderen wäre ein Zerfall durch assoziative Ionisation [102] oder Hornbeck-Molnar-Ionisation [103] möglich, bei der sich ein Rb_2^+ -Molekülion und ein freies Elektron bilden:

$$Rb(35s) + Rb(5s) \longrightarrow Rb_2^+ + e^- \tag{7.9}$$

Beide Prozesse führen somit zur Bildung von Rb_2^+ -Molekülionen, die sich im Experiment aufgrund ihrer doppelten Masse von den bei der Feldionisation gebildeten Rb^+ -Ionen unterscheiden lassen; sie treffen nämlich erst nach der $\sqrt{2}$ -fachen Flugzeit nach Einschalten des Ionisationsfeldes auf den MCP-Detektor auf. Abbildung 7.4 zeigt einen Vergleich der Spektren der Rb^+ und der Rb_2^+ -Ionen im Bereich der Molekülzustände. Im Bereich der atomaren Rydberg-Doppellinie ist keine zuverlässige Auswertung des Rb_2^+ -Spektrums möglich; das Signal der Rb^+ -Ionen ist dort so stark, dass dessen Ausläufer das Signal der Rb_2^+ -Molekülionen verfälschen.

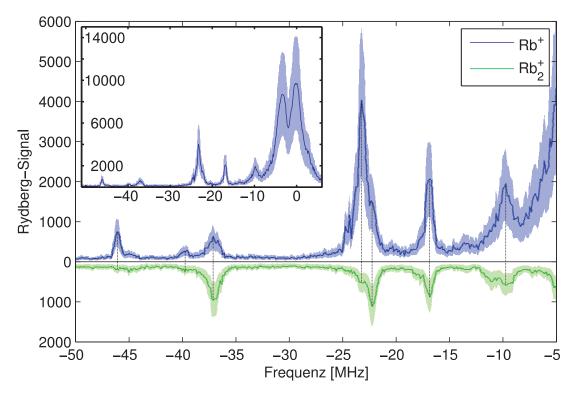


Abb. 7.4: Vergleich der Spektren der Rb^+ und der Rb_2^+ -Ionen. Dargestellt ist der Mittelwert und schattiert die doppelte Unsicherheit aus jeweils 20 Messungen; die relative Linienposition in den beiden Spektren ist durch vertikale Linien gekennzeichnet. Gezeigt ist nur der Bereich der Molekülzustände, in dem das Signal der Rb_2^+ -Ionen zuverlässig ausgewertet werden kann, während die Einlassung eine Übersicht über das gesamte Spektrum der Rb^+ -Ionen gibt.

Aus der Tatsache, dass die Moleküllinien in beiden Spektren bei der gleichen spektralen Position liegen, lässt sich folgern, dass die Photoassoziation von Rydberg-Molekülen zur Bildung von Rb_2^+ -Molekülionen führt. Allerdings variiert die relative Intensität dieser Linien; die Wahrscheinlichkeit der Prozesse, die zur Bildung von Rb_2^+ -Ionen führt, ist also vom Molekülzustand abhängig. Besonders deutlich wird dies an der Dimerlinie. Hier fällt die Position des Maximums im Rb_2^+ -Spektrum mit einer Schulter an der Linie des Dimer-Grundzustands zusammen. Hierbei könnte es sich um ein Rotationsniveau des Grundzustandes oder um einen anderen angeregten Zustand handeln, der eine erhöhte Zerfallswahrscheinlichkeit zu einem Rb_2^+ -Molekülion aufweist.

Unter der Annahme, dass die reduzierte Lebensdauer der Molekülzustände tatsächlich durch die Prozesse (7.7) und (7.9) verursacht wird, was durch den Nachweis der Rb_2^+ -Molekülionen nahegelegt wird, lässt sich auch die Halbierung der Lebensdauer der dreiatomigen Molekülzustände relativ zu derjenigen der Dimer-Zustände erklären. Die Wahrscheinlichkeit der oben angegebenen Zerfallsprozesse (7.7) und (7.9) verdoppelt sich nämlich bei einem dreiatomigen Molekül, da hier zwei Grundzustandsatome vorliegen. Da die übrigen Zerfallskanäle gegenüber diesen Prozessen bei den Molekülzuständen nur eine vernachlässigbare Rolle spielen, schlägt sich die Verdopplung der Zerfallswahrscheinlichkeit in erster Näherung direkt in einer Halbierung der gemessenen Lebensdauern nieder.

Eine eingehendere Diskussion der möglichen Zerfallskanäle findet sich in [101].

7.3 Stark-Effekt bei Rydberg-Molekülen

7.3.1 Kalibration der Feldplatten

Das zur Messung des Stark-Effektes benötigte elektrische Feld wird durch Anlegen einer Spannung U an den in der Vakuumkammer angebrachten Feldplatten erzeugt. Aus der Geometrie dieser Feldplatten lässt sich zwar theoretisch das elektrische Feld E am Ort der Atome berechnen (siehe [104]); da jedoch die genaue Position der angeregten Atome in der Kammer nicht bekannt ist, stellt eine Kalibration über den Stark-Effekt der Rydberg-Atome die genaueste Methode zur Bestimmung des relevanten elektrischen Feldes E dar.

Für den 35s-Zustand wurde deshalb mit der durch die neue Digitalisierungskarte zur Verfügung stehenden hohen Auflösung (siehe Abschnitt 6.3) die Stark-Verschiebung der atomaren Rydberg-Linie mit $m_j=+\frac{1}{2}$ gemessen. Dazu wurden Spektren bei unterschiedlicher Spannung U an den Feldplatten aufgenommen. Abbildung 7.5 zeigt die relative Verschiebung der Frequenz über angelegten Spannung U.

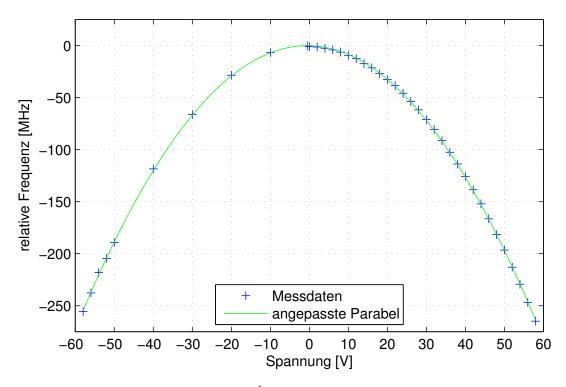


Abb. 7.5: Stark-Verschiebung der $m_j=+\frac{1}{2}$ -Komponente des 35s-Zustandes: relative Frequenzverschiebung über angelegter Spannung, Messdaten mit angepasster Parabel. Die Fehler aus jeweils 5 Messungen und der Laserlinienbreite sind auf dem gezeigten Maßstab vernachlässigbar.

An die Daten wurde eine Parabel der Form

$$\Delta f = f_0 \cdot \left(U - U_0 \right)^2 \tag{7.10}$$

angepasst. Die dabei gefundenen Parameter lauten:

$$f_0 = (-77,03 \pm 0,12) \frac{\text{kHz}}{\text{V}^2}$$

 $U_0 = (0,5244 \pm 0,0021) \text{ V}$ (7.11)

Aus dem Vergleich mit der allgemeinen Formel für den quadratischen Stark-Effekt von Atomen und dem in erster Näherung linearen Zusammenhang zwischen der elektrischen Feldstärke E und der angelegten Spannung U im Plattenkondensator:

$$\Delta f = -\frac{1}{2}\alpha E^2 = -\frac{1}{2}\alpha \left(\frac{U}{d}\right)^2 \tag{7.12}$$

lässt sich dann die Polarisierbarkeit³ α des Rydberg-Atoms in Abhängigkeit von dem Parameter f_0 aus der angepassten Parabel (7.10) und Proportionalitätskonstante d zwischen elektrischer Feldstärke F und angelegter Spannung U berechnen. Gleichsetzen mit dem quadratischen Teil von Gleichung (7.12) liefert:

$$\alpha = -2 \cdot f_0 \cdot d^2 \tag{7.13}$$

Für die Polarisierbarkeit verschiedener Rydberg-Zustände von ^{87}Rb existieren leicht voneinander abweichende theoretische Werte von Pritchard [105] und O'Sullivan et al. [71]. Um die Genauigkeit der Kalibration zu erhöhen, wurde auf bereits bestehende Messungen des Stark-Effekts an den s-Zuständen mit n=36,37 und 43 zurückgegriffen. Mit den jeweiligen Werten von f_0 wurde dann die Polarisierbarkeit α nach Gleichung (7.13) an die theoretischen Werte angepasst (siehe Abbildung 7.6).

Das elektrische Feld E am Ort der angeregten Atome ergibt sich aus dieser Kalibration dann als:

$$E = \frac{1}{d} \cdot U + E_0$$
 mit $\frac{1}{d} = (0.192 \pm 0.002) \frac{1}{\text{cm}}$ bzw. $d = (5.22 \pm 0.05) \text{ cm}$ $E_0 = (0.1007 \pm 0.0015) \frac{\text{V}}{\text{cm}}$ (7.14)

Der Fehler der Kalibration ist hierbei so klein, dass er weitgehend gegen den Fehler der eingestellten Spannung U vernachlässigt werden kann.

³Die Polarisierbarkeit wird in diesem Abschnitt in $\left[\frac{\text{Frequenz}}{(\text{elektr. Feld})^2}\right]$ angegeben. Die auf die Energie bezogenen Werte erhält man einfach durch Multiplikation mit dem Planckschen Wirkungsquantum h.

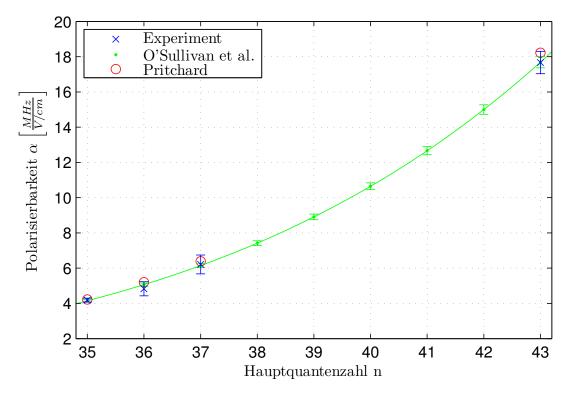


Abb. 7.6: Vergleich der theoretisch berechneten Polarisierbarkeiten nach O'Sullivan et al. [71] und Pritchard [105] verschiedener *s*-Zustände mit den über die Feldkalibration an diese Daten angepassten experimentellen Ergebnissen. Die gezeigten Werte sind in Tabelle 7.2 angegeben.

Die aus der Kalibration resultierenden Werte für die Polarisierbarkeiten der einzelnen Zustände sind in Tabelle 7.2 dargestellt.

Zustand	Experiment	O'Sullivan et al.	Pritchard
35s	$4,19 \pm 0,11$	$4,151 \pm 0,074$	4,22
36s	$4,83 \pm 0,40$	$5,066 \pm 0,090$	5,20
37s	$6,21 \pm 0,54$	$6,15 \pm 0,11$	6,39
43s	$17,67 \pm 0,63$	$17,69 \pm 0,32$	18,22

Tab. 7.2: Atomare Polarisierbarkeiten α in $\frac{\text{MHz}}{(\text{V/cm})^2}$ von s-Zuständen mit verschiedenen Hauptquantenzahlen n: Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit den Theoriewerten von O'Sullivan et al. [71] und Pritchard [105]. Der für die experimentellen Werte angegebene Fehler enthält sowohl den Fehler aus der Anpassung der einzelnen Stark-Parabel als auch den aus der Anpassung an die theoretischen Polarisierbarkeiten.

Innerhalb der Fehlergrenzen stimmen die Polarisierbarkeiten α also mit den sich unterscheidenden Theoriewerten aus den beiden Quellen überein. Eine Betrachtung der Fehler macht jedoch deutlich, dass der Stark-Effekt der anderen Zustände ebenfalls mit der nun zur Verfügung stehenden hohen Auflösung der Spektren untersucht werden sollte, um Daten zu erhalten, die in ihrer Qualität vergleichbar mit denen des 35s-Zustandes sind.

7.3.2 Stark-Effekt von Rydberg-Dimeren

7.3.2.1 Experimentelle Ergebnisse

Zur Untersuchung des Stark-Effekts an zweiatomigen Rydberg-Molekülen wurden wie bei der Feldkalibration in Abschnitt 7.3.1 Spektren aufgenommen, während die an den Feldplatten angelegte Spannung U variiert wurde. Abbildung 7.7 zeigt eine Übersicht über die Verschiebung der Spektren im elektrischen Feld E. Die eingezeichnete Parabel ist an die Maxima der Spektren angepasst und beschreibt somit den quadratischen Stark-Effekt des atomaren Rydberg-Zustandes 35s, $m_j = \frac{1}{2}$ (siehe Gleichung (7.12) bzw. (7.15)). Die angepassten Parameter stimmen dabei innerhalb der Fehlergrenzen mit denen aus der Feldkalibration (siehe Gleichung (7.11) und Abbildung 7.5) überein.

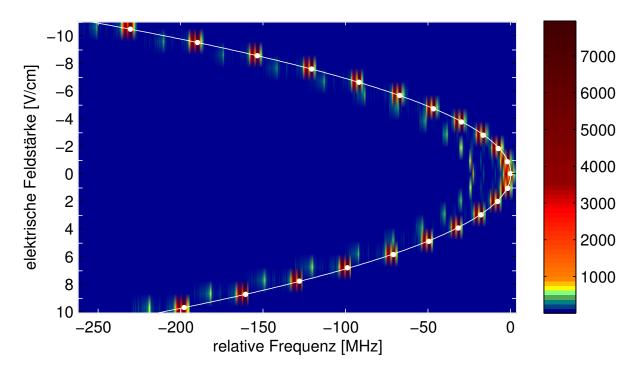


Abb. 7.7: Verschiebung der Spektren des 35s-Zustandes im elektrischen Feld E: Rydberg-Signal (willkürliche Einheiten) über der elektrischen Feldstärke und der relativen Anregungsfrequenz. Die eingezeichnete Parabel beschreibt den quadratischen Stark-Effekt des atomaren Rydberg-Zustandes mit $m_j = \frac{1}{2}$. Zu erkennen ist zusätzlich die ebenfalls quadratische Verschiebung des Dimer-Grundzustandes, der von einer signifikanten Linienverbreiterung begleitet wird.

Wie aus der Abbildung hervorgeht, folgt die Verschiebung der Molekülzustände in erster Näherung demselben quadratischen Verlauf wie der atomare Rydberg-Zustand. Dies ist konsistent mit der in Abschnitt 5.2.2 getroffenen Annahme, dass die Wellenfunktion des Rydberg-Elektrons durch die Anwesenheit des Grundzustandsatoms nur geringfügig verändert wird. Die Polarisierbarkeit des Moleküls ist dann gleich der Polarisierbarkeit $\alpha = (4.19 \pm 0.11) \frac{\text{MHz}}{(\text{V/cm})^2}$ des 35s-Rydberg-Atoms (siehe Tabelle 7.2), dem gegenüber die Polarisierbarkeit des zusätzlichen Grundzustandsatoms mit $\alpha_{5s} = (0.134 \pm 0.008) \frac{\text{Hz}}{(\text{V/cm})^2}$ [44] vernachlässigbar ist. Um die

Stark-Verschiebung näher zu untersuchen wird deshalb die Verschiebung durch den quadratischen Stark-Effekt des Rydberg-Atoms

$$W_{Stark}^{2,35s} = -\frac{1}{2}\alpha E^2 \tag{7.15}$$

abgezogen, indem der Nullpunkt der Spektren auf die jeweilige Position der $m_j=\frac{1}{2}$ -Komponente der Rydberg-Atome gelegt wird (siehe Abbildung 7.8). Dadurch wird eine Auffächerung der Linie des Dimergrundzustandes sichtbar, der die rein quadratischen Stark-Verschiebung des Rydberg-Atoms nach Gleichung (7.15) überlagert ist.

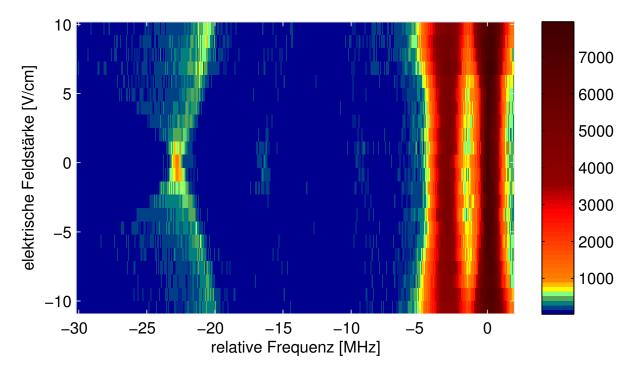


Abb. 7.8: Verschiebung der Spektren des 35s-Zustandes im elektrischen Feld E relativ zur Linie des atomaren Rydberg-Zustandes mit $m_j=\frac{1}{2}$: Rydberg-Signal (willkürliche Einheiten) über der elektrischen Feldstärke und der relativen Anregungsfrequenz. Neben der Doppellinie der Rydberg-Atome ($m_j=\pm\frac{1}{2}$) ist die E-Feld-abhängige Auffächerung der Linie des Grundzustandes der Dimerlinie bei etwa $-23\,\mathrm{MHz}$ zu erkennen. Aufgrund der geringen Signalstärke ist die Auffächerung des angeregten Molekülzustandes bei etwa $-17\,\mathrm{MHz}$ kaum noch sichtbar.

7.3.2.2 Vergleich mit dem theoretischen Modell

Als mögliche Erklärung dieses offenbar feldabhängigen Verbreiterungseffekts wird der in Kapitel 5.3 eingeführte Stark-Effekt von Molekülen herangezogen, der zu einer Aufspaltung der Unterniveaus der Rotationszustände im elektrischen Feld führt. Da im Experiment am Ort der Atome aufgrund der Fallengeometrie immer auch ein nichtverschwindendes Magnetfeld B herrscht (siehe Abschnitt 6.4), müsste streng genommen der gekoppelte Effekt von elektrischem und magnetischem Feld, der so genannte Stark-Zeeman-Effekt, betrachtet werden, der

besonders im hier vorliegenden Fall mit $\vec{E} \perp \vec{B}$ relativ kompliziert ist [106][107]. Allerdings ist, wie bereits in Abschnitt 6.4 erklärt, das Magnetfeld B so stark, dass die Kopplung zwischen dem Spindrehimpuls und dem Hanteldrehimpuls des Moleküls aufgebrochen wird. Der Elektronenspin orientiert sich dann unabhängig am Magnetfeld (Paschen-Back-Effekt) und es genügt somit, den Stark-Effekt für ein lineares Molekül ohne elektronischen Drehimpuls⁴ zu betrachten. In diesem Fall steht der Moleküldrehimpuls \vec{J} immer senkrecht auf der Molekülachse, sodass die Projektion K auf diese Achse immer verschwindet.

Bereits ohne äußeres elektrisches Feld sind die Zustände mit unterschiedlicher Quantenzahl J durch die Rotationsenergie W_J^r aufgespalten. Diese lautet im vorliegenden Fall mit K=0 (siehe Gleichung (5.64) in Abschnitt 5.3.1):

$$W_J^r = BJ(J+1) (7.16)$$

Die Rotationskonstante B beträgt mit der in erster Näherung als konstant angenommen Bindungslänge von $d=1900\,a_0$ (siehe Abschnitt 5.2.2) und der Masse $m=1,4432\cdot 10^{-25}\,\mathrm{kg}$ eines Rubidium-Atoms [44]:

$$B = \frac{\hbar^2}{2I_b} = \frac{\hbar^2}{md^2} = h \cdot 11,5 \,\text{kHz}$$
 (7.17)

Diese Rotationsniveaus werden thermisch besetzt, worauf in Abschnitt 7.4 näher eingegangen wird (siehe insbesondere Abbildung 7.11). Im elektrischen Feld spalten nun zusätzlich die Unterniveaus mit verschiedenem Betrag |M| der Projektion des Moleküldrehimpulses \vec{J} auf die Richtung des elektrischen Feldes \vec{E} auf. Da im betrachteten Fall K=0 gilt, verschwinden sämtliche Beiträge mit ungeraden Potenzen im elektrischen Feld, in die übrigen Glieder gehen nur gerade Potenzen der Quantenzahl M ein (siehe Anhang D.1.4 und [82]). Die niedrigste nichtverschwindende Ordnung in der Störungstheorie des Stark-Effekts (siehe Abschnitt 5.3.2) ist demnach die zweite Ordnung. Diese setzt sich aus einem Beitrag $W_{Stark}^{(2,\,\mu)}$, der durch die Existenz eines permanenten Dipolmoments $\vec{\mu}$ hervorgerufen wird, und einem Beitrag $W_{Stark}^{(2,\,\alpha)}$, der aus einem durch das äußere Feld induzierten Dipolmoments resultiert, zusammen. Beim Vergleich mit den experimentellen Daten in Abbildung 7.8 ist zu beachten, dass um den beobachteten Effekt besser sichtbar zu machen dort die quadratische Stark-Verschiebung $W_{Stark}^{2,35s}$ des atomaren Rydberg-Zustandes 35s, $m_j=+\frac{1}{2}$ bereits abgezogen wurde, sodass für den Anteil des induzierten Dipolmoments an der beobachteten Stark-Verschiebung bis in zweiter Ordnung der Feldstärke E aus den Gleichungen (5.79) und (7.15) folgt:

$$W_{Stark}^{(2,\alpha)}(J,0,M) - W_{Stark}^{2,35s} = -\frac{1}{2} \left[\alpha_{bb} - \alpha + (\alpha_{cc} - \alpha_{bb}) \frac{2J^2 + 2J - 1 - 2M^2}{(2J - 1)(2J + 3)} \right] E^2$$
 (7.18)

Der aus der Polarisierbarkeit des Moleküls resultierende Anteil der Stark-Energie setzt sich also wiederum aus zwei Beträgen zusammen: Ein zustandsunabhängiger Term wird durch eine Abweichung der Polarisierbarkeit α_{bb} des Moleküls senkrecht zur Achse vom Wert α des freien Rydberg-Atoms hervorgerufen; der andere Term ist proportional zu einer eventuellen Asymmetrie $\alpha_{cc} - \alpha_{bb}$ des molekularen Polarisierbarkeitstensors und hängt vom Rotationszustand (J, |M|) des Moleküls ab. Da sich die beobachtete Aufspaltung somit aus der Differenz zweier Effekte zweiter Ordnung in der elektrischen Feldstärke E ergibt, nämlich der Stark-Energie

 $^{^4}$ Der elektronische Bahndrehimpuls \vec{L} des betrachteten Molekülzustands $^3\Sigma_1$ ist Null.

zweiter Ordnung des unpolaren Moleküls $W_{Stark}^{(2,\,\alpha)}$ und des freien Rydberg-Atoms $W_{Stark}^{2,35s}$, ist es wahrscheinlich, dass Terme höherer Ordnung eine merkliche Rolle spielen. Wie im Anhang D.2 gezeigt, ist dies hier tatsächlich der Fall. Es müssen somit auch die Terme der nächsthöheren nichtverschwindenden Ordnung in der Störungstheorie, der vierten Ordnung, mitberücksichtigt werden. Diese enthält Terme proportional zur vierten Potenz des Dipolmoments μ , zur zweiten Potenz der Asymmetrie $\alpha_{cc} - \alpha_{bb}$ des Polarisierbarkeit sowie einen Mischterm, der vom Produkt $(\alpha_{cc} - \alpha_{bb})\mu^2$ abhängt (siehe Anhang D.1.4).

Um nun zu überprüfen, ob sich die experimentell gefundene Aufspaltung der Niveaus im elektrischen Feld durch die Existenz eines permanenten Dipolmoments oder einer Asymmetrie des Polarisierbarkeitstensors des Moleküls erklären lässt, wurde versucht, die experimentell bestimmte Stark-Verschiebung des Dimer-Grundzustandes in Abbildung 7.8 zu reproduzieren. Dazu wurde für jedes Rotationsunterniveau M jeweils eine Gauß-Kurve mit fester Breite von $500\,\mathrm{kHz}$ angenommen⁵. Die zugehörige spektrale Position relativ zum Rotationsgrundzustand im feldfreien Raum ergibt sich jeweils aus der Rotationsenergie W_J^r und den Stark-Energien zweiter Ordnung und vierter Ordnung, abzüglich der quadratischen Stark-Verschiebung $W_{Stark}^{2,35s}$ des atomaren Rydberg-Zustandes 35s, $m_j=+\frac{1}{2}$:

$$W_{J,M} = W_J^r + W_{Stark}^{(2,\mu)}(J,0,M) + W_{Stark}^{(2,\mu)}(J,0,M) - W_{Stark}^{2,35s} + W_{Stark}^{(4,\mu)}(J,0,M) + W_{Stark}^{(4,\alpha)}(J,0,M) + W_{Stark}^{(4,\alpha)}(J,0,M)$$
(7.19)

Die einzelnen Beiträge ergeben sich aus den Gleichungen (7.16), (5.72), (5.79), (7.15) und (D.10)-(D.12). Die unterschiedlichen Rotationszustände (J, M) werden nach einer Boltzmann-Verteilung bei $8\,\mu\text{K}$ besetzt 6 . Der so erhaltene Verlauf der Aufspaltung der Niveaus wurde dann an das normierte experimentelle Spektrum angepasst, wobei das permanente Dipolmoment μ und die Polarisierbarkeiten α_{bb} und α_{cc} senkrecht und parallel zur Molekülachse als Parameter variiert wurden. Das beste Ergebnis ist in Abbildung 7.9 der experimentell erhaltenen Aufspaltung gegenübergestellt. Hierbei erhält man ein permanentes Dipolmoment von

$$\mu = (0.25 \pm 0.1)$$
 Debye (7.20)

sowie für die Polarisierbarkeiten in Einheiten der Polarisierbarkeit $\alpha=4.19\,\frac{\rm MHz}{\rm (V/cm)^2}$ des atomaren Rydberg-Zustandes 35s:

$$\alpha_{bb} = (0.980 \pm 0.01) \ \alpha$$

$$\alpha_{cc} = (0.965 \pm 0.01) \ \alpha$$
(7.21)

Demnach wird die Polarisierbarkeit durch die Anwesenheit des Grundzustandsatoms im Molekül entlang beider Achsen relativ zum freien Rydberg-Atom um wenige Prozent reduziert.

⁵Diese Wahl legen Untersuchungen des feldfreien Spektrums nahe (siehe Abbildung 7.10b).

⁶Diese Temperatur wurde parallel zu den Messungen durch Absorptionsaufnahmen nach einer freien Expansion der Atomwolke bestimmt.

⁷Um die Anzahl der freien Parameter zu reduzieren, wurde das Rydberg-Signal um das Rauschlevel von etwa 75 korrigiert und auf 1 am Maximum im feldfreien Raum normiert.

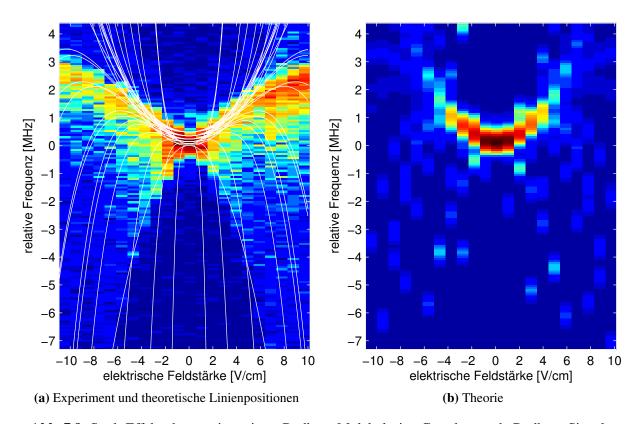


Abb. 7.9: Stark-Effekt des zweiatomigen Rydberg-Moleküls im Grundzustand: Rydberg-Signal über elektrischer Feldstärke E und relativer Frequenz (Nullpunkt an der Position des Grundzustandes ohne äußeres elektrisches Feld). Links sind die experimentellen Daten dargestellt, rechts der theoretisch durch den Stark-Effekt zweiter Ordnung zu erwartende Verlauf unter Annahme eines permanenten Dipolmoments $\mu=0.25$ Debye und eines asymmetrischen Polarisierbarkeitstensors ($\alpha_{bb}=0.98\,\alpha$ und $\alpha_{cc}=0.965\,\alpha$ mit $\alpha=4.19\,\frac{\text{MHz}}{(\text{V/cm})^2}$) bei einer Temperatur von $T=8\,\mu\text{K}$. Die zugehörigen Linienpositionen sind in den experimentellen Daten links als weiße Linien mit eingezeichnet.

Auch wenn die im Rahmen dieses noch relativ einfachen Modells erhaltene Aufspaltung und Verbreiterung für kleine elektrische Feldstärken E zumindest qualitativ mit dem experimentellen Ergebnis übereinstimmt, ist die Abweichung für größere Felder doch beträchtlich. Dies lässt sich auf mehrere Effekte zurückführen.

Zum einen ist die Existenz eines weiteren Molekülzustandes nahe beim beobachteten Grundzustand möglich. Ein erster, wenn auch unbestätigter, Anhaltspunkt für die Existenz eines solchen Zustandes liefert die Auswertung des Spektrums im Nullfeld (siehe Abbildung 7.10 in Abschnitt 7.4). Zudem liegen die betrachteten elektrischen Feldstärken E an der Grenze, ab dem die in Abschnitt 5.3.2 durchgeführte Störungstheorie ihre Gültigkeit verliert [108], sodass auch hierdurch Abweichungen von der Simulation zu erwarten sind 8 .

Weitaus gravierender ist jedoch die Tatsache, dass es im in Abbildung 7.9b gezeigten Verlauf

⁸ Für nicht polarisierbare polare Moleküle in hohen elektrischen Feldern ist in [109] eine Entwicklung der Gesamtenergie aus der Rotationsbewegung und der Orientierung im Feld \vec{E} bis zu Termen proportional zu $1/\sqrt{E}$ gegeben. Dieser Grenzfall hoher Felder ist jedoch im vorliegenden Fall noch nicht erreicht und liefert entsprechend keine Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen.

bereits bei Feldstärken von knapp über einem $\frac{V}{cm}$ zur Kreuzung von Linien verschiedener Zustände kommt. Durch diese feldinduzierte Entartung von verschiedenen Rotationsniveaus (oder eines weiteren eventuell vorhandenen angeregten Molekülzustandes) bricht die in Abschnitt 5.3.2 durchgeführte Störungsrechnung ohne Entartung zusammen. Dadurch kann es zu wesentlichen Beiträgen linear in E zu der Stark-Verschiebung kommen [82]. Damit ließe sich auch erklären, dass die Simulation für den rotverschobenen Bereich, in dem es zu keiner Kreuzung verschiedener Rotationszustände kommt (vgl. Abbildung D.3a in Anhang D.2), relativ gut mit den experimentellen Ergebnissen übereinstimmt, während die Abweichung im blauverschobenen Bereich für höhere Feldstärken, wo es verstärkt zu einer feldinduzierten Entartung einzelner Zustände kommt, sehr groß wird. Die stark besetzten Linien sind hier in der Simulation durch die quadratische Aufspaltung bereits aus dem abgebildeten Frequenzbereich verschoben, während das Experiment hier einen näherungsweise linearen Verlauf zeigt. Selbst wenn die verwendete Störungstheorie ohne Entartung sinnvolle Ergebnisse liefern sollte, wäre es möglich, dass es durch die Kreuzung unterschiedlicher Rotationsniveaus zu Änderungen in der Zuordnung der Zustände zu den einzelnen Linien kommt. Ein ähnlicher Effekt tritt in den Stark-Spektren von Mehrelektronenatomen auf [110][111]. Dies könnte im hier betrachteten Fall dazu führen, dass die stark besetzten Zustände nicht wie in der in Abbildung 7.9b dargestellten Simulation für hohe elektrische Felder zu hohen Energien außerhalb des abgebildeten Bereichs verschoben werden, sondern wieder zu negativen Energien abbiegen, wie einige in der Simulation schwach besetzte Zustände (siehe Abbildung 7.9a). Eine Berücksichtigung eines solchen Effekts könnte eine deutlich bessere Übereinstimmung mit den experimentellen Daten zur Folge haben.

Für eine Berechnung der Stark-Energien unter Berücksichtigung der Entartung wäre ein weitaus höherer Aufwand notwendig [83]. Insbesondere ist es nicht mehr möglich, eine geschlossene analytische Darstellung der Stark-Verschiebung anzugeben, die eine Anpassung an die experimentellen Daten erlaubt. Zur Diagonalisierung des Hamilton-Operators in der Basis der entarteten Zustände muss nämlich zunächst bekannt sein, bei welchen Zuständen eine Entartung auftritt, was wiederum von den Werten des Dipolmoments und des Polarisierbarkeitstensors abhängt. Aus diesem Grund wird in dieser Arbeit auf eine solche Rechnung verzichtet.

Weitere Möglichkeiten zur Berechnung der Stark-Energien wie die Interpolation zwischen den Grenzfällen sehr hoher und niedriger elektrischer Felder [108] und der Reihenentwicklung der exakten Lösung der Schrödinger-Gleichung (siehe Anhang D.1.5) wurden ebenfalls verworfen, da auch diese Methoden keine Anpassung an die experimentellen Daten erlauben.

Trotzdem legt bereits der Vergleich der experimentellen Daten mit der angepassten Theorie ohne Berücksichtigung der Entartung nahe, dass sich die beobachtete Aufspaltung der Grundzustands-Moleküllinie tatsächlich auf den molekularen Stark-Effekt zurückführen lässt. Dies würde insbesondere einen indirekten Nachweis einer Rotationsstruktur darstellen. Zudem zeigt der Vergleich von mit verschiedenen Parametern theoretisch berechneten Aufspaltungen in Anhang D.2, dass die Übereinstimmung mit dem Experiment ohne ein permanentes Dipolmoment ($\mu=0$) oder ohne eine Asymmetrie des Polarisierbarkeitstensors ($\alpha_{bb}=\alpha_{cc}$) noch schlechter ausfällt. Dies stellt also einen deutlichen Hinweis auf die Existenz sowohl eines permanenten Dipolmoments als auch eines asymmetrischen Polarisierbarkeitstensors dar.

Anschaulich resultiert ersteres aus einer leicht vergrößerten Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Rydberg-Elektrons in der Nähe des Grundzustandsatoms, bedingt durch die attraktive Wechselwirkung (siehe Abschnitt 5.2.2). Erste theoretische Berechnungen, die vom Molekülpotential ausgehen, liefern ebenfalls ein permanentes Dipolmoment, wenn auch mit deutlich höherem

Betrag im Bereich von 10 Debye [112]. Die beobachtete Asymmetrie des Polarisierbarkeitstensors lässt sich ebenfalls durch Veränderung der Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Rydberg-Elektrons durch die Wechselwirkung mit dem Grundzustandsatom im Molekül erklären. Die Polarisation der betrachteten Rydberg-Moleküle ist im Wesentlichen durch diejenige des Rydberg-Elektrons gegeben, von dem wiederum die Molekülbindung stark abhängt. Nach Abschnitt 5.2.2 ist nämlich das Molekülpotential direkt proportional zur Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte des Rydberg-Elektrons. Eine Verschiebung oder Verformung der räumlichen Verteilung des Rydberg-Elektrons durch das äußere elektrische Feld ist demnach mit einer zusätzlichen Verrichtung von Arbeit verbunden, da sich gleichzeitig das Molekülpotential verändert, was insgesamt zu einer Reduzierung der Polarisierbarkeit führt. Unter Berücksichtigung der radialsymmetrischen Geometrie des Molekülpotentials folgt dann unmittelbar auch, das diese Reduktion der Polarisierbarkeit in Richtung der Molekülachse stärker ist als senkrecht dazu. Dies steht im Kontrast zum Befund bei kovalent gebundenen linearen Molekülen [113], bei denen die Elektronenverteilung durch die Molekülbindung entlang der Molekülachse bereits leicht so gestört ist, dass diese in dieser Richtung leichter verschoben werden kann, was zu einer geringfügig erhöhten Polarisierbarkeit in dieser Richtung führt. Senkrecht zur Molekülachse dagegen ist die Beweglichkeit der Elektronen durch die Konzentration der Elektronendichte zwischen den beiden Atomkernen eingeschränkt, was zu einer Verminderung der Polarisierbarkeitskomponente in dieser Richtung führt. Die hier betrachteten Rydberg-Moleküle sind in dieser Hinsicht also nicht mit kovalenten Molekülen vergleichbar. Die Bindungseigenschaften hängen hier sehr stark von der räumlichen Verteilung des Rydberg-Elektrons ab (siehe Abschnitt 5.2.2) das in weitaus höherem Maße von einem äußeren elektrischen Feld beeinflusst wird, als es die Bindungselektronen in einem kovalent gebundenen Molekül werden.

Generell dürfte auch das hier verwendete und in der klassischen Molekülphysik übliche Modell des starren Rotators eine relativ grobe Näherung darstellen. Aufgrund der geringen Bindungsenergie des Rydberg-Moleküls ist eine merkliche Änderung des Bindungsabstandes bei der Rotation des Moleküls (Zentrifugalaufweitung [75]) wahrscheinlich. Zudem ist es durchaus möglich, dass hier auch das elektrische Feld über die Deformation der Wellenfunktion des Rydberg-Elektrons zu einer Veränderung wesentlicher Moleküleigenschaften wie der Bindungslänge führt. Ein solcher Effekt würde insbesondere zu einer feldabhängigen Rotationskonstante B führen. Da zudem nach ersten theoretischen Rechnungen [112] der Wert des permanenten Dipolmoments wiederum stark von der Bindungslänge abhängt, wäre ebenso eine Feldabhängigkeit des permanenten Dipolmoments zusätzlich zur Variation des induzierten Dipolmoments denkbar.

Um jedoch abschließend klären zu können, ob das verwendete Modell nicht doch eine hinreichend genaue Näherung darstellt und eventuell sogar die quantitative Bestimmung des Dipolmoments und der Asymmetrie des Polarisierbarkeitstensors erlaubt, wären Messungen bei deutlich niedrigeren elektrischen Feldstärken bis zu maximal etwa einem $\frac{V}{cm}$ nötig. In diesem Bereich tritt noch keine feldinduzierte Entartung von Niveaus auf, sodass die in Abschnitt 5.3 eingeführte Störungsrechnung ohne Entartung gültig ist. Wie im Abschnitt 7.3.1 gezeigt, lässt sich die elektrischen Feldstärke hierfür hinreichend genau einstellen. Die gute Übereinstimmung der Simulation mit einer ersten Messung im folgenden Abschnitt (siehe Abbildung 7.13) lässt eine solche Messung erfolgversprechend erscheinen. Mit der neuen Stabilisierung des Lasersystems steht nun nämlich eine so hohe spektrale Auflösung zur Verfügung, dass auch kleine Aufspaltungen im Bereich weniger hundert kHz messbar sind (siehe folgender Abschnitt 7.4).

7.4 Hochauflösende Spektroskopie des 35s-Zustandes

Zur Demonstration der Leistungsfähigkeit des neuen Lasersystems (siehe Abschnitt 3.1.2) und der neuen Digitalisierungskarte (siehe Abschnitt 6.3) wurden Spektren über den Bereich der 35s-Rydberg-Atome und der zugehörigen zweiatomigen Molekülzustände aufgenommen (siehe Abbildung 7.10a). Um eine eventuelle Verbreiterung durch den Einfluss des elektrischen Feldes auszuschließen, wurde diese Messung im tatsächlichen Nullfeld durchgeführt (siehe Abschnitt 7.3.1). Zum qualitativen Vergleich mit dem alten Lasersystem wird nun die Linie des Grundzustandes des zweiatomigen Rydberg-Moleküls näher betrachtet (siehe Abbildung 7.10b). Bei den alten Messungen weist diese Linie eine perfekte Gauß-Form mit einer Breite von $(1,4\pm0,2)$ MHz auf (siehe Abbildung 7.1), was etwas unter der Summe der mit dem Selbst-Heterodyn-Interferometers bestimmten Linienbreiten der einzelnen Anregungslaser liegt (siehe Abschnitt 3.2). Bei der jetzigen Messung ist dagegen ein um gut etwa 1 MHz blauverschobenes Nebenmaximum zu erkennen.

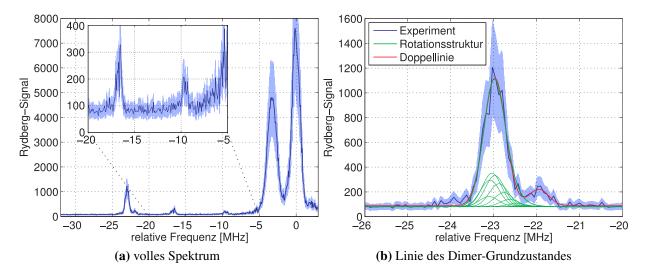


Abb. 7.10: Hochaufgelöstes Spektrum des 35s-Zustandes im Nullfeld bei $8\,\mu K$: Das volle Spektrum links zeigt den Grundzustand und zwei angeregte Zustände (vergrößert in der Einfügung dargestellt) des zweiatomigen Moleküls sowie die Doppellinie der atomaren Rydberg-Zustände mit $m_j=\pm 1$ (mit gesättigtem Detektor). Rechts ist die Linie des Dimer-Grundzustandes dargestellt. Die rote Linie ist die Summe zweier angepasster Gauß-Kurven. Die grüne Linie gibt die aus der Rotationsstruktur (thermische Besetzung bei $T=8\,\mu K$) zu erwartende Form an. Dünn gezeichnet sind die Gauß-förmigen Linien der einzelnen Rotationszustände. Die experimentellen Daten ergeben sich aus der Mittelung über 10 Messungen; der schattiert eingezeichnete Fehler gibt dabei die doppelte Unsicherheit an.

Um die abweichende Linienform zu erklären, wird zunächst die Rotationsstruktur des Molekülzustandes betrachtet. Wie bereits im vorigen Abschnitt 7.3.2 spalten bereits ohne äußeres elektrisches Feld die einzelnen Rotationszustände auf. Deren Energien W_J^r hängen nach Gleichung (7.16) von der Rotationsquantenzahl J und der Rotationskonstante B (hier wird

 $B = h \cdot 11,5 \,\mathrm{kHz}$ angenommen) ab:

$$W_J^r = BJ(J+1) \tag{7.22}$$

Diese Rotationsniveaus werden nun thermisch besetzt, wobei in Abwesenheit eines äußeren Feldes die (2J+1)-fache Entartung der M-Unterniveaus zu berücksichtigen ist. Demnach ergibt sich das temperaturabhängige Verhältnis der Besetzungszahlen N eines Rotationszustandes J und des Rotationsgrundzustandes J=0 als eine Boltzmann-Verteilung, multipliziert mit dem Entartungsgrad [75]:

$$\frac{N_J}{N_0}(T) = (2J+1) e^{-\frac{W_J^r}{k_B T}}$$
 (7.23)

Die energetische Lage der Rotationsniveaus nach Gleichung (7.16) und deren thermische Besetzung bei einer Temperatur von $8\,\mu\text{K}$ ist in Abbildung 7.11 dargestellt. Dieser Wert entspricht der aus Absorptionsaufnahmen bestimmten Temperatur der Atomwolken in den Messungen, die in Abbildung 7.10 dargestellt sind.

Eine solchermaßen thermisch besetzte Rotationsstruktur wurde an die gemessene Moleküllinie angepasst, wobei als Linienform für die einzelnen Rotationszustände jeweils eine Gauß-Kurve mit fester Breite angenommen wurde⁹. Die Besetzung von Zuständen mit Rotationsquantenzahlen J > 10 wurde hierbei in guter Näherung (siehe Abbildung 7.11) vernachlässigt. Das Ergebnis ist in Abbildung 7.10b in grün dargestellt, wobei die Kurven der einzelnen Rotationsniveaus zusätzlich dünn eingezeichnet sind. Die Breite der einzelnen Linien ergibt sich aus der Regression zu $\Delta f = (530 \pm 80)$ kHz. Wie aus der Abbildung hervorgeht lässt sich durch die Rotationsstruktur die Existenz des Nebenmaximums nicht erklären, während eine Summe zweier Gauß-Kurven (rot in Abbildung 7.10b) im Abstand von einem MHz mit den Breiten (590 ± 30) kHz und (540 ± 180) kHz sehr gut mit dem gemessenen Spektrum übereinstimmt. Die zusätzliche Linie könnte somit auf die Existenz eines weiteren angeregten Zustandes zurückzuführen sein. In jedem Fall liegt die Linienbreite noch deutlich über dem aus den Linienbreitenmessungen in Abschnitt 3.4 zu erwartenden Wert im Bereich von 100 – 200 kHz. Aus diesem Grund wird nun die Rolle der Doppler-Verbreiterung [18] untersucht. Diese resultiert aus der Tatsache, dass sich die effektive Frequenz f des Laserlichts der Vakuumfrequenz f_0 , das auf ein Atom einwirkt, über den Doppler-Effekt von der Geschwindigkeitskomponente vdes Teilchens entlang des eingestrahlten Laserlichts abhängt:

$$f(v) = f_0 \left(1 + \frac{v}{c} \right) \tag{7.24}$$

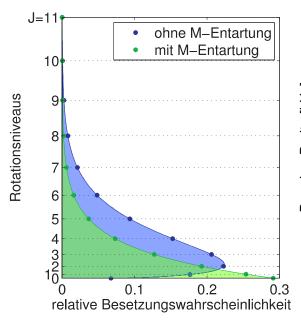
Der Betrag der Geschwindigkeitskomponente v folgt im thermischen Gleichgewicht einer Maxwell-Verteilung:

$$P(v)dv = \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T}} \cdot e^{-\frac{mv^2}{k_B T}} dv$$
 (7.25)

Durch Ausdrücken der Geschwindigkeit v durch die effektive Frequenz f aus Gleichung (7.24) erhält man die Verteilung der Doppler-verschobenen effektiven Frequenz der Atome, die die Linienform im Spektrum wiedergibt:

$$Pfv)df = \sqrt{\frac{mc^2}{2\pi k_B T f_0^2}} \cdot e^{-\frac{mc^2}{2k_B T f_0^2} (f - f_0)^2} df$$
 (7.26)

⁹Unter Annahme einer Lorentz-Form ergibt sich bei etwas schlechterer Übereinstimmung mit den experimentellen Daten eine Breite von (410 ± 80) kHz.



250 Strahlen parallel 225 Strahlen antiparallel 200 Doppler-Breite [kHz] 175 150 125 100 75 50 25 2 5 6 8 9 10 Temperatur [µK]

Abb. 7.11: Rotationsniveaus des zweiatomigen Rydberg-Moleküls und relative Besetzungswahrscheinlichkeit nach der Boltzmann-Verteilung. Im Fall der M-Entartung muss zusätzlich ein Faktor 2J+1 berücksichtigt werden.

Abb. 7.12: Abhängigkeit der Doppler-Verbreiterung (volle Halbwertsbreite) von der Temperatur der Atomwolke im Fall paralleler und antiparalleler Einstrahlung der beiden Anregungslaser.

Der Doppler-Effekt führt somit zu einem Gauß-förmigen Spektrum mit einer vollen Halbwertsbreite von

$$\Delta f = 2\sqrt{\frac{2\ln 2\,k_B T}{mc^2}} \cdot f_0 \tag{7.27}$$

Die Temperaturabhängigkeit dieser Gleichung ist in Abbildung 7.12 für den vorliegenden Fall dargestellt, wobei sich die Vakuumfrequenz f_0 aus der Summe $f_{b0}+f_{r0}$ der Laserfrequenzen des roten und des blauen Anregungslasers ergibt. Wie aus der Abbildung zu entnehmen ist, liegt die Doppler-Breite bei einer Temperatur von $8\,\mu\text{K}$ mit etwa $230\,\text{kHz}$ deutlich über dem aus der reinen Laserlinienbreite ermittelten Wert. Durch die Doppler-Verbreiterung lässt sich somit die experimentell gefundene Linienbreite, die mehr als das Doppelte der erwarteten reinen Laserlinienbreite beträgt, zumindest teilweise erklären. Um diese Vermutung zu überprüfen, wurde der Aufbau so umgebaut, dass das Anregungslicht der beiden Laser antiparallel eingestrahlt wird. Die Doppler-Verschiebung wird dann durch den gegenläufigen Effekt für die beiden Laserfrequenzen f_{b0} und f_{r0} zumindest teilweise aufgehoben:

$$f = f_{b0} \left(1 + \frac{v}{c} \right) + f_{r0} \left(1 - \frac{v}{c} \right) = f_{b0} + f_{r0} + (f_{b0} - f_{r0}) \frac{v}{c}$$
 (7.28)

In völlig analoger Rechnung folgt eine um $f_{b0} + f_{r0}$ zentrierte Gauß-Kurve mit der reduzierten vollen Halbwertsbreite

$$\Delta f = 2\sqrt{\frac{2\ln 2 \, k_B T}{mc^2}} \cdot |f_{b0} - f_{r0}| \tag{7.29}$$

Der temperaturabhängige Verlauf dieser Größe ist ebenfalls in Abbildung 7.12 dargestellt. In Abhängigkeit von der Temperatur der Wolke lässt sich somit in dieser Konfiguration die Doppler-Verbreiterung um einen Faktor von mehr als 3 reduzieren.

Abbildung 7.13 zeigt eine erste Messung der Linie des Dimer-Grundzustandes. Eine angepasste Lorentz-Kurve weist eine Breite von (216 ± 9) kHz auf. Da die erwartete Doppler-Breite für die Temperatur $T=5\,\mu\text{K}$ der hier untersuchten Atomwolken immer noch knapp $50\,\text{kHz}$ beträgt, lässt sich somit sicher davon ausgehen, dass die kombinierte Linienbreite des Anregungslasersystems tatsächlich wie erwartet unter $200\,\text{kHz}$ liegt. Berücksichtigt werden muss zudem, dass diese erste Messung unglücklicherweise nicht im elektrische Nullfeld (siehe Abschnitt 7.3.1) durchgeführt wurde, und somit eine zusätzliche Verbreiterung durch den Stark-Effekt zu erwarten ist (siehe Abschnitte 5.3.2 und 7.3.2). Zudem waren bei der Messung die Feldplatten nicht kurzgeschlossen, sodass das tatsächliche elektrische Feld nicht bekannt ist.

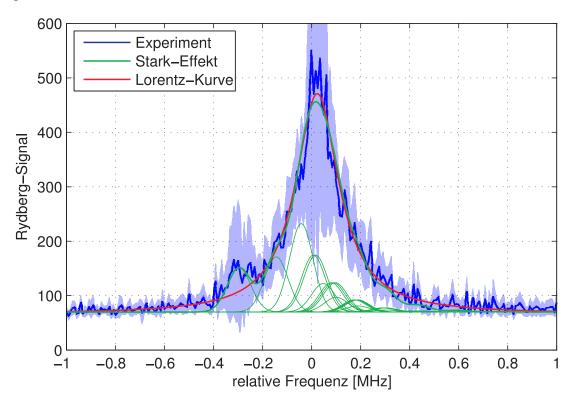


Abb. 7.13: Hochaufgelöstes Spektrum des 35s-Zustandes im Bereich des Grundzustands des zweiatomigen Rydberg-Moleküls. Die rote Linie ist eine angepasste Lorentz-Kurve; die grüne Linie ergibt sich unter Berücksichtigung des Stark-Effekts bis einschließlich vierter Ordnung, wobei für die einzelnen |M|-Unterzustände Gauß-Kurven angenommen wurden (dünn gezeichnet). Hierbei wurden für das Dipolmoment und den Polarisierbarkeitstensor die in Abschnitt 7.3.2.2 gefundenen Werte ($\mu=0.25\,\mathrm{Debye}$, $\alpha_{bb}=0.980\,\alpha$, $\alpha_{cc}=0.965\,\alpha$) angenommen. Daraus folgt eine elektrische Feldstärke von $E=(0.65\pm0.04)\,\frac{\mathrm{V}}{\mathrm{cm}}$. Die experimentellen Daten stellen den Mittelwert aus 29 Messungen dar; der schattiert eingezeichnete Bereich gibt die doppelte Unsicherheit an.

Unter der Annahme einer elektrischen Feldstärke von $E=(0.65\pm0.04)\,\frac{\rm V}{\rm cm}^{10}$ lässt sich die experimentell erhaltene Linienform reproduzieren, wenn für die Linien der einzelnen |M|-Unterniveaus Gauß-Kurven mit einer vollen Halbwertsbreite von (110 ± 40) kHz angesetzt werden (siehe grüne Linien in Abbildung 7.13). Demnach ist also unter Berücksichtigung der Doppler-Verbreiterung von knapp $50\,\rm kHz$ tatsächlich sogar eher eine kombinierte Laserlinienbreite im Bereich von knapp unter $100\,\rm kHz$ realistisch.

Zum Abschluss ist in Abbildung 7.14 der im Rahmen dieser Arbeit gemachte Fortschritt anhand von Spektren über die Dimer-Molekülzustände und die Doppellinie des atomaren Rydberg-Zustandes ($m_j=\pm\frac{1}{2}$) dargestellt. Die Reduzierung der Linienbreite und Erhöhung der Auflösung um jeweils eine Größenordnung ist deutlich zu erkennen.

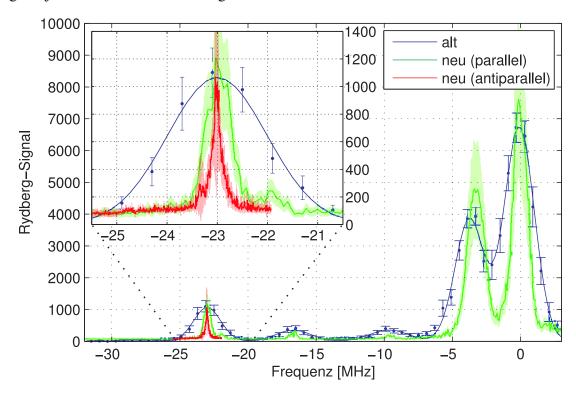


Abb. 7.14: Vergleich des alten Aufbaus (Messpunkte und angepasste Kurve, blau), des neuen Aufbaus (grün) und des neuen Aufbaus mit antiparalleler Einstrahlung der beiden Anregungslaser zur Reduktion des Doppler-Effekts: Spektren des 35s-Rydberg-Zustandes und der Dimer-Moleküle im Grundzustand (in der Einfügung vergrößert dargestellt) sowie zweier angeregter Zustände. Die experimentellen Daten stellen den Mittelwert aus jeweils 50, 10 bzw. 29 Messungen dar; als Fehlerbereich ist die doppelte Unsicherheit angegeben (als Fehlerbalken bzw. schattiert). Die exakte spektrale Position der Messung mit antiparalleler Einstrahlung ist wegen der fehlenden Referenz der atomaren Rydberg-Linie nicht bekannt.

¹⁰Dies entspricht in etwa dem sechsfachen Wert des elektrischen Feldes ohne angelegte Spannung (siehe Abschnitt 7.3.1).

8 Zusammenfassung

In einer vorausgehenden Charakterisierung (Abschnitt 6.3) wurde die Effizienz des Systems zur Detektion der Rydberg-Atome und Moleküle untersucht. Dabei wurde festgestellt, dass die Verstärkung der zur Ionendetektion in der Kammer verwendeten Mikrokanalplatte um etwa eine Größenordnung unter dem vom Hersteller angegebenen Wert liegt. Eine mögliche Erklärung wären dabei natürliche Alterungsprozesse. Trotzdem konnten mit diesem Aufbau noch verwertbare Ergebnisse erzielt werden.

So wurde mit dem bestehenden Aufbau die Existenz von Rydberg-Trimeren, gebundenen Zuständen aus einem Rydberg-Atom und zwei Grundzustandsatomen, experimentell gezeigt (Abschnitt 7.1). Dies stellt den erstmaligen Nachweis der Photoassoziation von mehr als zwei Teilchen dar [74]. Mit dem Fermi-Greene-Modell wurde eine einfache theoretische Beschreibung des zugrundeliegenden Bindungsmechanismus vorgestellt, die die im Experiment bestimmte Bindungsenergie auch qualitativ erklären kann (Abschnitt 5.2.2).

Unter Einsatz des verbesserten Aufnahmesystems wurden die Lebensdauern des atomaren und der verschiedenen molekularen Rydberg-Zustände des 35s-Zustandes untersucht (Abschnitt 7.2). Mithilfe theoretischer Überlegungen und Vergleichen mit der Literatur konnte festgestellt werden, dass die gemessenen Lebensdauern ein Maß für die Zerfallsrate durch spontane Emission ohne Berücksichtigung von Schwarzkörperstrahlung und anderen zusätzlichen Zerfallskanälen darstellen. Für die festgestellte Reduktion der Lebensdauer der Molekülzustände relativ zum freien Rydberg-Atom konnte ein erster Erklärungsansatz gegeben werden, der auf verschiedenen Ionisationsprozessen basiert.

Mit dem neuen stabiliserten Lasersystem zur Rydberg-Anregung wurde der Stark-Effekt der zweiatomigen Rydberg-Moleküle im Grundzustand untersucht (Abschnitt 7.3). Neben einer quadratischen Linienverschiebung, die weitgehend dem Stark-Effekt des Rydberg-Atoms entspricht, wurde in nächster Ordnung eine mit wachsender elektrischer Feldstärke zunehmende Aufspaltung der Linie festgestellt. Hierfür konnte mit dem Stark-Effekt von Molekülen unter Berücksichtigung der Rotationsstruktur ein Erklärungsansatz gegeben werden. Dazu wurden erste Vergleiche mit theoretischen Berechnungen unter Verwendung der Störungstheorie bis einschließlich vierter Ordnung im Modell des starren Rotators (Abschnitt 5.3) angestellt. Diese legen die Existenz eines permanenten Dipolmomentes in der Größenordnung von etwa einem Debye sowie das Auftreten einer leichten Asymmetrie des molekularen Polarisierbarkeitstensors nahe. Zudem stellt dies einen indirekten Nachweis der Rotationsstruktur dar, die ohne äußeres elektrisches Feld auch mit dem optimierten Aufbau noch nicht aufgelöst werden kann. Somit konnten nun erstmals auch bei den weitausgedehnten Rydberg-Molekülen typische Moleküleigenschaften beobachtet werden.

Schließlich wurde im letzten Abschnitt 7.4 nachgewiesen, dass sich die kombinierte Linienbreite des Lasersystems zur Rydberg-Anregung tatsächlich im Bereich um $100\,\mathrm{kHz}$ bewegt und die Auflösung der Spektroskopie in der verwendeten Konfiguration nun durch die Doppler-Verbreiterung limitiert ist. Somit wurden die Linienbreitenmessungen aus Teil I bestätigt.

Ausblick

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Verbesserungen am experimentellen Aufbau bilden die Basis für eine ganze Reihe weitergehender Untersuchungen. Die Stabilisierung des Lasersystems zur Rydberg-Anregung, die zu einer Reduzierung der kombinierten Linienbreite um eine Größenordnung auf unter 100 kHz geführt hat, nimmt hierbei eine Schlüsselrolle ein. Zusammen mit dem verbesserten System zur Detektion von Rydberg-Atomen und Molekülen steht nun eine bisher unerreichte spektrale Auflösung zur Verfügung.

Dies erlaubt zunächst eine weitaus genauere Untersuchung der bereits in dieser Arbeit betrachteten weitausgedehnten Rydberg-Moleküle. So ist nun die Auflösung weiterer angeregter Niveaus möglich, für deren Existenz bereits erste Anzeichen festgestellt werden konnten (siehe Abschnitt 7.4). Eine genaue Kenntnis dieser Zustände wird zu einem besseren theoretischen Verständnis des diesen Molekülen zugrundeliegenden Bindungsmechanismus beitragen. Die dabei auftretenden Effekte gehen weit über die bisher bekannten Bereiche der Quantenchemie hinaus. So konnten bereits einige gebundene Zustände auf eine Quantenreflektion des Grundzustands-

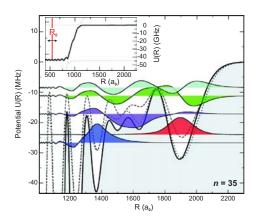


Abb. 8.1: Molekülzustände [74]

atoms an einer Streuresonanz des Rydberg-Elektrons zurückgeführt werden [74]. Gleichzeitig können die gewonnenen Daten zur Aufklärung der Prozesse führen, die für die Reduzierung der Lebensdauer der Rydberg-Molekülen relativ zu den ungebundenen Rydberg-Atomen verantwortlich sind. Bislang konnte hierfür noch keiner der denkbaren Zerfallskanäle zweifelsfrei nachgewiesen werden.

Weitere Erkenntnisse sind zudem hinsichtlich der Eigenschaften der untersuchten weitausgedehnten Rydberg-Moleküle zu erwarten. Wie bereits in dieser Arbeit gezeigt werden konnte, lässt sich mit dem stabilisierten Lasersystem die Rotationsstruktur der Moleküle im elektrischen Feld zumindest teilweise auflösen. Messungen bei niedrigeren Feldstärken sollten nun auch einen quantitativen Vergleich mit den Ergebnissen der störungstheoretischen Behandlung des Stark-Effekts erlauben. Eine Simulation der zu erwartenden Aufspaltung mit den in Abschnitt 7.3 gefundenen Parametern unter Annahme der nun zur Verfügung stehenden Auflösung

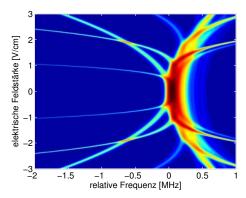


Abb. 8.2: Molekularer Stark-Effekt

118 Ausblick

ist in Abbildung 8.2 gezeigt. Neben Messwerten für das permanente Dipolmoment und den Polarisierbarkeitstensor des Moleküls können solche Experimente auch Hinweise auf mögliche Änderungen der Moleküleigenschaften durch die Rotation liefern. Solche Effekte dürften aufgrund der schwachen Bindung weitaus stärker ausfallen als bei kovalent gebundenen Molekülen.

In einem nächsten Schritt ist nun auch die Erzeugung anderer exotischer Moleküle durch Photoassoziation denkbar: Mit den dreiatomigen weitausgedehnten Rydberg-Molekülen wurde in dieser Arbeit bereits ein erstes Mitglied einer ganzen Klasse höherer Rydberg-Oligomere erzeugt, bei denen ein Rydberg-Elektron mehrere Grundzustandsatome bindet. Berechnungen der Struktur solcher Moleküle aus bis zu fünf Atomen existieren bereits [73]. Zudem gibt es gleich zwei weitere ähnliche Molekülklassen, die zwar theoretisch vorhergesagt werden, aber bislang noch nicht nachgewiesen wurden. Bei den Schmetterlings-Molekülen

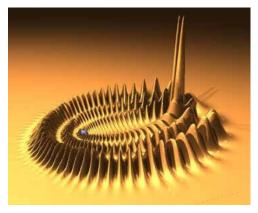


Abb. 8.3: Trilobiten-Molekül [24]

[114] handelt es sich um gebundene Zustände eines Rydberg-Atoms und eines Grundzustandsatoms, bei dem sich die Bindung erst aus der zweiten Ordnung der Streutheorie, der p-Wellen-Streuung erschließt. Als Trilobiten-Moleküle [24] werden dagegen weitausgedehnte Rydberg-Moleküle bezeichnet, bei denen sich das Rydberg-Atom in einem Zustand mit hohem Bahndrehimpuls befindet. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte des Rydberg-Elektrons in einem solchen Molekül ist in Abbildung 8.3 dargestellt. Gerade die Erzeugung dieser Art von Molekülen ist von großem Interesse, da deren permanentes Dipolmoment laut theoretischen Voraussagen [24] mit mehreren Tausend Debye für ein homonukleares Molekül extrem hohe Werte annehmen kann.

Alternativ zu der nun möglichen hochauflösenden Photoassoziationsspektroskopie lässt sich die im Rahmen dieser Arbeit erzielte hohe Stabilität des Lasersystems auch zur Beobachtung von Effekten nutzen, bei denen die Kohärenzeigenschaften des Anregungslichts von Bedeutung sind. Dies umfasst zum Einen Experimente zur kohärenten Manipulation der bereits erzeugten weitausgedehnten Rydberg-Moleküle. So erlauben Echo-Experimente [115] die Untersuchung der Dekohärenz des Systems durch Wechselwirkung der Moleküle. Diese Untersuchung könnte sich auch als grundlegend hinsichtlich einer eventuellen Anwendung dieser Moleküle in der Quanteninformationsverarbeitung erweisen [116][117].

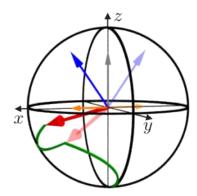


Abb. 8.4: Echo-Experiment: Bloch-Kugel [115]

Ausblick 119

Zum Anderen lassen sich die Kohärenzeigenschaften des Lasersystems auch abseits der Molekülphysik nutzen. Eine Vielzahl von Experimenten zur Untersuchung und Manipulation der interatomaren Wechselwirkungen in einem stark wechselwirkenden Rydberg-Gas ist denkbar. Erste Untersuchungen der van-der-Waals-Wechselwirkung und der dadurch bedingten Dephasierung des Systems durch Raitzsch et al. [115] waren durch die Stabilität des Lasersystems beschränkt. Die mit der neuen Stabilisierung zu erwartende Kohärenzzeit des Anregungs-

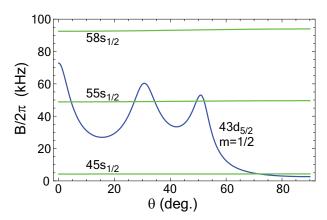


Abb. 8.5: Winkelabhängigkeit der Wechselwirkung [116]

lichts im Bereich von 10 µs erlaubt nun auch eine quantitative Analyse dieser Effekte. In einem Bose-Einstein-Kondensat [118] lässt sich die Wechselwirkung zwischen den Atomen aufgrund der dort auftretenden hohen Dichte direkt untersuchen. Die Art und Stärke der Wechselwirkung lässt sich hierbei über Förster-Resonanzen zum Beispiel durch Anlegen eines elektrischen Feldes steuern. Dabei tritt eine Winkelabhängigkeit auf, die für den angeregten Rydberg-Zustand charakteristisch ist (siehe Abbildung 8.5). Theoretische Untersuchungen [119] lassen zudem im Fernfeld eine Dipol-Dipol-Wechselwirkung mit einem permanenten Dipolmoment erwarten, das über dem der bisher zur Untersuchung dipolarer Quantengase verwendeten polaren Moleküle [120][121] und Atome [122] liegen kann.

Weitergehende Analysen der Wechselwirkung könnten schließlich den Nachweis einer kristallinen Phase und eines Quantenphasenübergangs zweiter Ordnung zum Ziel haben. Diese Effekte wurden theoretisch im Rahmen der statistischen Mechanik vorausgesagt [123]. In diesem Modell wird die Rydberg-Anregung als Pseudo-Spin beschrieben. Der Zustand des stark wechselwirkenden Quantengases lässt sich dann in einem Phasendiagramm darstellen (siehe Abbildung 8.6). Dabei sind die kollektive Rabi-Frequenz Ω und die Verstimmung Δ des Anregungslichts die Zustandsgrößen des Systems. Die experimentelle Erzeugung der kristallinen Phase (C) erfolgt durch eine adiabatische Anregung des System aus dem Grundzustand ohne Rydberg-Anregung, dargestellt durch eine paramagnetische

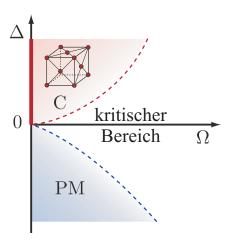


Abb. 8.6: Phasendiagramm [123]

Phase (PM). Der Weg im Phasendiagramm muss dabei durch adiabatische Veränderung der Leistung und der Frequenz des Anregungslichts so gewählt werden, dass der Punkt mit verschwindender Rabifrequenz ($\Omega=0$) umgangen wird [123]. Da der gesamte Prozess zudem kohärent ablaufen muss, stellt die Kohärenzzeit des Anregungslasersystems hier den begrenzenden Faktor hinsichtlich der Adiabatizität dar. Mit der neuen Stabilisierung stehen nun Kohärenzzeiten in der Größenordnung von $10\,\mu s$ zur Verfügung, wodurch nun auch solche Experimente in den Bereich des Möglichen rücken.



A Berechnungen zum verzögerten Selbst-Heterodyn-Verfahren

A.1 Zum Modell des Laserspektrums

A.1.1 Herleitung von Gleichung (1.14)

Einsetzen der Definition der Autokorrelationsfunktion Q(t-t') der Kreisfrequenzfluktuationen $\omega(t)$ (Gleichung (1.13)) in Gleichung (1.12) liefert:

$$\left\langle \Delta \phi^2(t,\tau) \right\rangle = \int_t^{t+\tau} \int_t^{t+\tau} Q(t'-t'') \, dt' dt'' \tag{A.1}$$

Mit allgemeinen Integrationsgrenzen a, b, c und d folgt durch partielle Integration über t':

$$\int_{a}^{b} \int_{c}^{d} Q(t'-t'') dt' dt'' = \left[t' \int_{c}^{d} Q(t'-t'') dt'' \right]_{a}^{b} - \int_{a}^{b} t' \frac{d}{dt'} \left(\int_{c}^{d} Q(t'-t'') dt'' \right) dt''$$

$$= b \int_{c}^{d} Q(b-t'') dt'' - a \int_{c}^{d} Q(a-t'') dt''$$

$$- \int_{a}^{b} t' \int_{c}^{d} \left(-\frac{d}{dt''} Q(t'-t'') \right) dt'' dt'$$

$$= -b \int_{b-c}^{b-d} Q(t') dt' + a \int_{a-c}^{a-d} Q(t') dt' + \int_{a}^{b} t' \left(Q(t'-d) - Q(t'-c) \right) dt'$$

$$= -\int_{b-c}^{b-d} bQ(t') dt' + \int_{a-c}^{a-d} aQ(t') dt' + \int_{a-d}^{b-d} (t'+d)Q(t') dt'$$

$$- \int_{c}^{b-c} (t'+c)Q(t') dt'$$
(A.2)

Im Spezialfall c = a, d = b folgt dann:

$$\int_{a}^{b} \int_{a}^{b} Q(t'-t'') dt' dt'' = -\int_{b-a}^{0} bQ(t') dt' + \int_{0}^{a-b} aQ(t') dt' + \int_{a-b}^{0} (t'+b)(Q(t') dt') dt' - \int_{0}^{b-a} (t'+a)Q(t') dt' dt'$$

$$= -\int_{0}^{b-a} (t'+a-b)Q(t') dt' + \int_{a-b}^{0} (t'-a+b)Q(t') dt'$$

$$= 2\int_{0}^{b-a} (b-a-t')Q(t') dt' \qquad (A.3)$$

Wobei im letzten Schritt ausgenutzt wurde, dass die Autokorrelationsfunktion Q(t) eine gerade Funktion in t ist, was direkt aus der Definition in Gleichung (1.13) folgt. Für den Spezialfall $a=0,b=\tau$ folgt damit unmittelbar Gleichung (1.14).

A.1.2 Herleitung von Gleichung (1.15)

Die Autokorrelationsfunktion Q(t) der Kreisfrequenz $\omega(t)$ in Gleichung (1.14) lässt sich nach dem Wiener- Kintchine-Theorem (siehe Abschnitt 1.2) durch die Fourier-Rücktransformation des zugeordneten Leistungsspektrums $S_{\phi}(\omega)$ ausdrücken:

$$Q(t) = \mathcal{F}^{-1} S_{\phi}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} S_{\phi}(\omega) e^{i\omega t} d\omega$$
 (A.4)

Eingesetzt in Gleichung (1.14) lässt sich die Integration über die Zeit t ausführen:

$$\langle \Delta \phi^{2}(t,\tau) \rangle = 2 \int_{0}^{\tau} (\tau - t) \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} S_{\phi}(\omega) e^{i\omega t} d\omega dt$$

$$= \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} S_{\phi}(\omega) \int_{0}^{\tau} (\tau - t) e^{i\omega t} dt d\omega$$

$$= \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} S_{\phi}(\omega) \left(\left[\frac{1}{i\omega} (\tau - t) e^{i\omega t} \right]_{0}^{\tau} + \frac{1}{i\omega} \int_{0}^{\tau} e^{i\omega t} dt \right) d\omega$$

$$= \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} S_{\phi}(\omega) \left[-\frac{\tau}{i\omega} - \frac{1}{\omega^{2}} \left(e^{i\omega\tau} - 1 \right) \right] d\omega$$

$$= \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} S_{\phi}(\omega) \left[-\frac{\tau}{i\omega} - \frac{2i}{\omega^{2}} e^{i\frac{\omega\tau}{2}} \sin\left(\frac{\omega\tau}{2}\right) \right] d\omega$$

$$= \frac{2}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} S_{\phi}(\omega) \left[-\frac{\tau}{2i\omega} - \frac{1}{\omega^{2}} \left(i\cos\left(\frac{\omega\tau}{2}\right) - \sin\left(\frac{\omega\tau}{2}\right) \right) \sin\left(\frac{\omega\tau}{2}\right) \right] d\omega$$

$$\langle \Delta \phi^{2}(t,\tau) \rangle = \frac{2}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} S_{\phi}(\omega) \left[\frac{\sin\left(\frac{\omega\tau}{2}\right)}{\omega} \right]^{2} d\omega$$
(A.5)

Hierbei wurde im letzten Schritt ausgenutzt, dass das Spektrum $S_{\phi}(\omega)$ eine gerade Funktion in der Kreisfrequenz ω ist und das Integral über die ungeraden Integranden verschwindet.

A.1.3 Fourier-Transformation von (1.21)

Das Laserspektrum $S_E(\omega)$ ergibt sich nach dem Wiener-Kintchine-Theorem (siehe Abschnitt 1.2 und [33]) durch Fourier-Transformation der Autokorrelationsfunktion des elektrischen Feldes $G_E^{(1)}(\tau)$ aus Gleichung (1.21) unter Verwendung des mittleren quadratischen Phasenrau-

schens aus Gleichung (1.17):

$$S_{E}(\omega) = \mathcal{F}G_{E}^{(1)}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} G_{E}^{(1)}(\tau)e^{-i\omega\tau}d\tau$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} E_{0}^{2}e^{i\omega_{0}\tau}e^{-\frac{1}{2}S_{0}|\tau|}e^{-i\omega\tau}d\tau$$

$$= E_{0}^{2} \int_{-\infty}^{0} e^{-i(\omega-\omega_{0})\tau}e^{\frac{1}{2}S_{0}\tau}d\tau + E_{0}^{2} \int_{0}^{\infty} e^{-i(\omega-\omega_{0})\tau}e^{-\frac{1}{2}S_{0}\tau}d\tau$$

$$= E_{0}^{2} \int_{0}^{\infty} (e^{i(\omega-\omega_{0})\tau} + e^{-i(\omega-\omega_{0})\tau})e^{-\frac{1}{2}S_{0}\tau}d\tau$$

$$= 2E_{0}^{2} \int_{0}^{\infty} \cos((\omega-\omega_{0})\tau)e^{-\frac{1}{2}S_{0}\tau}d\tau$$

$$S_{E}(\omega) = 2E_{0}^{2} \frac{\frac{1}{2}S_{0}}{(\frac{1}{2}S_{0})^{2} + (\omega-\omega_{0})^{2}}$$
(A.6)

Das Integral im letzten Schritt erhält man hierbei einfach durch zweimalige partielle Integration. Das Ergebnis ist Gleichung 1.22.

A.2 Zum Modell des detektierten Schwebungssignals

A.2.1 Herleitung von Gleichung (1.44)

Zunächst ergibt sich für die Intensität des Gesamtfeldes $E_g(t)$ aus (1.43) mit E(t) aus (1.9):

$$E_{g}(t)E_{g}^{*}(t) = E_{0}^{2} \left(e^{i(\omega_{0}t + \phi(t))} + \alpha e^{i(\omega_{0}(t + \tau_{0}) + \phi(t + \tau_{0}))} e^{i\Omega t} \right) \left(e^{-i(\omega_{0}t + \phi(t))} + \alpha e^{-i(\omega_{0}(t + \tau_{0}) + \phi(t + \tau_{0}))} e^{-i\Omega t} \right)$$

$$= E_{0}^{2} \left(1 + \alpha^{2} + \alpha e^{i(\omega_{0}\tau_{0} + \phi(t + \tau_{0}) - \phi(t))} e^{i\Omega t} + \alpha e^{-i(\omega_{0}\tau_{0} + \phi(t + \tau_{0}) - \phi(t))} e^{-i\Omega t} \right)$$
(A.7)

Damit lässt sich die Autokorrelationsfunktion der Intensität aus Gleichung (1.42) berechnen:

$$G_{E_g}^{(2)}(\tau) = \left\langle E_g(t) E_g^*(t) E_g(t + \tau) E_g^*(t + \tau) \right\rangle$$

$$= \left\langle E_0^4 \left(1 + \alpha^2 + \alpha e^{i(\omega_0 \tau_0 + \phi(t + \tau_0) - \phi(t))} e^{i\Omega t} + \alpha e^{-i(\omega_0 \tau_0 + \phi(t + \tau_0) - \phi(t))} e^{-i\Omega t} \right)$$

$$\left(1 + \alpha^2 + \alpha e^{i(\omega_0 \tau_0 + \phi(t + \tau + \tau_0) - \phi(t + \tau))} e^{i\Omega(t + \tau)} + \alpha e^{-i(\omega_0 \tau_0 + \phi(t + \tau + \tau_0) - \phi(t + \tau))} e^{-i\Omega(t + \tau)} \right) \right\rangle$$

$$= E_0^4 \left((1 + \alpha^2)^2 + \alpha^2 e^{i(\phi(t + \tau + \tau_0) - \phi(t + \tau) - \phi(t + \tau_0) + \phi(t))} e^{i\Omega \tau} + c.c. \right)$$

$$+ \alpha (1 + \alpha^2) e^{i(\omega_0 \tau_0 + \phi(t + \tau_0) - \phi(t))} e^{i\Omega t} + c.c. + \alpha (1 + \alpha^2) e^{i(\omega_0 \tau_0 + \phi(t + \tau + \tau_0) - \phi(t + \tau))} e^{i\Omega(t + \tau)} + c.c.$$

$$+ \alpha^2 e^{i(2\omega_0 \tau_0 + \phi(t + \tau + \tau_0) + \phi(t + \tau_0) - \phi(t + \tau) - \phi(t))} e^{i\Omega(t + \tau)} + c.c. \right) \tag{A.8}$$

Die in der Zeit *t* oszillierenden Terme verschwinden im zeitlichen Mittel und es folgt mit der Substitution (1.45):

$$G_{E_g}^{(2)}(\tau) = E_0^4 \left((1 + \alpha^2)^2 + \alpha^2 e^{i(\Phi(t + \tau_0) - \Phi(t))} e^{i\Omega\tau} + c.c. \right)$$

= $E_0^4 \left((1 + \alpha^2)^2 + \alpha^2 e^{i\Delta\Phi(t, \tau_0)} e^{i\Omega\tau} + \alpha^2 e^{-i\Delta\Phi(t, \tau_0)} e^{-i\Omega\tau} \right)$ (A.9)

A.2.2 Herleitung von Gleichung (1.46)

Unter der Voraussetzung, dass das Phasenrauschen $\Delta\phi(t,\tau)$ eine zufällige Verteilung um $\phi=0$ aufweist, lässt sich die Relation (1.20) auf Gleichung (1.44) bzw. (A.9) anwenden und man erhält

$$G_{E_g}^{(2)}(\tau) = E_0^4 \left((1 + \alpha^2)^2 + 2\alpha^2 \cos(\Omega \tau) e^{-\frac{1}{2} \langle \Delta \Phi^2(t, \tau) \rangle} \right)$$
 (A.10)

Der Zeitmittelwert im Exponenten lässt sich mit Gleichung (1.11) und der Autokorrelationsfunktion Q(t) der Kreisfrequenz $\omega(t)$ aus (1.13) umschreiben:

$$\begin{split} \left\langle \Delta \Phi^{2}(t,\tau) \right\rangle &= \left\langle (\phi(t+\tau+\tau_{0}) - \phi(t+\tau) - \phi(t+\tau_{0}) - \phi(t))^{2} \right\rangle \\ &= \left\langle \left(\int_{t+\tau}^{t+\tau+\tau_{0}} \omega(t') dt' + \int_{t}^{t+\tau_{0}} \omega(t') dt' \right)^{2} \right\rangle \\ &= \int_{t+\tau}^{t+\tau+\tau_{0}} dt' \int_{t+\tau}^{t+\tau+\tau_{0}} dt'' Q(t'-t'') + \int_{t}^{t+\tau_{0}} dt' \int_{t}^{t+\tau_{0}} dt'' Q(t'-t'') \\ &- 2 \int_{t+\tau}^{t+\tau+\tau_{0}} dt' \int_{t}^{t+\tau_{0}} dt'' Q(t'-t'') \end{split} \tag{A.11}$$

Anwendung der Gleichungen (A.2) und (A.3) mit den entsprechenden Integrationsgrenzen führt auf:

$$\begin{split} \left< \Delta \Phi^2(t,\tau) \right> &= 4 \int_0^{\tau_0} (\tau_0 - t') Q(t') dt' - 2 \left(- \int_{\tau + \tau_0}^{\tau} (t + \tau + \tau_0) Q(t') dt' + \int_{\tau}^{\tau - \tau_0} (t + \tau) Q(t') dt' \right. \\ &+ \int_{\tau - \tau_0}^{\tau} (t' + t + \tau_0) Q(t') dt' - \int_{\tau}^{\tau + \tau_0} (t' + t) Q(t') dt' \right) \\ &= 4 \int_0^{\tau_0} (\tau_0 - t') Q(t') dt' - 2 \left(\int_{\tau}^{\tau + \tau_0} (\tau + \tau_0 - t') Q(t') dt' + \int_{\tau}^{\tau - \tau_0} (\tau - \tau_0 - t') Q(t') dt' \right) \\ &= 4 \int_0^{\tau_0} (\tau_0 - t') Q(t') dt' - 2 \left(\int_0^{\tau + \tau_0} (\tau + \tau_0 - t') Q(t') dt' + \int_0^{\tau - \tau_0} (\tau - \tau_0 - t') Q(t') dt' \right. \\ &- \int_0^{\tau} (\tau + \tau_0 - t' + \tau - \tau_0 - t') Q(t') dt' \right) \\ &\left< \Delta \Phi^2(t,\tau) \right> = 4 \int_0^{\tau_0} (\tau_0 - t') Q(t') dt' + 4 \int_0^{\tau} (\tau - t') Q(t') dt' - 2 \int_0^{\tau + \tau_0} (\tau + \tau_0 - t') Q(t') dt' \right. \\ &- 2 \int_0^{\tau - \tau_0} (\tau - \tau_0 - t') Q(t') dt' \end{split} \tag{A.12}$$

Mit Hilfe von Gleichung (1.14) lässt sich die Autokorrelationsfunktion Q(t') dann wieder durch das mittlere quadratische Phasenrauschen $\langle \Delta \phi^2 \rangle$ ersetzen:

$$\langle \Delta \Phi^{2}(t,\tau) \rangle = 2 \langle \Delta \phi^{2}(t,\tau_{0}) \rangle + 2 \langle \Delta \phi^{2}(t,\tau) \rangle - \langle \Delta \phi^{2}(t,\tau+\tau_{0}) \rangle - \langle \Delta \phi^{2}(t,\tau-\tau_{0}) \rangle$$
 (A.13)

Für ein weißes Fluktuationsspektrum der Kreisfrequenz $S_{\phi}(\omega) = S_0$ lässt sich $\langle \Delta \phi^2(t,\cdot) \rangle$ mit Gleichung (1.17) durch $S_0|\cdot|$ ersetzen:

$$\langle \Delta \Phi^2(t,\tau) \rangle = S_0 (2|\tau| + 2|\tau_0| - |\tau + \tau_0| - |\tau - \tau_0|)$$
 (A.14)

Eingesetzt in Gleichung (A.10) erhält man für nichtnegative Verzögerungszeiten τ_0 :

$$G_{E_g}^{(2)}(\tau) = E_0^4 \left((1 + \alpha^2)^2 + 2\alpha^2 \cos(\Omega \tau) exp \left\{ \begin{array}{ll} -S_0 |\tau| & \text{für } |\tau| \le \tau_0 \\ -S_0 \tau_0 & \text{für } |\tau| > \tau_0 \end{array} \right\} \right) \tag{A.15}$$

Diese Gleichung entspricht dem Ergebnis von [34] und enthält die in [33] fehlenden Betragsstriche.

A.2.3 Fourier-Transformation von Gleichung (1.46)

Das Leistungsspektrum der detektierten Intensität $S_I(\omega)$ ergibt sich nach dem Wiener-Kintchine-Theorem (siehe Abschnitt 1.2) durch Fourier-Transformation der Autokorrelationsfunktion der Intensität $G_{E_q}^{(2)}(\tau)$ aus Gleichung (1.46) bzw. (A.15) [34][33][26]:

$$\begin{split} S_{I}(\omega) &= \mathcal{F}G_{E_g}^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} G_{E_g}^{(2)}(\tau) e^{-i\omega\tau} d\tau \\ \frac{S_{I}(\omega)}{E_{0}^{4}} &= (1+\alpha^{2})^{2} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\omega\tau} d\tau + 2\alpha^{2} \left\{ \int_{-\infty}^{-\tau_{0}} \cos(\Omega\tau) e^{-S_{0}\tau_{0}} e^{-i\omega\tau} d\tau + \int_{-\tau_{0}}^{\tau_{0}} \cos(\Omega\tau) e^{-S_{0}|\tau|} e^{-i\omega\tau} d\tau \right. \\ &+ \int_{\tau_{0}}^{\infty} \cos(\Omega\tau) e^{-S_{0}\tau_{0}} e^{-i\omega\tau} d\tau \right\} \\ &= (1+\alpha^{2})^{2} 2\pi \delta(\omega) + 2\alpha^{2} \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} \cos(\Omega\tau) e^{-S_{0}\tau_{0}} e^{-i\omega\tau} d\tau - \int_{-\tau_{0}}^{\tau_{0}} \cos(\Omega\tau) e^{-S_{0}\tau_{0}} e^{-i\omega\tau} d\tau \right. \\ &+ \int_{-\tau_{0}}^{0} \cos(\Omega\tau) e^{S_{0}\tau} e^{-i\omega\tau} d\tau + \int_{0}^{\tau_{0}} \cos(\Omega\tau) e^{-S_{0}\tau} e^{-i\omega\tau} d\tau \right\} \\ &= (1+\alpha^{2})^{2} 2\pi \delta(\omega) + 2\alpha^{2} \left\{ e^{-S_{0}\tau_{0}} \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \left(e^{-i(\omega-\Omega)\tau} + e^{-i(\omega+\Omega)\tau} \right) d\tau \right. \\ &- e^{-S_{0}\tau_{0}} \frac{1}{2} \int_{-\tau_{0}}^{\tau_{0}} \left(e^{-i(\omega-\Omega)\tau} + e^{-i(\omega+\Omega)\tau} \right) d\tau + \int_{0}^{\tau_{0}} \cos(\Omega\tau) e^{-S_{0}\tau} \left(e^{i\omega\tau} + e^{-i\omega\tau} \right) d\tau \right\} \\ &= (1+\alpha^{2})^{2} 2\pi \delta(\omega) + 2\alpha^{2} \left\{ e^{-S_{0}\tau_{0}} \pi \left(\delta(\omega-\Omega) + \delta(\omega+\Omega) \right) \right. \\ &+ e^{-S_{0}\tau_{0}} \frac{1}{2i} \left[\frac{1}{\omega-\Omega} e^{-i(\omega-\Omega)\tau} + \frac{1}{\omega+\Omega} e^{-i(\omega+\Omega)\tau} \right]_{-\tau_{0}}^{\tau_{0}} + \int_{0}^{\tau_{0}} \cos(\Omega\tau) e^{-S_{0}\tau} 2 \cos(\omega\tau) d\tau \right\} \\ &= (1+\alpha^{2})^{2} 2\pi \delta(\omega) + 2\alpha^{2} \left\{ e^{-S_{0}\tau_{0}} \pi \left(\delta(\omega-\Omega) + \delta(\omega+\Omega) \right) - e^{-S_{0}\tau_{0}} \left(\frac{\sin((\omega-\Omega)\tau)}{\omega-\Omega} + \frac{\sin((\omega+\Omega)\tau)}{\omega+\Omega} \right) + \int_{0}^{\tau_{0}} \left(\cos((\omega-\Omega)\tau) + \cos((\omega+\Omega)\tau) \right) e^{-S_{0}\tau} d\tau \right\} \end{split}$$

$$\frac{S_{I}(\omega)}{E_{0}^{4}} = (1 + \alpha^{2})^{2} 2\pi \delta(\omega) + 2\alpha^{2} \left\{ e^{-S_{0}\tau_{0}} \pi \left(\delta(\omega - \Omega) + \delta(\omega + \Omega) \right) - e^{-S_{0}\tau_{0}} \left(\frac{\sin((\omega - \Omega)\tau)}{\omega - \Omega} \right) + \frac{\sin((\omega + \Omega)\tau)}{\omega + \Omega} \right\} + \frac{S_{0}}{S_{0}^{2} + (\omega - \Omega)^{2}} \left[1 - e^{-S_{0}\tau_{0}} \left(\cos((\omega - \Omega)\tau_{0}) - \frac{\omega - \Omega}{S_{0}} \sin((\omega - \Omega)\tau_{0}) \right) \right]$$

$$\frac{S_{0}}{S_{0}^{2} + (\omega + \Omega)^{2}} \left[1 - e^{-S_{0}\tau_{0}} \left(\cos((\omega + \Omega)\tau_{0}) - \frac{\omega + \Omega}{S_{0}} \sin((\omega + \Omega)\tau_{0}) \right) \right] \right\} \tag{A.16}$$

$$\frac{S_{I}(\omega)}{E_{0}^{4}} = (1 + \alpha^{2})^{2} 2\pi \delta(\omega) + \alpha^{2} e^{-S_{0}\tau_{0}} 2\pi \delta(\omega - \Omega))
+ 2\alpha^{2} \frac{S_{0}}{S_{0}^{2} + (\omega - \Omega)^{2}} \left[1 - e^{-S_{0}\tau_{0}} \left(\cos((\omega - \Omega)\tau_{0}) + S_{0}\tau_{0} \frac{\sin((\omega - \Omega)\tau_{0})}{(\omega - \Omega)\tau_{0}} \right) \right]
+ 2\alpha^{2} \frac{S_{0}}{S_{0}^{2} + (\omega + \Omega)^{2}} \left[1 - e^{-S_{0}\tau_{0}} \left(\cos((\omega + \Omega)\tau_{0}) + S_{0}\tau_{0} \frac{\sin((\omega + \Omega)\tau_{0})}{(\omega + \Omega)\tau_{0}} \right) \right]$$
(A.17)

Hierbei handelt es sich um ein zu $\omega=0$ symmetrisches zweiseitiges Spektrum. Gleichung (A.16) ist hierbei eine allgemeinere Lösung in der Form des Ergebnisses von [26]; Gleichung (A.17) entspricht bis auf einen Faktor 2π dem Ergebnis von [33] und auf einen Faktor 4 dem Ergebnis von [35]. Durch Beschränkung auf nichtnegative Frequenzen ω erhält man das einseitige Spektrum in Gleichung (1.46).

A.2.4 Fourier-Transformation der Lorentz-Kurve

Eine Lorentz-Kurve mit voller Halbwertsbreite 2b ist von der Form:

$$L(x) = \frac{b^2}{b^2 + x^2} \tag{A.18}$$

Das Integral in der Fourier-Transformierten lässt sich durch komplexe Integration unter Verwendung des Residuensatzes ausführen:

$$\begin{split} \mathcal{F}\left(L(x)\right)(y) &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{b^2}{b^2 + x^2} e^{-iyx} dx \\ &= \begin{cases} &\oint\limits_{C_1} \frac{b^2}{b^2 + x^2} e^{-iyx} dx - \lim\limits_{R \to \infty} \int\limits_{0}^{\pi} \frac{b^2}{b^2 + (Re^{iz})^2} e^{-iyRe^{iz}} iRe^{iz} dz & \text{für } y < 0 \\ &-\oint\limits_{C_2} \frac{b^2}{b^2 + x^2} e^{-iyx} dx + \lim\limits_{R \to \infty} \int\limits_{0}^{\pi} \frac{b^2}{b^2 + (Re^{-iz})^2} e^{-iyRe^{-iz}} (-i)Re^{-iz} dz & \text{für } y \geq 0 \end{cases} \\ &= \begin{cases} &2\pi i \mathop{Res}\limits_{x = ib} \frac{b^2}{b^2 + x^2} e^{-iyx} - \lim\limits_{R \to \infty} \int\limits_{0}^{\pi} \frac{ib^2 Re^{i(z - y \cos z)}}{b^2 + R^2 e^{2iz}} e^{-iyRi \sin z} dz & \text{für } y < 0 \\ &-2\pi i \mathop{Res}\limits_{x = -ib} \frac{b^2}{b^2 + x^2} e^{-iyx} + \lim\limits_{R \to \infty} \int\limits_{0}^{\pi} \frac{-ib^2 Re^{-i(z + y \cos z)}}{b^2 + R^2 e^{-2iz}} e^{-iyRi \sin (-z)} dz & \text{für } y \geq 0 \end{cases} \\ &= \begin{cases} &2\pi i \frac{b^2}{ib + ib} e^{-iy(-ib)} - \lim\limits_{R \to \infty} \int\limits_{0}^{\pi} \frac{ib^2 Re^{i(z - y \cos z)}}{b^2 + R^2 e^{2iz}} e^{yR \sin z} dz & \text{für } y < 0 \\ &-2\pi i \frac{b^2}{-ib - ib} e^{-iyib} + \lim\limits_{R \to \infty} \int\limits_{0}^{\pi} \frac{-ib^2 Re^{-i(z + y \cos z)}}{b^2 + R^2 e^{-2iz}} e^{-yR \sin z} dz & \text{für } y \geq 0 \end{cases} \end{split}$$

$$\mathcal{F}(L(x))(y) = \begin{cases} \pi b e^{-yb} - 0 & \text{für } y < 0\\ \pi b e^{yb} + 0 & \text{für } y \ge 0 \end{cases}$$

$$\mathcal{F}(L(x))(y) = \pi b e^{b|y|} \tag{A.19}$$

Hierbei musste im zweiten Schritt zwischen positivem und negativem y eine Fallunterscheidung eingeführt werden um die Konvergenz der Grenzwerte zu gewährleisten. Die Wege C_1 und C_2 beranden eine halbe Kreisscheibe mit Radius R um x=0 in der oberen bzw. unteren Halbebene (siehe Abbildung A.1).

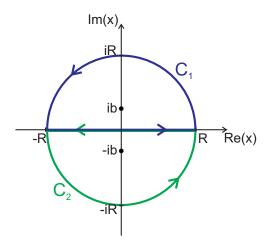


Abb. A.1: Skizze der Integrationswege $C_{1/2}$ in der komplexen Ebene zur Berechnung der Fourier-Transformation der Lorentz-Kurve, wobei in der Rechnung zum Grenzwert $R \to \infty$ übergegangen wird. Eingezeichnet sind zusätzlich die Polstellen $\pm ib$ von Gleichung (A.18).

A.2.5 Fourier-Transformation der Gauß-Kurve

Es wird eine Gauß-Kurve mit voller 1/e-Breite 2b betrachtet:

$$G(x) = e^{-\frac{x^2}{b^2}} (A.20)$$

Die Fourier-Transformation lässt sich mit Hilfe quadratischer Ergänzung ausführen:

$$\mathcal{F}(G(x))(y) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{x^2}{b^2}} e^{-iyx} dx$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{1}{b^2} \left(x^2 + ixb^2 y - \frac{b^4 y^2}{4} + \frac{b^4 y^2}{4}\right)} dx$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{1}{b^2} \left(x + \frac{ib^2 y}{2}\right)^2} dx \cdot e^{-\frac{b^2 y^2}{4}}$$

$$= b \int_{-\infty}^{\infty} e^{-z^2} dz \cdot e^{-\frac{b^2 y^2}{4}}$$

$$\mathcal{F}(G(x))(y) = \sqrt{\pi} b e^{-\frac{b^2 y^2}{4}}$$
(A.21)

A.2.6 Herleitung von Gleichung (1.40)

Nach Einsetzen des Voigt-förmigen Laserspektrums (siehe Abschnitt 1.3.2)

$$S_{E_{1/2}}(\omega) = \left(S_{G_{1/2}} \otimes S_{L_{1/2}}\right)(\omega) \tag{A.22}$$

in Gleichung (1.31) folgt durch zweimalige Variablensubstitution ¹:

$$S_{I_{x}}(\omega) \propto (S_{E_{1}} \otimes S_{E_{2}}) (\omega)$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} (S_{G_{1}} \otimes S_{L_{1}}) (\omega') (S_{G_{2}} \otimes S_{L_{2}}) (\omega - \omega') d\omega'$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} S_{G_{1}}(\omega_{1}) S_{V_{1}}(\omega' - \omega_{1}) S_{G_{2}}(\omega_{2}) S_{V_{2}}(\omega - \omega' - \omega_{2}) d\omega_{1} d\omega_{2} d\omega'$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} S_{G_{1}}(\omega_{1}) S_{G_{2}}(\omega_{2}) S_{V_{1}}(\omega'') S_{V_{2}}(\omega - \omega_{1} - \omega_{2} - \omega'') d\omega'' d\omega_{1} d\omega_{2}$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} S_{G_{1}}(\omega_{1}) S_{G_{2}}(\omega''' - \omega_{1}) S_{V_{1}}(\omega'') S_{V_{2}}(\omega - \omega''' - \omega'') d\omega'' d\omega''' d\omega_{1}$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} \left[\int_{-\infty}^{\infty} S_{G_{1}}(\omega_{1}) S_{G_{2}}(\omega''' - \omega_{1}) d\omega_{1} \right] \left[\int_{-\infty}^{\infty} S_{V_{2}}(\omega - \omega''' - \omega'') d\omega'' \right] d\omega'''$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} (S_{G_{1}} \otimes S_{G_{2}}) (\omega''') (S_{V_{1}} \otimes S_{V_{2}}) (\omega - \omega''') d\omega'''$$

$$S_{I_{x}}(\omega) \propto \left[(S_{G_{1}} \otimes S_{G_{2}}) \otimes (S_{V_{1}} \otimes S_{V_{2}}) \right] (\omega)$$
(A.23)

A.2.7 Leistungsspektrum beim Heterodyn-Verfahren

Beim verzögerten Selbst-Heterodyn-Verfahren (siehe Abschnitt 1.1) werden jeweils ein Feld mit der Laserfrequenz ω_0 und ein um die AOM-Frequenz Ω verschobenes Feld überlagert. In diesem Fall sind die Spektren der interferierenden elektrischen Felder $E_{1/2}$ also um $\omega_1=\omega_0$ bzw. $\omega_2=\omega_0\pm\Omega$ zentriert. Da hier für die elektrischen Felder die reele Darstellung gewählt wurde, müssen die zugehörigen Leistungsspektren symmetrisch sein (siehe Gleichung (1.3)). Die frequenzverschobenen einseitigen Spektren müssen also symmetrisiert werden:

$$\widetilde{S}_{E_{1/2}}(\omega) = \frac{1}{2} \left(S_{E_{1/2}}(\omega + \omega_{1/2}) + S_{E_{1/2}}(\omega - \omega_{1/2}) \right)$$
(A.24)

Eingesetzt in Gleichung 1.32 erhält man:

$$S_{I_x}(\omega) \propto \left(\widetilde{S}_{E_1} \star \widetilde{S}_{E_2}\right)(\omega)$$

$$= \frac{1}{4} \left(S_{E_1}(\omega + \omega_1) + S_{E_1}(\omega - \omega_1)\right) \star \left(S_{E_2}(\omega + \omega_2) + S_{E_2}(\omega - \omega_2)\right)$$

$$= \frac{1}{4} \left[S_{E_1}(\omega + \omega_1) \star S_{E_2}(\omega - \omega_2) + S_{E_1}(\omega + \omega_1) \star S_{E_2}(\omega + \omega_2)\right]$$

$$+ S_{E_1}(\omega - \omega_1) \star S_{E_2}(\omega - \omega_2) + S_{E_1}(\omega - \omega_1) \star S_{E_2}(\omega + \omega_2)\right] \tag{A.25}$$

 $^{1\}omega'' := \omega' - \omega_1 \text{ mit } d\omega'' = d\omega' \text{ und } \omega''' = \omega_1 + \omega_2 \text{ mit } d\omega''' = d\omega_2$

Nun lassen sich die Verschiebungseigenschaften der Kreuzkorrelation ausnützen. Es gilt allgemein für die Kreuzkorrelation zweier um $\omega_{1/2}$ Funktionen $A(\omega)$ und $B(\omega)$:

$$A(\omega - \omega_1) \star B(\omega - \omega_2) = \int_{-\infty}^{\infty} A(\omega + \omega' - \omega_1) B(\omega' - \omega_2) d\omega'$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} A(\omega - (\omega_1 - \omega_2) + \omega'') B(\omega'') d\omega''$$

$$A(\omega - \omega_1) \star B(\omega - \omega_2) = (A \star B) (\omega - (\omega_1 - \omega_2))$$
(A.26)

Damit erhält man aus Gleichung (A.25):

$$S_{I_x}(\omega) \propto [(S_{E_1} \star S_{E_2})(\omega + (\omega_1 + \omega_2)) + (S_{E_1} \star S_{E_2})(\omega + (\omega_1 - \omega_2)) + (S_{E_1} \star S_{E_2})(\omega - (\omega_1 - \omega_2)) + (S_{E_1} \star S_{E_2})(\omega - (\omega_1 + \omega_2))]$$
(A.27)

Das gesamte Leistungsspektrum $S_{I_x}(\omega)$ beim Heterodyn-Verfahren setzt sich also aus dem eigentlichen Schwebungssignal bei der AOM-Frequenz $|\omega_1-\omega_2|=\Omega$ und einem weiteren Beitrag bei $\omega_1+\omega_2=2\Omega_0\pm\Omega$, also etwa bei der doppelten Laserfrequenz ω_0 , zusammen. Zusätzlich tauchen diese beiden Anteile auch noch zu negativen Frequenzen hin gespiegelt auf, da das Gesamtspektrum symmetrisch in ω sein muss. Es zeigt sich allerdings, dass die oben für den einfacheren homodynen Fall mit um $\omega=0$ zentrierten Spektren berechneten Linienformen erhalten bleiben.

B Zur Stabilisierung des Lasersystems

B.1 Simulation der Laserdioden-Regelungselektronik

Um den Einfluss der Elektronik und der spezifischen Transferfunktion der Laserdiode voneinander trennen zu können, wurde der Frequenzgang von Amplitude und Phase des Diodenstroms aus den in Abschnitt 3.3.1 beschriebenen Schaltungen bei einem eingehenden sinusförmigen Spannungssignal mit Hilfe der Software OrCAD PSpice 9.1 simuliert. Die Amplitude des Eingangssignals (Spannungsquelle V_1 in Abbildung 3.6) wurde mit 0.5 V entsprechend der experimentellen Untersuchung in Abschnitt 3.3.1.1 gewählt, der maximale Diodenstrom von der Laserdiodensteuerung (Stromquelle I_1 in Abbildung 3.6) bewegt sich mit 100 mA ebenfalls im Bereich typischer Werte im Experiment.

B.1.1 Vergleich der alten und der neuen Schaltung

Abbildung B.1 zeigt einen Vergleich der alten und der neuen Schaltung nach Abbildung 3.6a bzw. 3.6b in Abschnitt 3.3.1.

Die Modulationsamplitude der Diodenstromstärke zeigt bei der alten Schaltung ebenso wie die experimentell bestimmte Modulationsamplitude der Laserintensität einen starken Abfall bei Frequenzen über $100\,\mathrm{kHz}$. Dies bedeutet, dass die Regelungsbandbreite hier durch die Bandbreite der Elektronik begrenzt ist.

Bei der neuen Schaltung ist diese Grenzfrequenz in der Simulation der Stromstärkenmodulation um fünf Größenordnungen zu höheren Frequenzen verschoben, während die experimentell bestimmte Intensitätsmodulation bereits bei Frequenzen knapp über 10 MHz, also drei Größenordnungen früher, einbricht. Dies ist darauf zurückzuführen, dass hier die Transferfunktion der Laserdiode selbst den begrenzenden Faktor der Regelungsbandbreite darstellt.

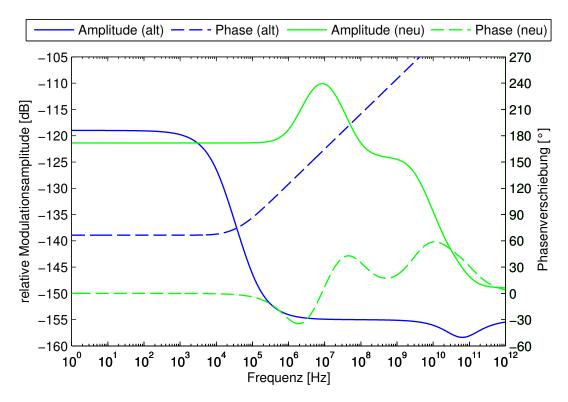


Abb. B.1: Frequenzgang der Modulationsamplitude (durchgezogen) und Phase (gestrichelt) des Diodenstroms, bezogen auf das sinusförmige Eingangssignal, jeweils für die alte (blau, siehe Abbildung 3.6a) und die neue Schaltung (siehe Abbildung 3.6b).

Die Modulation des Diodenstroms beeinflusst nämlich die Emission der Laserdiode über zwei verschiedene, teilweise gegenläufige Effekte. Dies sind zum einen die Änderung der Ladungsträgerdichte im Rekombinationsgebiet der Laserdiode, die mit dem Diodenstrom zunimmt, und zum anderen die Temperaturänderung durch Joulesche Heizung [49][124], die bei niedrigen Modulationsfrequenzen dominiert. Durch thermische Ausdehnung vergrößert sich dabei die optische Weglänge des Resonators in der Laserdiode, gleichzeitig nimmt die Energie der Bandlücke ab [125], was beides zu einer Abnahme der Laserfrequenz bei wachsender Temperatur führt. Dies führt zu einer Modulation der Laserfrequenz, die 180° außer Phase relativ zur Modulation des Diodenstroms ist. Bei hohen Modulationsfrequenzen wird dieser Effekt jedoch aufgrund der endlichen Wärmekapazität des Diodenmaterials so gering, dass die Abhängigkeit des Brechungsindex des Diodenmaterials von der Ladungsträgerdichte hervortritt, die eine Modulation der Laserfrequenz in Phase zum Diodenstrom zur Folge hat. Der Übergang zwischen diesen beiden Fällen tritt typischerweise für Modulationsfrequenzen im Bereich von $1 - 10 \,\mathrm{MHz}$ auf [48][49]. Der experimentell bestimmte Einbruch der Modulationsamplitude der Intensität liegt genau in diesem Bereich. Tatsächlich lässt sich für die Modulation der Intensität eine ähnliche Frequenzabhängigkeit feststellen. So ist die Temperaturabhängigkeit der Intensität ebenfalls 180° außer Phase [124][125], während die Erhöhung der Ladungsträgerkonzentration phasenrichtig zu einer Erhöhung der Laserintensität führt.

Die Erklärungen dieses Abschnittes sind jedoch nur qualitativer Natur. Eine vollständige Betrachtung der in der Laserdiode stattfindenden Prozesse unter Verwendung der Ratengleichungen ist in [49] zu finden.

B.1.2 Optimierung der neuen Schaltung

In Abbildung B.2 ist der Frequenzgang der Modulationsamplitude und Phase des Diodenstroms in der Schaltung nach Abbildung 3.6b für verschiedene Kapazitäten C_1 und Potentiometerstellungen R_1 dargestellt. Wie bereits in Abschnitt 3.3.1 erklärt, verschiebt sich die Grenzfrequenz des Hochpasses aus dem Widerstand R_2 und dem Kondensator C_1 mit abnehmender Kapazität C_1 zu höheren Frequenzen (vgl. Gleichung (3.3)). Dieser Effekt ist im experimentell bestimmten Frequenzgang (siehe Abbildung 3.8a) schwächer ausgeprägt, da hier der Abfall der Transferfunktion der Laserdiode dominert. Die Stellung des Potentiometers R_1 ändert in sehr guter Übereinstimmung mit der Messung (siehe Abbildung 3.8b) die Modulationsamplitude nur um einen konstanten Faktor, wie aus Abbildung B.2b hervorgeht.

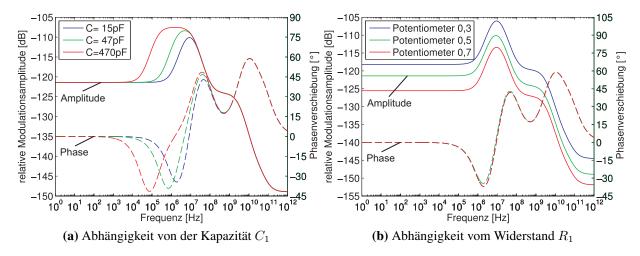


Abb. B.2: Frequenzgang der Modulationsamplitude (durchgezogene) und Phase (gestrichelt) des Diodenstroms, bezogen auf das sinusförmige Eingangssignal, jeweils für verschiedene Kondensatoren C_1 und Potentiometerstellungen R_1 der neuen Schaltung.

B.2 Weitere Schaubilder zur Optimierung des Reglers für den roten Laser

Abbildung B.3 wiederholt die spektrale Leistungsdichte des detektierten Schwebungssignals von Abbildung 3.10 bei der Optimierung der Filtereinstellung des Reglers für den roten Laser in logarithmischer Auftragung. Aus dem Vergleich mit Abbildung 1.2 in Abschnitt 1.4.1 wird deutlich, dass die Linienform des Schwebungssignals weder Lorentz-, noch Gauß- oder Voigtförmig ist und somit das Rauschspektrum eine kompliziertere Abhängigkeit von der Frequenz aufweist als in den einfachen Modellen in Abschnitt 1.4.1 angenommen wurde. Deshalb lässt sich hier zwar kein genauer Wert, aber mit der Linienbreite des Schwebungssignals zumindest eine obere Grenze für die Laserlinienbreite angeben, da diese noch über der Auflösungsgrenze von etwa 20 kHz liegt (vgl. Diskussion in Abschnitt 3.3.2).

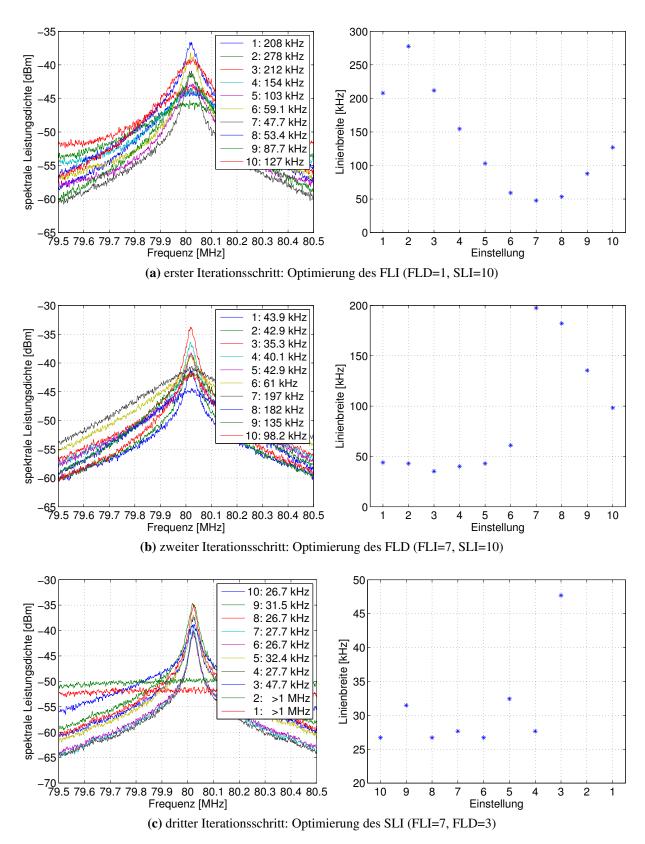


Abb. B.3: Spektrale Leistungsdichte des am verzögerten Selbst-Heterodyn-Interferometers detektierten Schwebungssignals in logarithmischer Auftragung (links) und deren Linienbreite (rechts) für verschiedene Filtereinstellungen am Regler des roten Lasers.

B.3 Frequenzeichung des Fehlersignals des roten Lasers

Um vom Signal am Monitor-Ausgang des Reglers des roten Lasers auf die Frequenzabweichung von der Resonanz des Resonators rückschließen zu können, musste die Proportionalitätskonstante zwischen dem Spannungssignal und der Frequenzabweichung bestimmt werden. Beim roten Laser lies sich hierfür die bestehende Sättigungsspektroskopie in einer Rubidiumdampfzelle nutzen, deren Signal mit dem Fehlersignal verglichen wurde. Da letzteres von der Einstellung der Hauptverstärkung des Reglers abhängt und somit für jede Einstellung der Stabilisierung unterschiedlich ist, musste diese Eichung für jede Messung, bei der die Stabilisierung geändert wurde, wiederholt werden. So wurde nach jeder Messung des Signals am Monitor-Ausgang die Verbindung des Reglers mit der Steuerung des Laserdiodenstroms getrennt und die Frequenz des Lasers durch eine Dreieck-förmige Spannung am Gitter moduliert. Das zeitabhängige Spektroskopiesignal und das Fehlersignal am Monitor-Ausgang sind in Abbildung B.4a dargestellt. Im gemessenen Frequenzbereich liegt der Übergang $5s_{1/2}$, $f=2 \to 5p_{3/2}$, f=3 und die beiden cross-over-Linien der Zustände $5p_{1/2}$, f=3 und f=2 sowie f=3 und f=1 [87][44]. Aus den Abständen dieser Linien lässt sich durch Vergleich mit Literaturwerten [44] die Zeitachse in Frequenzen umskalieren.

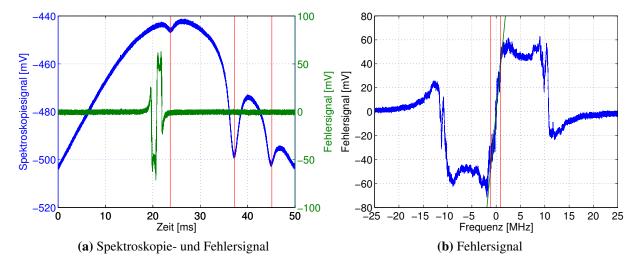


Abb. B.4: Links: Spektroskopie- und Fehlersignal über der Zeit aufgetragen, die Dips sind als vertikale rote Linien eingezeichnet. Rechts: Fehlersignal mit in Frequenzen skalierter Abszisse, die Grenzen des Bereiches, an den eine Gerade (grün) angepasst wird, ist durch vertikale rote Linien begrenzt.

In Abbildung B.4b ist das Fehlersignal mit der nun in Frequenzen skalierten Abszisse gezeigt; anstatt absoluten Frequenzen wurde hierbei die Resonanz des Resonators als Nullpunkt gewählt. Das genaue Zustandekommen der Linienform ist in [46] ausführlich dargestellt. Offensichtlich besteht nur in einem kleinen Bereich um die Resonanzfrequenz ein eindeutiger Zusammenhang zwischen der Amplitude des Fehlersignals und der Laserfrequenz. An diesen Bereich wurde eine Gerade angepasst, deren Steigung den gesuchten Zusammenhang zwischen Spannungssignal

am Monitor-Ausgang des Reglers und der Frequenzabweichung des Lasers liefert.

Da das Fehlersignal teilweise stark verrauscht war, wurden für jede Eichung 50 Messungen verwendet, die mit Hilfe eines Matlab-Skriptes automatisch ausgewertet wurden. Dieses findet die Dips in der Spektroskopie und skaliert damit die Frequenzachse; anschließend wird der lineare Bereich des Fehlersignals selbsttätig festgestellt, an den dann eine Gerade angepasst wird. Aus den 50 Messungen wurden dann jeweils etwa 10 Messungen als Ausreißer verworfen. Eine Kontrolle ergab, dass bei diesen der lineare Bereich um die Resonanz stark verrauscht war. Aus den verbleibenden 40 Messungen ergab sich für die in Abschnitt 3.4.1 ausgewerteten Messungen eine Steigung von

$$m = (43.5 \pm 8.0) \frac{\text{mV}}{\text{MHz}}$$
 (B.1)

Somit erhält man die Frequenzabweichung des Lasers von der Resonatorresonanz durch Division des Spannungssignals am Monitor-Ausgang durch diesen Faktor. Diese Eichung gilt jedoch nur in einem kleinen Bereich um die Resonanzfrequenz, wie aus Abbildung B.4b hervorgeht.

C Zur Gültigkeit der Fermischen Pseudopotential-Näherung

In Abschnitt 5.2.2 wird für das Molekülpotential weitausgedehnter Rydberg-Moleküle eine Näherung hergeleitet. Hierfür wird die Fermische Pseudopotentialdichte (siehe Gleichung (5.40)) verwendet, die aus der Mittelung über viele Streuungen des Rydberg-Elektrons an einem Grundzustandsatom hervorgeht. Für dessen Herleitung wurde in Abschnitt 5.2.1 angenommen, dass die Reichweite der Wechselwirkung zwischen dem Rydberg-Elektron und einem einzelnen Grundzustandsatoms klein gegen die de Broglie-Wellenlänge λ_{dB} des Elektrons ist. In diesem Abschnitt wird nun überprüft, ob diese Näherung im Fall der untersuchten weitausgedehnten Rydberg-Moleküle erfüllt ist.

Das Rydberg-Elektron am Ort \vec{r} erzeugt am Ort \vec{R} des Neutralatoms ein elektrisches Feld:

$$\vec{E}(\vec{r}, \vec{R}) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e}{|\vec{R} - \vec{r}|^2} \vec{e}_{\vec{R} - \vec{r}}$$
(C.1)

Durch die Polarisation des Neutralatoms mit der Polarisierbarkeit $\alpha=319.2\,\frac{e^2a_0^2}{2R_{Ryd}}$ (für ^{87}Rb [24]) folgt somit eine anziehende Wechselwirkung mit im Prinzip unendlicher Reichweite:

$$V_{pol}(\vec{r}, \vec{R}) = -\frac{1}{2}\alpha E^2 = -\frac{1}{2} \frac{\alpha}{\frac{e^2 a_0^2}{2R_{Bud}}} \frac{a_0^4}{|\vec{R} - \vec{r}|^4} R_{Ryd}$$
 (C.2)

Der Verlauf dieses Potentials ist in Abbildung C.1a zusammen mit der kinetischen Energie des Rydberg-Elektrons in semiklassischer Näherung für den 35s-Zustand dargestellt. Diese erhält man aus der Energie E_n des ungestörten Rydberg-Atoms mit Hauptquantenzahl n über die Forderung der Energieerhaltung [24] (vgl. Gleichung (5.43)):

$$E_n = E_{kin} + V_{Coulomb} \Leftrightarrow E_{kin} = -\frac{R_{Ryd}}{(n - \delta_l)^2} + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{R}$$
 (C.3)

Die Größenverhältnisse in Abbildung C.1a entsprechen qualitativ den in Abschnitt 5.2.1 getroffenen Annahmen (vgl. Abbildung 5.1).

Zusätzlich soll nun auch eine quantitative Abschätzung gegeben werden. In einer ersten klassischen Näherung wird als Maß für die Reichweite der Wechselwirkung der Abstand $|\vec{r}-\vec{R}|$ vom Grundzustandsatom verwendet, ab dem die Wechselwirkungsenergie V_{pol} deutlich kleiner als die kinetische Energie $E_{kin}=\frac{\hbar^2k^2}{2m_e}$ des Rydberg-Elektrons wird. Ist der Betrag des Verhältnisses E_{kin}/V_{pol} hinreichend groß, so kann das Wechselwirkungspotential als vernachlässigbar betrachtet werden. In Abbildung C.1b ist der Abstand mit $|E_{kin}/V_{pol}|=10$ und die de Broglie-Wellenlänge $\lambda_{dB}=\frac{2\pi}{k}$ (ebenfalls semiklassisch aus Gleichung (C.3)) dargestellt. Mit wachsen-

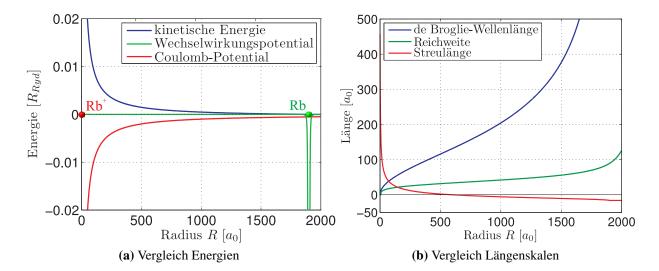


Abb. C.1: Zur Gültigkeit der Näherungen im Rahmen der Fermi-Pseudopotential-Methode: Links ist die kinetische Energie des Rydberg-Elektrons (semiklassisch, 35s-Zustand) der potentiellen Energie der Wechselwirkung mit dem Grundzustandsatom Rb und der Coulomb-Energie im Feld des Atomrumpfes gegenübergestellt. Rechts werden die de Broglie-Wellenlänge λ_{dB} des Rydberg-Elektrons (semiklassische, 35s-Zustand), die klassische Näherung der Reichweite und die Streulänge der Wechselwirkung des Rydberg-Elektrons mit dem Grundzustandsatom verglichen. Alle Größen sind jeweils in Abhängigkeit vom Abstand zum Rumpf Rb^+ des Rydberg-Atoms aufgetragen.

dem Abstand R des Grundzustandsatoms Rb zum Rumpf Rb^+ des Rydberg-Atoms nimmt die Reichweite der Wechselwirkung zu, da die kinetische Energie des Rydberg-Elektrons abnimmt und das Potential V_{pol} somit in einem weiteren Bereich nicht mehr gegen die kinetische Energie vernachlässigt werden kann. Gleichzeitig führt jedoch die Abnahme der kinetischen Energie E_{kin} zu einer Vergrößerung der de Broglie-Wellenlänge $\lambda_{dB} \propto 1/\sqrt{E_{kin}}$. Wie aus Abbildung C.1b hervorgeht, ist die de Broglie-Wellenlänge des Rydberg-Elektrons somit über den gesamten klassisch erlaubten Bereich $(r < 1900\,a_0$ für 35s-Zustand von $^{87}Rb)$ viel größer als die klassische Reichweite der Wechselwirkung zwischen Elektron und Grundzustandsatom.

Eine quantenmechanische Betrachtung liefert dagegen ein etwas abweichendes Ergebnis. Als Maß für die Reichweite der Wechselwirkung kann dabei der Betrag der Streulänge aus Gleichung (5.42) verwendet werden, deren Abhängigkeit vom Abstand R zum Atomrumpf des Rydberg-Atoms ebenfalls in Abbildung C.1b dargestellt ist (siehe auch Abbildung 5.3a). Das Vorzeichen gibt hierbei an, dass die Wechselwirkung im Gegensatz zum klassischen Modell für kleine Radien R repulsiv wird. Außerdem nimmt hier die Reichweite der Wechselwirkung mit abnehmendem Radius R wieder zu und ist im Bereich $R \le 75 \, a_0$ größer als die de Broglie-Wellenlänge. Für Radien $R \gg 2000 \, a_0$ ist die betrachtete Näherung bis zur ersten Ordnung in der Wellenzahl k nicht mehr ausreichend (siehe Abschnitt 5.2.2). Der Bereich maximaler Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte der Molekülzustände liegt jedoch im Bereich der Bindungslänge von etwa $1900 \, a_0$ (für 35s, siehe Abschnitt 5.2.2 und insbesondere 5.3b). In diesem Bereich ist nach der Abschätzung in Abbildung C.1b die de Broglie-Wellenlänge deutlich größer als der Betrag der Streulänge. Somit ist die in Abschnitt 5.2.1 verwendete Annahme auch in einer quantenmechanischen Abschätzung im relevanten Bereich erfüllt.

D Zum Stark-Effekt bei Rydberg-Molekülen

D.1 Berechnung der Stark-Energien

D.1.1 Elemente der Richtungscosinusmatrix

Zur störungstheoretischen Berechnung des Stark-Effekts in Abschnitt 5.3.2 werden die Elemente der Richtungscosinusmatrix \mathbf{S} in der Basis der Rotationseigenzustände $|JKM\rangle$ benötigt. Wie in [79] explizit aus den Eigenschaften der Matrix \mathbf{S} und der Drehimpulseigenzustände gefolgert wird, lassen sich die Matrixelemente als Produkt reduzierter Matrixelemente darstellen:

$$\langle JKM | S_{iq} | J'K'M' \rangle = \langle J | | \mathbf{S} | | J' \rangle \langle JK | s_q | J'K' \rangle \langle JM | s_i | J'M' \rangle \tag{D.1}$$

Die reduzierten Matrixelemente wurden in [126] berechnet. Es zeigt sich, dass es sich um eine symmetrische Bandmatrix handelt, bei der alle Elemente außer diejenigen mit $J'=J, J\pm 1$ sowie K'=K und M'=M verschwinden. Die nicht verschwindenden Elemente sind in der nachfolgenden Tabelle D.1 angegeben.

Matrixelement	J' = J + 1	J'=J	J' = J - 1
$\langle J \ {f S} \ J' angle$	1	1	1
(3 3 3 /	$\overline{4(J+1)\sqrt{(2J+1)(2J+3)}}$	$\overline{4J(J+1)}$	$\overline{4J\sqrt{(2J+1)(2J-1)}}$
$\langle JK s_c J'K' \rangle$	$2\sqrt{(J+K+1)(J-K+1)}$	2K	$-2\sqrt{(J+K)(J-K)}$
$\langle JM s_z J'M' \rangle$	$2\sqrt{(J+M+1)(J-M+1)}$	2M	$-2\sqrt{(J+M)(J-M)}$

Tab. D.1: Übersicht über die nichtverschwindenden reduzierten Elemente der Richtungscosinusmatrix **S** nach [126].

D.1.2 Quadratische Stark-Verschiebung polarer Moleküle

Der Anteil des Stark-Effekts zweiter Ordnung (Gleichung (5.70)), der durch die Existenz eines permanenten Dipolmoments μ hervorgerufen wird, lautet mit der Rotationsenergie des symmetrischen prolaten Moleküls (5.63) und der Faktorisierung (D.1) der Elemente der Richtungscosinusmatrix **S**:

$$W_{Stark}^{(2,\mu)}(J,K,M) = \mu^{2} E^{2} \sum_{J'K'M' \neq JKM} \frac{|\langle r | S_{zc} | r' \rangle|^{2}}{W_{JKM} - W_{J'K'M'}}$$

$$= \mu^{2} E^{2} \sum_{J'K'M' \neq JKM} \frac{|\langle J | \mathbf{S} | J' \rangle|^{2} |\langle JK | s_{c} | J'K' \rangle|^{2} |\langle JM | s_{z} | J'M' \rangle|^{2}}{BJ(J+1) + (C-B)K^{2} - BJ'(J'+1) - (C-B)K'^{2}}$$
(D.2)

Da sämtliche Matrixelemente mit $J' \neq J$, $J \pm 1$, $K' \neq K$ oder $M' \neq M$ verschwinden (siehe Tabelle D.1), vereinfacht sich die Gleichung zu:

$$W_{Stark}^{(2,\mu)}(J,K,M) = \frac{\mu^2 E^2}{B} \sum_{J' \neq J} \frac{|\langle J || \mathbf{S} || J' \rangle|^2 |\langle JK || s_c |J'K \rangle|^2 |\langle JM || s_z |J'M \rangle|^2}{J(J+1) - J'(J'+1)}$$
(D.3)

Für $J \ge 1$ muss also über $J' = J \pm 1$ summiert werden:

$$\begin{split} W_{Stark}^{(2,\mu)}(J\geq 1,K,M) = & \frac{\mu^2 E^2}{B} \sum_{J'=J\pm 1} \frac{\left| \langle J \| \, \mathbf{S} \, \| J' \rangle \right|^2 \, \left| \langle JK | \, s_c \, | J'K \rangle \right|^2 \, \left| \langle JM | \, s_z \, | J'M \rangle \right|^2}{J(J+1) - J'(J'+1)} \quad \text{(D.4)} \\ = & \frac{\mu^2 E^2}{B} \left(\frac{4(J+K+1)(J-K+1)4(J+M+1)(J-M+1)}{16 \left[J(J+1) - (J+1)(J+2) \right] (J+1)^2 (2J+1)(2J+3)} \right. \\ & \quad + \frac{4(J+K)(J-K)4(J+M)(J-M)}{16 \left[J(J+1) - (J-1)J \right] J^2 (2J+1)(2J-1)} \right) \\ W_{Stark}^{(2,\mu)}(J\geq 1,K,M) = & \frac{\mu^2 E^2}{2B} \left(\frac{(J^2-K^2)(J^2-M^2)}{J^3 (2J+1)(2J-1)} - \frac{((J+1)^2-K^2)((J+1)^2-M^2)}{(J+1)^3 (2J+1)(2J+3)} \right) \end{split} \tag{D.5}$$

Für J=0 dagegen darf wegen $J\geq 0$ nur der Beitrag mit J'=1 berücksichtigt werden und man erhält:

$$W_{Stark}^{(2,\mu)}(0,0,0) = -\frac{\mu^2 E^2}{6B}$$
 (D.6)

Dies ist mit dem Ausdruck für $J \geq 1$ im Grenzwert $J \to 0$ konsistent. Damit entspricht das Ergebnis der in [76] angegebenen Formel, die dort über den Erwartungswert des Winkels zwischen Dipolmoment $\vec{\mu}$ und elektrischem Feld \vec{E} hergeleitet wird. Für K=0 erhält man den in [75] angegebenen Spezialfall linearer Moleküle ohne elektronischen Drehimpuls.

D.1.3 Quadratische Stark-Verschiebung unpolarer Moleküle

Der Anteil des Stark-Effekts zweiter Ordnung (Gleichung (5.70)), der durch die Polarisation des Moleküls hervorgerufen wird, lautet nach Gleichung (5.74):

$$W_{Stark}^{(2,\alpha)}(J,K,M) = -\frac{1}{2} \sum_{q} \alpha_{qq} \sum_{J'K'M'} |\langle JKM | S_{zq} | J'K'M' \rangle|^{2} E^{2}$$

$$= -\frac{1}{2} \left(\alpha_{bb} + (\alpha_{cc} - \alpha_{bb}) \sum_{J'K'M'} |\langle JKM | S_{zc} | J'K'M' \rangle|^{2} \right) E^{2}$$
(D.7)

Hierbei wurde neben der Eigenschaft $S_{za}^2 + S_{zb}^2 + S_{zc}^2 = 1$ der Richtungscosinusmatrix ausgenutzt, dass für zylindersymmetrische Moleküle zwei Diagonalelemente identisch sind $(\alpha_{aa} = \alpha_{bb})$. Die Summation über die Matrixelemente aus Abschnitt D.1.1 lautet nun für $J \ge 1$:

$$\sum_{J'K'M'} |\langle J \geq 1KM | S_{zc} | J'K'M' \rangle|^{2} = \sum_{J'=J,J\pm 1} |\langle J | \mathbf{S} | | J' \rangle|^{2} |\langle JK | s_{c} | J'K \rangle|^{2} |\langle JM | s_{z} | J'M \rangle|^{2}$$

$$= \frac{K^{2}M^{2}}{J^{2}(J+1)^{2}} + \frac{((J+1)^{2} - K^{2})((J+1)^{2} - M^{2})}{(J+1)^{2}(2J+1)(2J+3)}$$

$$+ \frac{(J^{2} - K^{2})(J^{2} - M^{2})}{J^{2}(4J^{2} - 1)}$$

$$= \frac{(J+1)^{2} - K^{2}}{(2J+1)(2J+3)} + \frac{J^{2} - K^{2}}{4J^{2} - 1} + M^{2} \left(\frac{K^{2}}{J^{2}(J+1)^{2}} - \frac{(J+1)^{2} - K^{2}}{(J+1)^{2}(2J+1)(2J+3)} - \frac{J^{2} - K^{2}}{J^{2}(4J^{2} - 1)}\right)$$
(D.8)

Für J=0 erstreckt sich die Summation nur über J'=0 und 1:

$$\sum_{J'K'M'} |\langle 000| S_{zc} | J'K'M' \rangle|^2 = |\langle 000| S_{zc} |000 \rangle|^2 + |\langle 000| S_{zc} |100 \rangle|^2 = \frac{1}{3}$$
 (D.9)

Dieses Ergebnis ist wieder konsistent zum Ausdruck für $J \ge 1$ im Grenzwert $J \to 0$. Einsetzen dieses Ergebnisses in Gleichung (D.7) führt mit der Substitution (5.77) unmittelbar auf das Endergebnis (siehe Gleichung (5.76) und [80]).

D.1.4 Stark-Verschiebung vierter Ordnung

Für lineare Moleküle und symmetrische Kreisel-Moleküle mit K=0 (Drehimpulsvektor \vec{J} steht senkrecht zur Drehachse) verschwinden sämtlich Terme mit ungeraden Potenzen der elektrischen Feldstärke E in der Stark-Energie [82][83]. Die nächste nichtverschwindende Ordnung in der Störungstheorie des Stark-Effekts ist demnach die vierte Ordnung. In dieser tragen drei Terme zur Stark-Energie bei. Ein Teil enthält den Wert des permanenten Dipolmoments μ in der vierten Potenz, ein zweiter Teil ist quadratisch in der Asymmetrie $\alpha_{cc}-\alpha_{bb}$ des Polarisierbarkeitstensors und der dritte Teil ist als Mischterm proportional zum Produkt

 $(\alpha_{cc} - \alpha_{bb})\mu^2$. Diese Terme lauten für den betrachteten Fall eines symmetrischen Kreisel-Moleküls mit K=0 wie folgt [82] und [127]:

$$\begin{split} W_{Stark}^{(4,\mu)}(J,0,M) = & \frac{\mu^4 E^4}{8B^3} \left(\frac{((J-1)^2 - M^2)(J^2 - M^2)}{(2J-3)(2J+1)J^2(2J-1)^3} - \frac{((J+1)^2 - M^2)((J+2)^2 - M^2)}{(2J+1)(2J+5)(J+1)^2(2J+3)^3} \right. \\ & + \frac{(J^2 - M^2)((J+1)^2 - M^2)}{(2J-1)(2J+3)(2J+1)^2J^2(J+1)^2} + \frac{((J+1)^2 - M^2)^2}{(2J+3)^2(2J+1)^2(J+1)^3} \\ & - \frac{(J^2 - M^2)^2}{(2J+1)^2(2J-1)^2J^3} \right) & \text{(D.10)} \\ W_{Stark}^{(4,\alpha)}(J,0,M) = & \frac{(\alpha_{cc} - \alpha_{bb})^2 E^4}{8B} \left(\frac{((J-1)^2 - M^2)(J^2 - M^2)}{(2J-3)(2J+1)(2J-1)^3} \right. \\ & - \frac{((J+1)^2 - M^2)((J+2)^2 - M^2)}{(2J+1)(2J+5)(2J+3)^3} \right) & \text{(D.11)} \\ W_{Stark}^{(4,mu,\alpha)}(J,0,M) = & \frac{(\alpha_{cc} - \alpha_{bb})\mu^2 E^4}{8B^2} \left(- \frac{((J+1)^2 - M^2)((J+2)^2 - M^2)(4J+5)}{(2J+1)(2J+5)(J+1)^2(2J+3)^3} \right. \\ & - \frac{((J-1)^2 - M^2)(J^2 - M^2)(4J-1)}{(2J-3)(2J+1)J^2(2J-1)^3} + \frac{(J^2 - M^2)((J+1)^2 - M^2)}{(2J-1)(2J+3)J^2(J+1)^2} \right) \\ & \text{(D.12)} \end{split}$$

Für den nur vom permanenten Dipolmoment μ abhängigen Anteil (D.10) sind in [108] und [128] anderslautende Ausdrücke angegeben, wobei sich die Abweichung in [108] relativ einfach als Druckfehler identifizieren lässt. Der Unterschied zu [128] konnte dagegen nicht abschließend geklärt werden. Ein Vergleich mit dem Ergebnis der Reihenentwicklung der exakten Lösung in Abschnitt D.1.5 zeigt jedoch, dass zumindest das Ergebnis für den dort als Beispiel betrachteten Zustand nicht von der Formel nach [128] reproduziert wird.

In Abbildung D.1 ist die Abhängigkeit der Stark-Energien vierter Ordnung (Gleichungen (D.10)-(D.12)) von den Quantenzahlen J und M dargestellt.

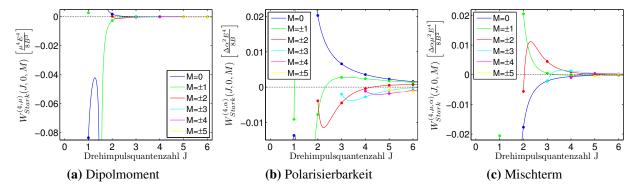


Abb. D.1: Aufspaltung der verschiedenen |M|-Zustände für jeweils feste Quantenzahl J für die drei unterschiedlichen Beiträge in der vierten Ordnung der Störungsrechnung zum Stark-Effekt. Die Farben kennzeichnen Zustände mit gleichem Betrag |M|.

Alle drei Beiträge nehmen mit wachsender Rotationsquantenzahl J stark ab, da sich die zugrundeliegenden Eigenschaften des Moleküls, das permanente Dipolmoment $\vec{\mu}$ und die Asymmetrie

 $\alpha_{cc} - \alpha_{bb}$ des Polarisierbarkeitstensors bei einer schnellen Molekülrotation effektiv zu Null mitteln. Für die weitere Abhängigkeit der Terme von der Projektionsquantenzahl M lässt sich kein einfacher Trend wie bei den Stark-Energien zweiter Ordnung in Abschnitt 5.3.2.2 angeben, weshalb auf eine weitere Diskussion verzichtet wird.

D.1.5 Reihenentwicklung der exakten Lösung

Der störungstheoretische Ansatz nach Abschnitt 5.3.2 erlaubt die Berechnung der Stark-Energien nur im Grenzfall kleiner oder sehr großer elektrischer Felder. Ein alternativer Ansatz [129] ermöglicht dagegen eine Lösung des Problems für beliebige Feldstärken. Hierzu wird die exakte Lösung des Problems im elektrischen Feld nach den Lösungen im feldfreien Raum in eine Reihe entwickelt und in die Schrödinger-Gleichung eingesetzt. Hieraus folgt eine Rekursionsformel für die Entwicklungskoeffizienten, aus der sich wiederum eine Gleichung für die Energieeigenwerte gewinnen lässt. Das Ergebnis für ein lineares Molekül (K=0) im Modell des starren Rotators mit einem permanenten Dipolmoment $\vec{\mu}$ unter Vernachlässigung der Polarisierbarkeit findet sich in [129]. Allerdings enthält die dort angegebene Gleichung einen Druckfehler, der sowohl in [81] als auch in [82] übernommen wurde. Der korrekte Ausdruck ergibt sich als Spezialfall des in [130] hergeleiteten Ergebnisses für ein symmetrisches Kreiselmolekül. Mit der dimensionslosen elektrischen Feldstärke $\lambda = \frac{\mu E}{B} \neq 0$ (B: Rotationskonstante des Moleküls) gilt demnach für die normierte Energie $\eta = \frac{W}{B}$ der Zustände mit Projektionsquantenzahl M:

$$0 = \eta - M(M+1) - \frac{\lambda^2 C_{M,M^2}}{\eta - (M+1)(M+2) - \frac{\lambda^2 C_{M+1,M^2}}{\eta - (M+2)(M+3) - \dots}}$$
(D.13)

Wobei die folgende Abkürzung verwendet wurde:

$$C_{R,p^2} = \frac{(R+1)^2 - p^2}{(2R+1)(2R+3)}$$
 (D.14)

Die Lösungen dieser Gleichung für η bei fester Projektionsquantenzahl M entsprechen den exakten Energieeigenwerten des Problems zu den verschiedenen Rotationsquantenzahlen $J \geq M$. Zur numerischen Berechnung der Summe von Rotations- und Stark-Energie für einen Zustand (J,M) muss also der in Gleichung (D.13) auftretende Kettenbruch mit hinreichender Genauigkeit berechnet werden und dann die Nullstellen der rechten Seite von (D.13) mit einem geeigneten J-abhängigen Startwert bestimmt werden. Die Zuordnung des Ergebnisses zu der Rotationsquantenzahl J kann durch den Grenzübergang $\lambda \to 0$, bei dem $\eta \to J(J+1)$ gilt, kontrolliert werden. Das Ergebnis einer solchen Berechnung für den Zustand (J=1,M=1) ist in Abbildung D.2 den Ergebnissen der Störungsrechnung bis zur zweiten und vierten Ordnung nach Scharpen et al. [127] (siehe Gleichungen (7.16),(5.76) und (D.10)) sowie dem Ergebnis von Requena et al. [128] gegenübergestellt. Für große Feldstärken $\lambda \gtrsim 6$ reicht die Anzahl maximal durchführbarer Rekursionen des verwendeten einfachen Programms nicht mehr aus, um den Kettenbruch in Gleichung (D.13) mit hinreichender Genauigkeit zu berechnen. Tatsächlich folgt die Stark-Energie noch in einem weiteren Bereich dem Verlauf aus der Störungsrechnung bis einschließlich vierter Ordnung [129].

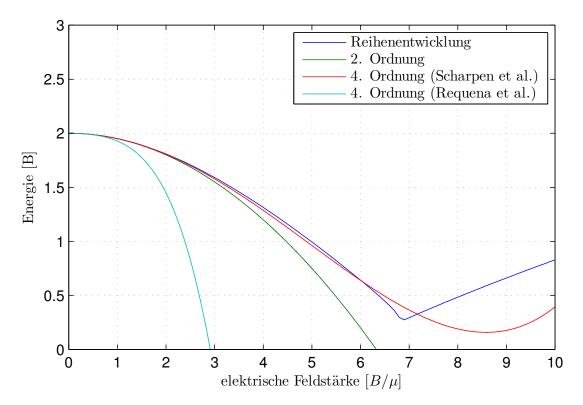


Abb. D.2: Rotations- und Stark-Energie des Zustandes (J=1,M=1) eines starren linearen Moleküls mit permanentem Dipolmoment μ in dimensionslosen Einheiten: Dem Ergebnis aus der Reihenentwicklung durch numerische Lösung von Gleichung (D.13) sind die Ergebnisse der Störungstheorie bis einschließlich zweiter und vierter Ordnung nach Scharpen et al. [127] und Requena et al. [128] gegenübergestellt. Weitere Erklärungen sind im Text gegeben.

Aus der Abbildung D.2 wird die bessere Näherung durch die Mitnahme von Termen vierter Ordnung in der Feldstärke λ deutlich. Außerdem zeigt es sich, dass das Ergebnis der Störungsrechnung nach Requena et al. die exakten Energien nicht reproduziert, weshalb in der vorliegenden Arbeit das Ergebnis von Scharpen et al. verwendet wurde.

D.2 Vergleich von Theorie und Experiment

In Abbildung D.3 sind der experimentell gefundenen Stark-Aufspaltung der Rydberg-Dimere im Grundzustand verschiedene Simulationen unter Verwendung der Ergebnisse der Störungsrechnung in Abschnitt 5.3 gegenübergestellt. In Abbildung D.3b ist die theoretisch berechnete Aufspaltung unter Vernachlässigung der Terme vierter Ordnung in der elektrischen Feldstärke E gezeigt. Der Vergleich mit dem Ergebnis unter Berücksichtigung dieser Ordnung (siehe Abbildung 7.9b) zeigt deutlich, dass die vierte Ordnung der Störungstheorie im vorliegenden Fall noch einen wesentlichen Beitrag liefert. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die beobachtete Aufspaltung, wie in Abschnitt 7.3.2.2 erklärt, aus der Differenz zweier Effekte zweiter Ordnung in E resultiert.

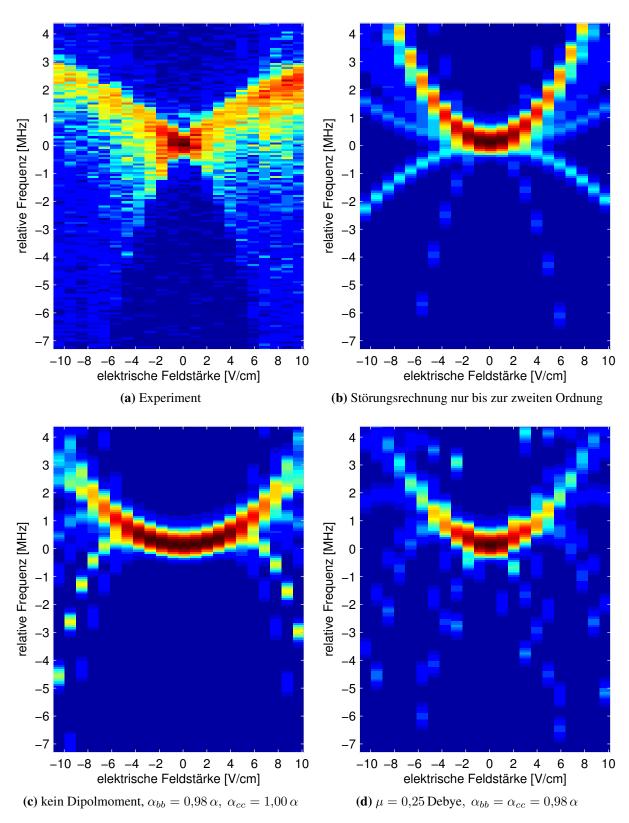


Abb. D.3: Stark-Effekt des zweiatomigen Rydberg-Moleküls im Grundzustand: Rydberg-Signal über elektrischer Feldstärke E und relativer Frequenz. Den experimentellen Daten sind verschiedene Simulationen bei einer Temperatur der Atomwolke von $T=8\,\mu\mathrm{K}$ gegenübergestellt (Erklärung siehe Text).

In der unteren Reihe sind die besten Ergebnisse der Anpassung der Störungsrechnung bis vierter Ordnung an die experimentellen Daten unter der Annahme eines verschwindenden permanenten Dipolmoments ($\mu=0$, Abbildung D.3c) bzw. eines symmetrischen Polarisierbarkeitstensors ($\alpha_{bb}=\alpha_{cc}$, Abbildung D.3d) gezeigt. Die Übereinstimmung des zu positiven Energien verschobenen Bereichs mit den experimentellen Daten ist zwar hier besser als in Abbildung 7.9b, allerdings ist in diesem Bereich wegen der Entartung einzelner Zustände die verwendete Störungstheorie nicht gültig (siehe Diskussion in Abschnitt 7.3.2.2). Die Abweichung im zu negativen Energien verschobenen Bereich ist hier dagegen besonders für ein verschwindendes Dipolmoment signifikant größer, während das Vernachlässigen der Asymmetrie des Polarisierbarkeitstensors lediglich zu einer geringeren Verbreiterung führt. Es ist somit davon auszugehen, dass die untersuchten Rydberg-Moleküle sowohl ein permanentes Dipolmoment als auch einen asymmetrischen Polarisierbarkeitstensor aufweisen.

E Zur Charakterisierung der MCP

E.1 Erstellung der Pulsflächenhistogramme

E.1.1 Pulsflächenhistogramm für die selbstgebaute Schaltung

Aufgrund der unvollständigen Impedanzanpassung zwischen Verstärkerschaltung und Oszilloskopkarte des Messrechners und der daraus resultierenden Reflektionen des Signals ergibt sich bei der selbstgebauten Verstärkerschaltung eine Pulsform mit Anteilen ober- und unterhalb des Nullniveaus (siehe Abbildung E.1 und [39]). Deshalb wurde zur Bestimmung der Pulsflächen ein geglättetes Referenzsignal bekannter Fläche verwendet. Da die Signale lediglich in der Pulshöhe variieren, lässt sich das Referenzsignal durch Anpassen des Minimums und einfaches Skalieren der Amplitude an die aufgenommenen Pulse anpassen (siehe Abbildung E.1).

Zur Auswertung wurde ein MATLAB-Skript erstellt, das automatisch die Messdaten einliest und bei allen Pulsen, die einen einstellbaren Schwellwert unterschreiten, durch Anpassen des Referenzsignals die Pulsfläche ermittelt. Die Zuverlässigkeit dieser automatischen Pulserkennung wurde für

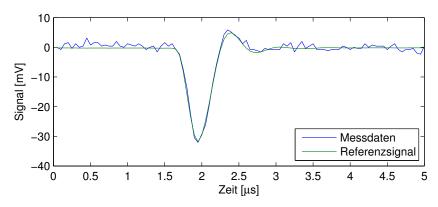


Abb. E.1: Gemessener Puls mit skaliertem Referenzsignal

die ersten Datensätze mit einem weiteren MATLAB-Skript überprüft, das die Kontrolle und gegebenenfalls Anpassung jedes erkannten Pulses durch Verschieben der Position des Minimums erlaubt. Aus den so mit unterschiedlichen Schwellwerten gewonnenen Pulsflächen wurde jeweils ein Histogramm erstellt (siehe Abschnitt E.2.1). Da sich die Verteilung der Pulsflächen des tatsächlichen Signals beim verwendeten Aufbau nicht eindeutig vom Rauschen absetzt, wurde der (negative) Schwellwert knapp über das Rauschlevel gelegt, sodass alle tatsächlichen Pulse und ein Teil des Rauschens ausgewertet wurden. Das Optimum zwischen möglichst niedriger Schwelle, um mit Sicherheit im Rauschen zu liegen, und einer möglichst hohen Schwelle, um den Rechenaufwand gering zu halten, lag in diesem Fall bei einer Amplitude von 1,0 mV, was einer Pulsfläche von etwa 0,374 nVs entspricht. Bei einer gesamten Messzeit von 9,03 s wurden so 511733 Ereignisse detektiert. Um sicherzustellen, dass die Schwelle tatsächlich im Rauschen gewählt wurde, wurde die Messung mit ausgeschalteter UV-Lampe wiederholt. Die Rate der tatsächlich auftretenden Hintergrundereignisse war hierbei vernachlässigbar (siehe Abbildung E.2).

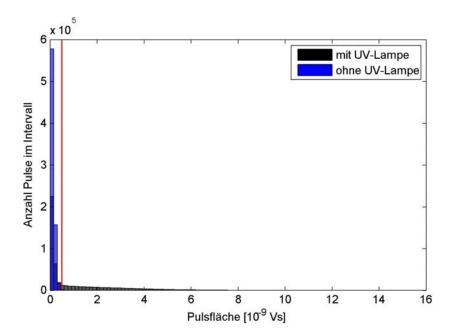


Abb. E.2: Pulsflächenhistogramm für die selbstgebaute Schaltung: Aufgetragen ist die Anzahl der Pulse im Intervall von 0,1513 nVs in der Messzeit 9,03 s mit und ohne UV-Lampe und die Position des Schwellwerts (senkrechte rote Linie). Für einen geeigneten Ausschnitt, der den Anteil des tatsächlichen Signals zeigt, siehe Abbildung 6.7.

E.1.2 Pulsflächenhistogramm für die kommerzielle Schaltung

Da das Signal der kommerziellen Schaltung einen merklichen Offset und ein relativ zu den Pulsen niederfrequentes und großamplitudiges Rauschen in der Größenordnung von 50 kHz aufweist, wurden die Daten vor der Auswertung aufbereitet, indem das Tiefpass-gefilterte Signal¹ von den eigentlichen Messdaten abgezogen wurde (siehe Abbildung E.3). Da der pulsformende Verstärker perfekte Gauß-förmige Signale ausgibt, musste die Auswertungsroutine noch weiter angepasst werden. An alle Signale, die den einstellbaren Schwellwert unterschreiten, wurde eine Gauß-Kurve der Form

$$f(t) = a e^{-\frac{(t-t_0)^2}{2b^2}}$$
 (E.1)

mit einem nichtlinearen Levenberg-Marquardt-Regressionsalgorithmus angepasst (siehe Abbildung E.4). Die freien Parameter hierbei sind die Pulshöhe a und die Pulsbreite b (Standardabweichung der Gauß-Kurve). Letztere entspricht dem $\frac{\sqrt{2\ln 2}}{4}$ -fachen der vollen Halbwertsbreite. Die Pulsbreite b lagen für Ereignisse, die mit Sicherheit als Pulse identifiziert werden konnten, im Bereich von 200-250 ns, was sich exakt mit den im Datenblatt angegebenen Werten deckt. Deshalb wurden im weiteren nur diejenigen Ereignisse gewertet, deren Breiten in diesem Bereich lagen. Die Pulsfläche ergibt sich in Abhängigkeit von den Parametern a und b (in s) durch Integration von Gleichung (E.1):

$$F = \int_{0}^{\infty} a \, e^{-\frac{(t-t_0)^2}{2b^2}} \, dt = \sqrt{2\pi}ab \tag{E.2}$$

¹implementiert als Savitzky-Golay-Filter (Polynom erster Ordnung über 151 Datenpunkte)

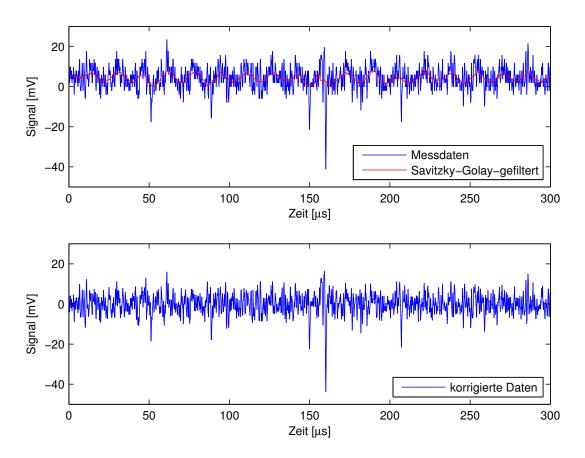


Abb. E.3: Aufbereitung der Rohdaten: Messsignal und Tiefpass-gefiltertes Signal (oben) und um Offset und niederfrequentes Rauschen korrigiertes Signal (unten) für Verstärkung des Pulsformers $g_{PF}=10^2$.

Da sich der Rechenaufwand durch die Filterung Regression und gegenüber der einfachen Skalierung bei der selbstgebauten Schaltung stark erhöht hat, wurden mit der kommerziellen Schaltung Pulse nur über einen Zeitraum von insgesamt $0.903 \, \mathrm{s}$ aufgenommen, wobei die Messung für die einstellbaren Verstär-

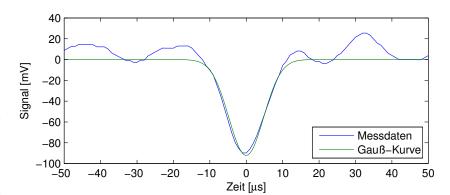


Abb. E.4: Gemessener Puls mit angepasster Gauß-Kurve für Verstärkung $g_{PF}=10^2$

kungen $g_{PF}=10^2$ und 10^3 durchgeführt wurde. Die optimale Schwelle wurde entsprechend Abschnitt E.1.1 zu $10 \,\mathrm{mV}$ bzw. $60 \,\mathrm{mV}$ gewählt, wobei 18030 bzw. 31193 Ereignisse detektiert wurden. Wie in Abschnitt E.1.1 wurde diese Wahl durch Messung ohne UV-Lampe bestätigt (siehe Abbildung E.5 und weiter unten in Abschnitt E.2.1).

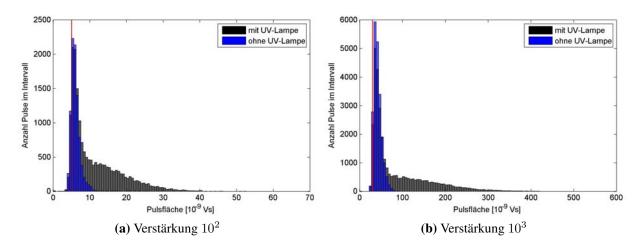


Abb. E.5: Pulsflächenhistogramme für die kommerzielle Schaltung für verschiedene Verstärkungen: Aufgetragen ist jeweils die Anzahl der Pulse im Intervall von 0,6261 nVs bzw. 5,5291 nVs in der Messzeit von 0,903 s mit und ohne UV-Lampe und der jeweilige Schwellwert (senkrechte rote Linie).

E.2 Weitere Messdaten zur Charakterisierung der MCP

E.2.1 Histogramme für verschiedene Schwellwerte

In Abbildung E.6 sind Pulsflächenhistogramme für den Aufbau mit dem selbstgebauten Verstärker für verschiedene Schwellwerte jeweils mit und ohne Beleuchtung der MCP mit der UV-Lampe dargestellt. Die Pulsfläche, die dem gewählten Schwellwert entspricht, ist jeweils durch eine vertikale rote Linie gekennzeichnet. Ausgewertete Ereignisse unterhalb dieser Schwelle sind darauf zurückzuführen, dass die jeweiligen Pulse zwar den (negativen) Spannungsschwellwert unterschreiten, die Anpassung der Kurve jedoch dann eine geringere Amplitude liefert. Der Bereich unterhalb der Schwelle ist also nur bedingt aussagekräftig.

Es zeigt sich, dass die Anzahl der Hintergrundereignisse ohne UV-Licht gegenüber der Anzahl der in der selben Zeit durch UV-Licht ausgelösten Ereignisse vernachlässigbar ist. Verschiebt man den negativen Schwellwert zu niedrigeren Spannungen, so verschwindet das Signal ohne UV-Licht ab einer Schwelle kleiner als $-3.0\,\mathrm{mV}$ vollständig (siehe Abbildung E.6f). Die Ereignisse mit einer Pulsfläche kleiner als etwa $0.5\,\mathrm{nVs}$ sind also mit Sicherheit als Rauschen zu identifizieren. Für die weitere Auswertung wurde deshalb die Schwelle mit $-1.0\,\mathrm{mV}$ bzw. $0.37\,\mathrm{nVs}$ sicher in den Bereich des Rauschens gelegt.

Für die Messungen mit der kommerziellen Verstärkerschaltung (siehe Abschnitt E.1.2) wurde entspechend verfahren, wobei die Schwellwerte $10\,\mathrm{mV}$ und $60\,\mathrm{mV}$ für die Verstärkungen 10^2 bzw. 10^3 gewählt wurden. Die entsprechenden Pulsflächen betragen $0,626\,\mathrm{nVs}$ bzw. $5,529\,\mathrm{nVs}$ (siehe Abbildung E.5). Der Verlauf der Histogramme für verschiedene Schwellwerte entspricht qualitativ der Messung mit der selbstgebauten Verstärkerschaltung (siehe Abbildung E.6) und wird deshalb für die kommerzielle Schaltung nicht noch einmal gezeigt.

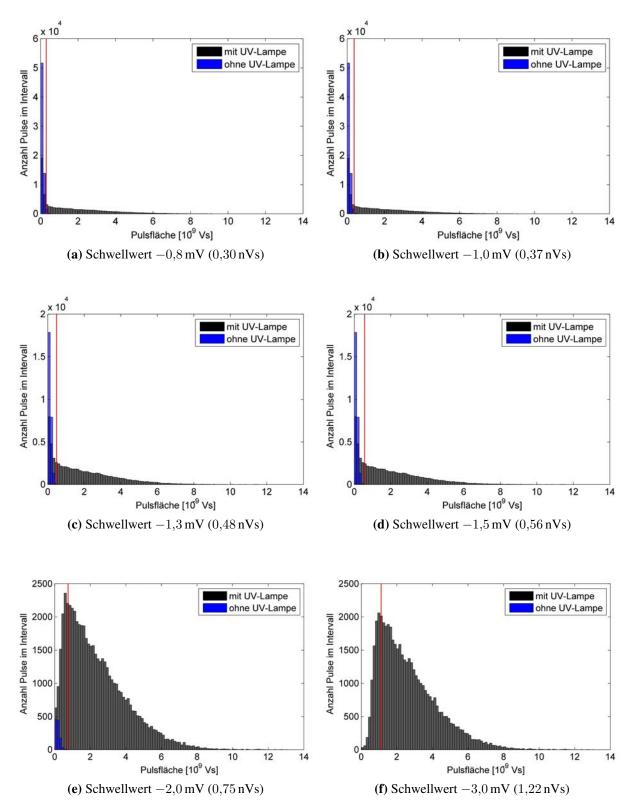


Abb. E.6: Pulsflächenhistogramme für die selbstgebaute Schaltung für verschiedene Schwellwerte, gekennzeichnet durch die vertikale rote Linie (ausgewertete Messzeit 1,806 s)

E.2.2 Pulsfläche eines Einzelereignisses

Wie in Abschnitt 6.3.3 beschrieben, wurde der theoretisch erwartete Verlauf (Gleichung (6.9)) für verschiedene Werte des Erwartungswerts F_0 der Pulsfläche eines Einzelereignisses an das jeweilige Pulsflächenhistogramm angepasst. Als Parameter variiert wurden hierbei lediglich ein konstanter Faktor a und der Erwartungswert der Verteilung der Photoelektronen λ .

Selbstgebaute Schaltung

In Abbildung E.7 sind noch einmal zum Vergleich die Messdaten und der berechnete Verlauf für den optimalen Wert $F_{0,a} = 1{,}35 \,\mathrm{nVs}$ der Pulsfläche F_0 eines Einzelereignisses dargestellt. Abbildung E.8 zeigt die gleichen Daten, wobei für den theoretischen Verlauf mit 1,05 nVs bzw. 1,65 nVs eine untere bzw. obere Grenze für F_0 gewählt wurden. Hierbei wurde besonders auf den Verlauf bei großen Pulsflächen geachtet, da dieser Teil der Daten am geringsten vom Rauschen beeinflusst wird. Für die gewählten Grenzen ist in diesem Bereich bereits eine relativ große Diskrepanz zwischen Messdaten und berechnetem Verlauf zu erkennen; die Abschätzung ist also eher konservativ.

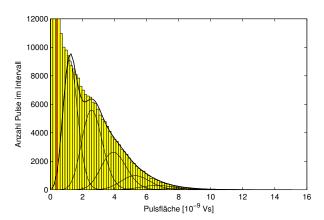


Abb. E.7: Pulsflächenhistogramm für die selbstgebaute Schaltung und bestmöglichst angepasster theoretisch erwarteter Verlauf mit $F_{0,a}=1{,}35\,\mathrm{nVs}$

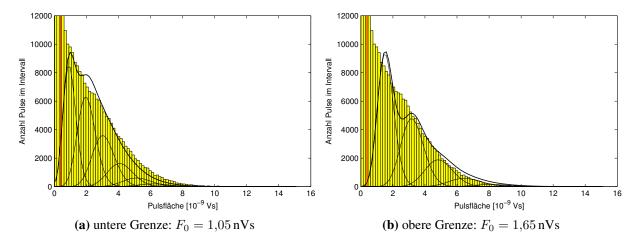


Abb. E.8: Pulsflächenhistogramm für die selbstgebaute Schaltung und theoretisch erwarteter Verlauf für Grenzwerte der Pulsfläche F_0 eines Einzelereignisses (Schwelle $1,0\,\mathrm{mV}$)

Damit lässt sich die Genauigkeit der Pulsflächenbestimmung bei der selbstgebauten Schaltung mit $\pm 0,3\,\mathrm{nVs}$ angeben.

Kommerzielle Schaltung

In den Abbildungen E.9 und E.10 sind die entsprechenden Schaubilder für die kommerzielle Schaltung bei den beiden Werten $g_{PF}=10^2$ bzw. 10^3 der Verstärkung des pulsformenden Verstärkers dargestellt.

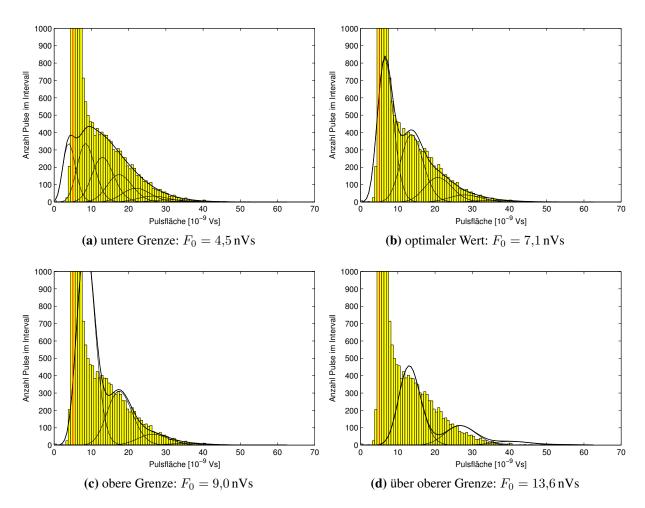


Abb. E.9: Pulsflächenhistogramm für die kommerzielle Schaltung (Verstärkung des Pulsformers $g_{PF}=10^2$, Schwelle $10\,\mathrm{mV}$) und theoretisch erwarteter Verlauf mit verschiedenen Werten für die Pulsfläche F_0 eines Einzelereignisses

Hierbei wurde jeweils zusätzlich noch ein Diagramm für einen weiteren Wert für die Pulsfläche eines Einzelereignisses über der gewählten oberen Grenze dargestellt um zu zeigen, dass sich keine Übereinstimmung mit dem Messdaten ergibt, wenn man voraussetzt, dass die Einzelereignisse über dem Rauschlevel liegen. Die Abschätzung nach unten lies sich in beiden Fällen nicht so deutlich erkennen wie bei der selbstgebauten Schaltung (siehe Abbildung E.8a). Eine Übereinstimmung mit den Messdaten für große Pulsflächen lies sich aber für niedrige Werte von F_0 nur dadurch erzielen, dass eine Photoelektronenverteilung (Einhüllende) gewählt wurde, bei der Einzelereignisse seltener sind als Doppelereignisse. Dies ist in diesem Fall unrealistisch, wie auch der Vergleich mit den Daten der selbstgebauten Schaltung zeigt.

Bei der Verstärkung $g_{PF}=10^2$ des Pulsformers ergibt sich somit für den Erwartungswert der Pulsfläche eines Einzelereignisses ein Bereich von

$$4.5 \,\mathrm{nVs} < F_0 < 9.0 \,\mathrm{nVs}$$
 (E.3)

Diese Fehlergrenzen sind in Gleichung 6.11 angegeben.

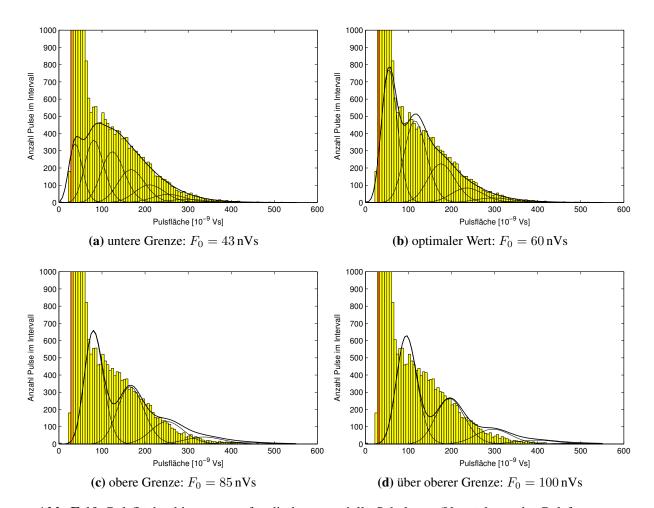


Abb. E.10: Pulsflächenhistogramm für die kommerzielle Schaltung (Verstärkung des Pulsformers $g_{PF}=10^3$, Schwelle $60\,\mathrm{mV}$) und theoretisch erwarteter Verlauf mit verschiedenen Werten für die Pulsfläche F_0 eines Einzelereignisses

Entsprechend erhält man bei $g_{PF}=10^3$ (siehe Gleichung 6.12):

$$43 \,\mathrm{nVs} < F_0 < 85 \,\mathrm{nVs}$$
 (E.4)

- [1] H.E.WHITE, *Introduction to Atomic Spectra*, McGraw-Hill Book Company, Inc., New York and London, 1934.
- [2] SIR I.NEWTON, Opticks, or a Treatise of the Reflections, Refractions, Inflections and Colours of Light, William Innys, London, 4th edition, 1730.
- [3] J.Fraunhofer, Bestimmung des Brechungs- und Farbenzerstreuungs-Vermögens verschiedener Glasarten, in Bezug auf die Vervollkommnung achromatischer Fernrohre, Gilbert's Ann. 56, S. 264–313, 1817.
- [4] G.KIRCHHOFF AND R.BUNSEN, *Chemische Analyse durch Spectralbeobachtungen*, Annalen der Physik und Chemie, Bd. 110, No. 6, S. 161–189, 1860.
- [5] A.-J. ÅNGSTRÖM, Recherches sur le Spectre Solaire, W. Schultz, Uppsala, 1968.
- [6] H.A.ROWLAND, Preliminary Notice on the Results Accomplished in the Manufacture and Theory of Gratings for Optical Purposses, Nature, Vol. 26, S. 211–213, 1882.
- [7] J.J.BALMER, Notiz über die Spektrallinien des Wasserstoffs, AdP, 25, S. 80–87, 1885.
- [8] W.N.HARTLEY, On Homolgous Spectra, J. Chem. Soc., Trans., 43, S. 390–400, 1883.
- [9] J.RYDBERG, On the structure of the line-spectra of the chemical elements, Phil. Mag., Series 5, Volume 29, S. 331–337, 1890.
- [10] A.SCHUSTER, On a new law connecting the periods of molecular vibration, Nature, No.1418, Vol.55, S. 200–201, 1896.
- [11] T.F.GALLAGHER, *Rydberg Atoms*, Cambridge Monographs on Atomic, Molecular, and Chemical Physics, Cambridge University Press, Cambridge, 1994.
- [12] N.BOHR, On the Constitution of Atoms and Molecules, Phil.Mag., Series 6, Volume 26, 1, S. 476, 1913.
- [13] H.RAUSCH VON TRAUBENBERG AND R.GEBAUER, Über den Stark-Effekt II. Ordnung bei der Balmerserie des Wasserstoffs, Z. Phys., Vol. 54, No. 5-6, S. 307–320, 1927.
- [14] E.AMALDI AND E.SEGRÈ, Effetto della Pressione Sui Termini Elevati Degli Alcalini, Nuovo Cimento, Vol.11, No.3, S. 145–156, 1934.
- [15] E.FERMI, Sopra lo Spostamento per Pressione delle Righe Elevate delle Serie Spettrali, Nuovo Cimento, Vol.11, No.3, S. 157–166, 1934.
- [16] T.H.MAIMAN, 493-494, Nature, Vol. 187, No. 5-6, S. Stimulated Optical Radiation in Ruby, 1960.

[17] A.L.SCHAWLOW AND C.H.TOWNES, *Infrared and Optical Masers*, Phys. Rev., Vol. 112, No. 6, S. 1940–1949, 1958.

- [18] W.DEMTRÖDER, *Laserspektroskopie*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 5. Auflage 2007.
- [19] S.Chu, *Nobel Lecture: The manipulation of neutral particles*, Rev. Mod. Phys., Vol. 70, No. 3, S. 685–706, 1998.
- [20] C.N.COHEN-TANNOUDJI, *Nobel Lecture: Manipulating atoms with photons*, Rev. Mod. Phys., Vol. 70, No. 3, S. 707–719, 1998.
- [21] W.D.PHILLIPS, *Nobel Lecture: Laser cooling and trapping of neutral atoms*, Rev. Mod. Phys., Vol. 70, No. 3, S. 721–741, 1998.
- [22] S.M.TARR, J.A.SCHIAVONE, AND R.S.FREUND, Long-lived high-Rydberg molecules formed by electron impact: H_2 , D_2 , N_2 , and CO, J. Chem. Phys. 74, S. 2869–2878, 1981.
- [23] C.BOISSEAU, I.SIMBOTIN, AND R.CÔTÉ, *Macrodimers: Ultralong Range Rydberg Molecules*, Phys. Rev. Lett. 88, 13, S. 133004, 2002.
- [24] C.H.GREENE, A.S.DICKINSON, AND H.R.SADEGHPOUR, *Creation of Polar and Non-polar Ultra-Long-Range Rydberg Molecules*, Phys. Rev. Lett., Vol.85, No.12, S. 2458–2461, 2000.
- [25] V.BENDKOWSKY, B.BUTSCHER, J.NIPPER, J.P.SHAFFER, R.LÖW, AND T.PFAU, *Observation of ultralong-range Rydberg molecules*, Nature, Vol. 458, Issue 5221, S. 1005–1008, 2009.
- [26] T. OKOSHI AND K. KIKUCHI, Coherent Optical Fiber Communications, Advances in Optoelectronics (ADOP), KTK Scientific Publishers, Kluver Academic Publishers, Tokyo, Dordrecht, 1988.
- [27] B.Dahmani, L.Hollberg, and R.Drullinger, Frequency stabilization of semiconductor lasers by resonant optical feedback, Opt. Lett., Vol. 12, No. 11, S. 876–878, 1987.
- [28] I. OKOSHI, K. KIKUCHI, AND A. NAKAYAMA, Novel Method for high Resolution Measurement of Laser Output Spectrum, Electronics Letters 16, 16, S. 630–631, 1980.
- [29] H. LUDVIGSEN AND ERIK BØDTKER, New method for self-homodyne laser linewidth measurements with a short delay fiber, Optics Communications 110, S. 595–598, 1994.
- [30] A. YARIV, *Optical Electronics*, Harcourt Brace Jovanovich College Publishers, Orlando, 4th international edition, 1991.
- [31] A. KHINTCHINE, *Korrelationstheorie der stationären stochastischen Prozesse*, Mathematische Annalen 109, 1, S. 604–615, 1934.
- [32] B.P. LATHI, *Modern Digital and Analog Communication Systems*, Oxford University Press, New York, Oxford, 3rd edition, 1998.
- [33] P. B. GALLION AND G. DEBARGE, Quantum Phase Noise and Field Correlation in Single Frequency Semiconductor Laser Systems, IEEE Journal of Quantum Electronics QE-20, 4, S. 343–349, 1984.

[34] L. B. MERCER, 1/f Frequency Noise Effects on Self-Heterodyne Linewidth Measurements, Journal of Lightwave Technology 9, 4, S. 485–493, 1991.

- [35] L. E. RICHTER, H. I. MANDELBERG, M. S. KRUGER, AND P. A. MCGRATH, *Linewidth Determination from Self-Heterodyne Measurements with Subcoherence Delay Times*, IEEE Journal of Quantum Electronics QE-22, 11, S. 2070–2074, 1986.
- [36] K. KIKUCHI, Effect of 1/f-Type FM Noise on Semiconductor Laser Linewidth Residual in High-Power Limit, IEEE Journal of Quantum Electronics QE-25, 4, S. 684–388, 1989.
- [37] J.J. OLIVERO AND R.L. LONGBOTHUM, *Empirical fits to the Voigt line width: A brief review*, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 17, 2, S. 233–236, 1977.
- [38] M. NAZARATHY, W.V. SORIN, D.M. BANEY, AND S.A. NEWTON, *Spectral Analysis of Optical Mixing Measurements*, Journal of Lightwave Technology 7, 7, S. 1083–1096, 1989.
- [39] B.BUTSCHER, Kollektive kohärente Anregung von ultrakalten Rydberg-Atomen, Diplomarbeit, Universität Stuttgart, 2007.
- [40] A.S.ARNOLD, J.S.WILSON, AND M.G.BOSHIER, *A simple Extended-Cavity Diode Laser*, Rev. Sci. Instrum., Vol. 69, No. 3, S. 1236–1239, 1998.
- [41] J.H.SHIRLEY, Modulation transfer processes in optical heterodyne saturation spectroscopy, Opt. Lett., Vol. 7, No. 11, S. 537–539, 1982.
- [42] M.LONG-SHENG, L.HOLLBERG, J.H.SHIRLEY, AND J.L.HALL, *Modulation Transfer Spectroscopy for Stabilizing Lasers*, U.S. Patent Number 4,590,567, 1986.
- [43] S.A.SCHULZ, Scalable Microchip Ion Traps for Quantum Computation, Dissertation, Universität Ulm, 2009.
- [44] D.A.STECK, *Rubidium 87 D Line Data*, Oregon Center for Optics and Department of Physics, University of Oregon, revision 2.0.1, 2008.
- [45] 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, S. 97–105, 1983.
- [46] E.D.BLACK, An introduction to Pound-Drever-Hall laser frequency stabilization, American Journal of Physics, Volume 69, Issue 1, S. 79–87, 2001.
- [47] R.W.FOX, C.W.OATES, AND L.W.HOLLBERG, Stabilizing Diode Lasers to High-Finesse Cavities, 2002.
- [48] J.APPEL, A.MACRAE, AND A.I.LVOVSKY, A versatile digital GHz phase lock for external cavity diode lasers, Measurement Science and Technology 20, 055302, 2009.
- [49] K.PETERMANN, *Laser Diode Modulation and Noise*, Advances in Optoelectronics (AD-OP), Kluver Academic Publishers, Dordrecht, Boston, London, 2nd edition, 1991.
- [50] J.RUTMAN AND F.L.WALLS, Characterization of Frequency Stability In Precision Frequency Sources, Proceedings of the IEEE, Vol. 79, No. 7, S. 952–960, 1991.

[51] D.W.ALLAN, *Statistics of Atomic Frequency Standards*, Proceedings of the IEEE, Vol. 54, No. 2, S. 221–230, 1966.

- [52] J.A.Barnes, A.R.Chi, L.S.Cutler, D.J.Healy, D.B. Leeson, T.E. MacGunigal, J.A.Mullen, W.L.Smith, R.L.Sydnor, R.Vessot, and G.M.R. Winkler, *Characterization of Frequency Stability*, IEE Trans. Instrum. Meas., Vol. IM-20, S. 105–120, 1971.
- [53] S.KUNZE, S.WOLF, AND G.REMPE, Measurement of fast frequency fluctuations: Allan variance of a grating-stabilized diode laser, Optics Communications 128, S. 269–274, 1996.
- [54] N.BOHR, Über die Serienspektra der Elemente, Zeitschrift für Physik, 2.Band, 5.Heft, S. 423–469, 1920.
- [55] A.SOMMERFELD, Über die Serienspektra der Elemente, Annalen der Physik, IV.Folge, Band 51, No.17/18, S. 1–94/125–167, 1916.
- [56] T.P.HEZEL, C.E.BURKHARDT, M.CIOCCA, L-W.HE, AND J.J.LEVENTHAL, *Classical view of the properties of Rydberg atoms: Application of the correspondence principle*, American Journal of Physics, Volume 60, Issue 4, S. 329–335, 1992.
- [57] G.D.MAHAN AND K.R.SUBBASWAMY, *Local Density Theory of Polarizability*, Physics of Solids and Liquids, Plenum Press, New York, 1990.
- [58] R.R.FREEMAN AND D.KLEPPNER, Core polarization and quantum defects in high-angular-momentum states of alkali atoms, Phys. Rev. A, Vol.14 No.5, S. 1614–1619, 1976.
- [59] J.E.MAYER AND M.GOEPPERT MAYER, *The Polarizabilities of Ions from Spectra*, Phys. Rev., Vol.43, S. 605–611, 1933.
- [60] R.R.FREEMAN AND D.KLEPPNER, *Quantum defect theory*, Rep. Prog. Phys., Vol.46, S. 167–257, 1983.
- [61] F.GOUNAND, Calculation of radial matrix elements and radiative lifetimes for highly excited states of alkali atoms using the Coulomb approximation, Journal de Physique, 40, S. 457–460, 1979.
- [62] V.A.NASCIMENTO, L.L.CALIRI, A.L.DEOLIVEIRA, V.S.BAGNATO, AND L.G.MARCASSA, Measurement of the lifetimes of S and D states below n=31 using cold Rydberg gas, Phys. Rev. A, Vol.74, No.5, S. 054501, 2006.
- [63] I.I.BETEROV, I.I.RYABTSEV, D.B.TRETYAKOV, AND V.M.ENTIN, Quasiclassical calculations of blackbody-radiation-induced depopulation rates and effective lifetimes of Rydberg nS, nP, and nD alkali-metal atoms with $n \le 80$, Phys. Rev. A, Volume 79, Issue 5, S. 052504, 2009.
- [64] W.E.COOKE AND T.F.GALLAGHER, Effects of blackbody radiation on highly excited atoms, Phys. Rev. A, Vol.21, No.2, S. 588–593, 1980.
- [65] C.REINSBERG, Zur Theorie der Druckverschiebung der Spektrallinien in der Nähe des Serienendes, Z.Phys. 93, S. 416, 1934.

[66] C.Reinsberg, Zur Theorie der Verbreiterung der Spektrallinien einer Serie durch Fremdgase., Z.Phys. 105, S. 460, 1937.

- [67] A.OMONT, On the theory of collisions of atoms in Rydberg states with neutral particles, Journal de Physique, 38, S. 1343–1359, 1977.
- [68] E.ROUEFF, A Theorectical Model for the Interaction between Excited and Ground State Atoms. Application to Pressure Broadening, Astron.& Astrophys. 7, S. 4–9, 1971.
- [69] C.BAHRIM, U.THUMM, AND I.I.FABRIKANT, ${}^3S^e$ and ${}^1S^e$ scattering lengths for $e^- + Rb$, Cs and Fr collisions, J.Phys. B, 34, S. L195–L201, 2001.
- [70] A.GRABOWSKI, Aufbau einer Messapparatur zur Laserkühlung und hochauflösende Rydberg-Spektroskopie an ⁸⁷Rb-Atomen, Dissertation, Universität Stuttgart, 2006.
- [71] M.S.O'SULLIVAN AND B.P.STOICHEFF, Scalar polarizabilities and avoided crossings of high Rydberg states in Rb, Phys. Rev. A, Vol.31, No.4, S. 2718–2720, 1984.
- [72] R.J.LEROY, *LEVEL 8.0: A Computer Program for Solving the Radial Schrödinger Equation for Bound and Quasibound Levels*, University of Waterloo Chemical Physics Research Report CP-663 (2007), http://leroy.uwaterloo.ca/programs/.
- [73] I.C.H.LIU AND J.M.ROST, *Polyatomic molecules formed with a Rydberg atom in an ultracold environment*, Eur. Phys J. D 40, S. 65–71, 2006.
- [74] V.BENDKOWSKY, B.BUTSCHER, J.NIPPER, J.BALEWSKI, J.P.SHAFFER, R.LÖW, T.PFAU, W.LI, J.STANOJEVIC, T.POHL, AND J.M.ROST, in Vorbereitung.
- [75] H.HAKEN AND H.W.WOLF, *Molekülphysik und Quantenchemie*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 5. Auflage 2006.
- [76] J.H.VANVLECK, *The theory of electric and magnetic susceptibilities*, The international series of monographs on physics, Oxford University Press, London, 1932.
- [77] H.HAKEN AND H.W.WOLF, *Atom- und Quantenphysik*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 8. Auflage 2004.
- [78] W.DEMTRÖDER, Molekülphysik, Oldenbourg Verlag, München, Wien, 2003.
- [79] H.W.KROTO, Molecular Rotation Spectra, Wiley&Sons, New York, 1975.
- [80] M.OKRUSS, Rotationsstruktur- und Starkeffektuntersuchungen an ausgewählten aromatischen Molekülen im Überschalldüsenstrahl mittels hochauflösender UV-Laserspektroskopie, Dissertation, TU Berlin, 2005.
- [81] A.L.SCHAWLOW C.H.TOWNES, *Microwave spectroscopy*, Dover Publications, New York, 1975.
- [82] J.E.WOLLRAB, *Rotational Spectra and Molecular Structure*, Physical Chemistry, A Series of Monographs, Academic Press Inc., New York, London, 1967.
- [83] S.GOLDEN AND E.BRIGHT WILSON JR., *The Stark Effect for a Rigid Asymmetric Rotor*, J. Chem. Phys., Vol. 16, No. 7, S. 669–685, 1949.
- [84] R.Löw, A versatile setup for experiments with Rubidium Bose Einstein condensates: From optical lattices to Rydberg matter, Dissertation, Universität Stuttgart, 2006.

[85] R.LÖW, U.RAITZSCH, R.HEIDEMANN, V.BENDKOWSKY, B.BUTSCHER, A.GRABOWSKI, AND T.PFAU, Apparatus for excitation and detection of Rydberg atoms in quantum gases, arXiv:0706.2639v1, 2007.

- [86] M.H.ANDERSON, J.R.ENSHER, M.R.MATTHEWS, C.E.WIEMAN, AND E.A.CORNELL, *Observation of Bose-Einstein condensation in a dilute atomic vapor*, Science, New Series, Volume 269, Issue 5221, S. 198–201, 1995.
- [87] C.J.FOOT, *Atomic Physics*, Oxford Master Series in Atomic, Optical and Laser Physics, Oxford University Press, Oxford, New York, 2005.
- [88] D.M.Brink and C.V.Sukumar, *Majorana spin-flip transitions in a magnetic trap*, Phys.Rev. A 74, 035401, 2006.
- [89] R.HEIDEMANN, Rydberg Excitation of Bose-Einstein Condensates: Coherent Collective Dynamics, Dissertation, Universität Stuttgart, 2008.
- [90] P.KOLLMANN, Dynamik und Dephasierung der kohärenten, kollektiven Rydberganregung ultrakalter Rubidiumatome, Diplomarbeit, Universität Stuttgart, 2008.
- [91] E.H.BELLAMY, G.BELLETTINI, J.BUDAGOV, F.CERVELLI, I.CHIRIKOV-ZORIN, M.INCAGLI, D. LUCCHESI, C.PAGLIARONE, S.TOKÁR, AND F.ZETTI, *Absolute calibration and monitoring of a spectrometric channel using a photomultiplier*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, S. 468–476, 1993.
- [92] S.TOKÁR, I.SÝKORA, M.PIKNA, AND I.CHIRIKOV-ZORIN, Single Photoelectron Spectra Analysis for the Metal Dynode Photomultiplier, ATL-TILECAL-99-005, 1999.
- [93] D.H.SUTTER AND W.H.FLYGARE, *The Molecular Zeeman Effect*, Topics in Current Chemistry 63, Bonding and Structure, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1976.
- [94] A.L.DEOLIVEIRA, M.W.MANCINI, V.S.BAGNATO, AND L.G.MARCASSA, *Rydberg Cold Collisions Dominated by Ultralong Range Potential*, Phys. Rev. A, Vol.90, No.14, S. 143002, 2003.
- [95] T.WANG, S.F.YELIN, R.CÔTÉ, E.E.EYLER, S.M.FAROOQI, P.L.GOULD, M.KOŠTRUN, D.TONG, AND D.VRINCEANU, Superradiance in ultracold Rydberg gases, Phys. Rev. A, Volume 75, Issue 3, S. 033802, 2007.
- [96] R.H.DICKE, Coherence in Spontaneous Radiation Processes, Phys. Rev., Volume 93, Issue 1, S. 99–110, 1954.
- [97] J.C.MACGILLIVRAY AND M.S.FELD, *Theory of superradiance in an extended, optically thick medium*, Phys. Rev. A, Vol. 14, No. 3, S. 1169–1189, 1976.
- [98] R.BONIFACIO AND L.A.LUGIATO, Cooperative radiation processes in two-level systems: Superfluorescence, Phys. Rev. A, Vol. 11, No. 5, S. 1507–1521, 1974.
- [99] A.L.DEOLIVEIRA, M.W.MANCINI, V.S.BAGNATO, AND L.G.MARCASSA, *Measurement of Rydberg-state lifetimes using cold trapped atoms*, Phys. Rev. A, Vol.65, No.3, S. 031401, 2002.

[100] M.CHÉRET, A.SPIELFIEDEL, R.DURAND, AND R.DELOCHE, *Collisional ionisation of highly excited rubidium S state*, J. Phys. B: At. Mol. Phys. 14, S. 3953–3959, 1981.

- [101] V.BENDKOWSKY, *Ultralong-range Rydberg molecules: Investigation of a novel binding*, Dissertation, Universität Stuttgart, 2009.
- [102] M.CHÉRET, L.BARBIER, W.LINDINGER, AND R.DELOCHE, *Penning and associative ionisation of highly excited rubidium atoms*, J. Phys. B: At. Mol. Phys. 15, S. 3463–3477, 1982.
- [103] L.BARBIER, M.T.DJERAD, AND M.CHÉRET, Collisional ion-pair formation in an excited alkali-metal vapour, Phys. Rev. A, Vol.34, No.4, S. 2710–2718, 1986.
- [104] E.D.KUHNLE, *Rydberg excitation of a Bose-Einstein condensate*, Diplomarbeit, Universität Stuttgart, 2006.
- [105] J.PRITCHARD, private Mitteilung.
- [106] F.COESTER, Stark-Zeeman-Effects on Symmetric Top Molecules with Nuclear Quadrupole Coupling, Phys. Rev., Vol. 77 No. 4, S. 454–462, 1950.
- [107] K.KONDO AND T.OKA, Stark-Zeeman-Effects on Asymmetric Top Molecules. Formal-dehyde H_2CO ., J. Phys. Soc. Japan, Vol. 15 No. 2, S. 307–314, 1960.
- [108] A.I.MERGOIZ, J.TROE, AND CH.WEISS, Stark energy levels of symmetric top dipoles: Analytical expressions for arbitrary field strengths, J. Chem. Phys., Vol. 101, No. 3, S. 1885–1889, 1994.
- [109] M.PETER AND M.W.P.STRANDBERG, *High-Field Stark Effect in Linear Rotors*, J. Chem. Phys., Vol. 26, No. 6, S. 1657–1659, 1957.
- [110] G.J.HATTON, Avoided crossings of resonance energy curves of one-electron atoms in an external electric field, Phys. Rev. A, Vol. 16, No. 4, S. 1347–1351, 1977.
- [111] M.L.ZIMMERMAN, M.G.LITTMAN, M.M.KASH, AND D.KLEPPNER, *Stark structure of the Rydberg states of alkali-metal atoms*, Phys. Rev. A, Vol. 20, No. 6, S. 2251–2275, 1979.
- [112] W.LI, private Mitteilung.
- [113] K.J.MILLER, Calculation of the Molecular Polarizability Tensor, J. Am. Chem. Soc. 112 (23), S. 8543–8551, 1990.
- [114] E.L.HAMILTON, C.H.GREENE, AND H.R.SADEGHPOUR, *Shape-resonance-induced long-range molecular Rydberg states*, J. Phys. B, Vol. 35, No. 10, S. L199–L206, 2002.
- [115] U.RAITZSCH, V.BENDKOWSKY, R.HEIDEMANN, B.BUTSCHER, R.LÖW, AND T.PFAU, *Echo Experiments in a Strongly Interacting Rydberg Gas*, Phys. Rev. Lett, Vol. 100, No. 1, S. 013002, 2008.
- [116] M.SAFFMAN, T.G.WALKER, AND K.MØLMER, Quantum information with Rydberg atoms, arXiv:, S. 0909.4777v1 [quant-ph], 2009.
- [117] P.RABL AND P.ZOLLER, Molecular dipolar crystals as high-fidelity quantum memory for hybrid quantum computing, Phys. Rev. A, Volume 76, Issue 11, S. 042308, 2007.

[118] R.HEIDEMANN, U.RAITZSCH, V.BENDKOWSKY, B.BUTSCHER, R.LÖW, AND T.PFAU, *Rydberg Excitation of Bose-Einstein Condensates*, Phys. Rev. Lett, Vol. 100, No. 3, S. 033601, 2008.

- [119] I.LESANOVSKY, A.MICHELI, AND G.PUPILLO, Notes on: Tailoring the interaction between ground state atoms using Rydberg states, private Mitteilung.
- [120] H.P.Büchler, E.Demler, M.Lukin, A.Micheli, N.Prokof'ev, G.Pupillo, AND P.Zoller, *Strongly correlated 2D quantum phases with cold polar molecules: controlling the shape of the interaction potential*, Phys. Rev. Lett, Vol. 98, No. 6, S. 060404, 2007.
- [121] K.-K.NI, S.OSPELKAUS, M.H.G.DEMIRANDA, A.PE'ER, B.NEYENHUIS, J.J.ZIRBEL, S.KOTOCHIGOVA, P.S.JULIENNE, D.S.JIN, AND J.YE, *A High Phase-Space-Density Gas of Polar Molecules*, Science Vol. 322, No. 231, S. 231–235, 2008.
- [122] J.STUHLER, A.GRIESMAIER, T.KOCH, M.FATTORI, T.PFAU, S.GIOVANAZZI, P.PEDRI, AND L.SANTOS, *Observation of Dipole-Dipole Interaction in a Degenerate Quantum Gas*, Phys. Rev. Lett, Vol. 95, No. 15, S. 150406, 2005.
- [123] H.WEIMER, R.LÖW, T.PFAU, AND H.P.BÜCHLER, Quantum Critical Behavior in Strongly Interacting Rydberg Gases, Phys. Rev. Lett, Vol. 101, No. 25, S. 250601, 2008.
- [124] L.HOLLBERG, R.FOX, S.WALTMAN, AND H.ROBINSON, *Precision Spectroscopy, Diode Lasers, and Optical Frequency Measurement Technology*, NIST Technical Note 1504, U.S. Government Printing Office, Washington, 1998.
- [125] J.BARTL, R.FÎRA, AND V.JACKO, *Tuning of the laser diode*, Measurement Science Review, Volume 2, Section 3, S. 9–15, 2002.
- [126] P.C.CROSS, R.M.HAINER, G.W.KING, AND A.D.LITTLE, *The Asymmetric Rotor: II. Calculation of Dipole Intensities and Line Classification*, J. Chem. Phys., Vol. 12, No. 6, S. 210–243, 1944.
- [127] L.H.SCHARPEN, J.S.MUENTER, AND V.W.LAURIE, *Determination of the Polarizability Anisotropy of OCS by Microwave Spectroscopy*, J. Chem. Phys., Vol. 46, No. 6, S. 2431–2434, 1967.
- [128] A.REQUENA, R.PENA, AND A.SERNA, *Perturbation for a Rigid Rotator in an Electric Field*, Int. J. Quantum Chem., Volume 22, Issue 6, S. 1263–1270, 1982.
- [129] H.K.Hughes, *The Electric Resonance Method of Radiofrequency Spectroscopy. The Moment of Inertia and Dipole Moment of CsF*, Phys. Rev., Vol. 72, No. 7, S. 614–623, 1947.
- [130] C.SCHLIER, Der Stark-Effekt des symmetrischen Kreiselmoleküls bei hohen Feldstärken, Z. Phys., Bd. 141, S. 16–18, 1955.

Danksagung

Abschließend möchte ich denen danken, die zur vorliegenden Arbeit beigetragen haben. In besonderem Maße sind dies:

- Prof. Dr. Tilman Pfau, ohne dessen Einsatz das Experiment in der bestehenden Form nicht möglich wäre.
- Prof. Dr. Jörg Wrachtrup, der den Mitbericht und die damit verbundenen Mühen auf sich genommen hat.
- Dr. Robert Löw, der das Experiment aufgebaut hat und mit hilfreichen Ratschlägen zur Seite stand.
- Björn Butscher, der in allen Lagen wertvolle Tipps und Tricks parat hatte.
- Vera Bendkowsky, die sich sehr viel Zeit für Erklärungen genommen hat.
- Johannes Nipper, von dem ich den Umgang mit der Optik gelernt habe und der für alle Fragen offen war.
- Livio Romano, der mit dem Aufbau des Resonators wichtige Vorarbeit geleistet hat.
- die Mitarbeiter der Elektronikwerkstatt, deren Arbeiten an den AOM-Treibern und der Temperaturregelung des Resonators wesentlich zu den gemachten Fortschritten beigetragen haben.
- Karin Otter, Oliver Nagel und Beatrice Olgun-Lichtenberg, die bei sämtlichen Verwaltungsfragen helfend zur Seite standen.