UNIVERSITÄT STUTTGART

5. PHYSIKALISCHES INSTITUT

Zeemanlinien und kohärentes Verhalten der Rydberg-Moleküle

Diplomarbeit

von: Ludmila Kukota

Hauptberichter: Prof. Dr. Tilman Pfau

Mitberichter: Prof. Dr. Martin Dressel

eingereicht am: 30. April 2012

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 30. April 2012 Ludmila Kukota

Inhaltsverzeichnis

Einleitung **7**

1 Grundlagen der Atomphysik **9**
1.1 Quantenmechanische Behandlung des Rubidiums 9
1.2 Atome im Magnetfeld 10
1.3 Rydbergatome 14
1.4 Lebensdauer 17

2 Zwei-Niveau-System **25**
2.1 Bedeutung der Komponenten des Blochvektors 30
2.2 Dissipative Effekte 31
2.3 Resonante Pulse 32
2.4 Nicht resonante Pulse 35
2.5 Ramseyspektroskopie 35
2.6 Rotary-Echo-Spektroskopie 40
2.7 Kühlmethoden für Atome 43

3 Aufbau und Durchführung von Experimenten an ultrakalten Atomen **45**
3.1 Optischer Aufbau zur Anregung der Atome 47

4 Messungen an den Spulen der Cloverleaf-Falle **51**

5 Rydberg-Moleküle **57**
5.1 Wechselwirkung zwischen Rydbergatom und Grundzustandsatom 57
5.2 Streutheorie 58
5.3 Rydberg-Moleküle im Magnetfeld 64

6 Messungen im Magnetfeld **67**
6.1 Rydbergatome im Magnetfeld 67
6.2 Rydberg-Moleküle im Magnetfeld 80

7 Messungen am kohärenten System **95**
7.1 Ramseyspektroskopie 95
7.2 Rotary-Echo-Spektroskopie 98

8 Zusammenfassung und Ausblick **103**
8.1 Zusammenfassung 103
8.2 Ausblick 103

A Spektren zum Zeeman-Effekt **107**

Literatur **115**

Einleitung

Atome lassen sich nicht mit herkömmlichen optischen Instrumenten, wie z.B. einem Mikroskop beobachten, weil sie dafür viel zu klein sind. Um sie trotzdem erforschen zu können, haben Physiker auf andere Hilfsmittel zurückgegriffen. Eines dieser Hilfsmittel sind Absorptions- und Emissionspektren. So können in der Chemie durch das Verbrennen von Salzen anhand der Flammenfärbung Rückschlüsse auf die Elemente, aus dem das Salz besteht, gezogen werden. Außerdem bieten Emissionsspektren den Vorteil, dass man Materie, die viele Lichtjahre entfernt ist, trotzdem auf ihre Bestandteile untersuchen kann. So wurde z.B. in der Astrophysik der Aufbau von Sternen anhand von Emissionsspektren analysiert. Bei beidem wird ausgenutzt, dass jedes Element spezifische Emissionsspektren besitzt. Das erkannten bereits Bunsen und Kirchhoff [1]. Das Bohrsche Atommodell [2] lieferte dann die ersten Erklärungsansätze. Die Elektronen in einem Atom können sich nur auf bestimmten Bahnen bewegen. Mit dem Welle-Teilchen-Dualismus, der aus der Schrödinger-Gleichung folgt, konnte gezeigt werden, dass die Elektronen auf diesen Bahnen stehende Wellen bilden. Außerdem konnte mit dieser Gleichung, die Schrödinger 1926 aufstellte, theoretisch beschrieben werden, welche Energieniveaus die Elektronen in Atomen haben und wie sich äußere Störungen auf die Atome auswirken. Die Spektroskopie hilft dann, das theoretisch vorhergesagte Verhalten zu überprüfen.
Die Elektronen in der äußersten Schale eines Atoms, die sogenannten Valenzelektronen, können durch Energiezufuhr angeregt werden. Wenn sie in einen hochangeregten Zustand, also eine hochliegende Bahn, angeregt werden, dann bezeichnet man die Atome als Rydbergatome. Die Rydbergatome können mit einem Atom im Grundzustand ein Molekül bilden. Dabei handelt es sich nicht um eine kovalente Bindung, die in herkömmlichen Molekülen, wie z.B. H_2O, die Atome zusammenhält. Stattdessen kommt die Bindung zu Stande, weil das Valenzelektron des Rydbergatoms an einem Grundzustandsatom gestreut wird. Ein langreichweitiges Potential kann ein Teilchen, das sich in seiner Reichweite befindet, dauerhaft binden. Beim Rydberg-Molekül bildet das Grundzustandsatom das langreichweitige Potential. Wenn an einem langreichweitigen Potential ein Teilchen gestreut wird, dann können auf das Teilchen attraktive Kräfte wirken. Deshalb kann die Sonne Kometen einfangen.
In dieser Arbeit wurden die Zeemanlinien der Rydberg-Moleküle untersucht. Als Zeemanlinien bezeichnet man die Magnetfeldabhängigkeit der Spektren der Rydberg-Moleküle. Die Valenzelektronen des Rydbergatoms und des Grundzustandsatoms koppeln aneinander und verhalten sich wie ein Magnet. Dieser Magnet hat mehrere Möglichkeiten, wie er

sich bezüglich des äußeren Magnetfeldes ausrichten kann. Je nach Ausrichtung verhalten sich die entsprechenden Zeemanlinien bei einer Änderung des äußeren Magnetfeldes unterschiedlich.
Des Weiteren wurde im Rahmen dieser Arbeit die Kohärenzzeit und Lebensdauer des Rydberg-Moleküls untersucht.
Die Lebensdauer der Kohärenz ist die Zeit, in der ein e-tel der anfangs angeregten Moleküle seine Phasenbeziehung zu den anderen Rydberg-Molekülen verliert. Die Lebensdauer des Rydberg-Moleküls und die Lebensdauer der Kohärenzzeit können gleichzeitig mit der Ramseyspektroskopie [3] oder der Rotery-Echo-Spektroskopie [4, 5] gemessen werden.
Bei der Ramseyspektroskopie werden die Atome durch zwei gleich lange und gleich starke Anregungspulse angeregt. Die Pulse sind durch eine Wartezeit getrennt. Mit dem ersten Puls wird eine Superposition aus zwei Grundzustandsatomen und einem Rydberg-Molekül gebildet. Während der Wartezeit entwickelt sich die Superposition in der Zeit. Dabei können dissipative Effekte, wie spontaner Zerfall, und dekohärente Effekte, wie der Verlust der Phasenbeziehung der Rydberg-Moleküle, auftreten. Das Messergebnis nach dem zweiten Puls hängt sehr stark von diesen dissipativen und dekohärenten Prozessen ab.
Bei der Rotary-Echo-Spektroskopie wird während der Anregung die Phase des Anregungspulses invertiert. Das führt zu einer Inversion der Anregung bei einem kohärenten System in der Zeit.
In den Kap.1 und Kap.5 wird die Theorie zu den Zeemanlinien von Rydbergatomen und Rydberg-Molekülen behandelt. Im Kap.6 werden die dazugehörigen Messungen ausgewertet. Das Kap.2 behandelt das Zwei-Niveau-Atom. Damit können die kohärenten Effekte im Rydberg-Molekül erklärt werden, auf deren experimentelle Untersuchung in Kap.7 eingegangen wird. Im Kap.3 wird der experimentellen Aufbau beschrieben.

Kapitel 1

Grundlagen der Atomphysik

Ende des 19. Jahrhunderts wurde beobachtet, dass angeregte Atome nur Licht einer charakteristischer Wellenlänge abstrahlen, was zunächst nicht erklärt werden konnte. Im Laufe der Zeit hat man durch Experimente herausgefunden, dass das Atom aus einem Kern, der aus Protonen und Neutronen besteht, und aus Elektronen, die negativ geladen sind und die Hülle bilden, besteht. Man nahm an, dass die Elektronen um den Kern kreisen. Aber kreisende Ladungen werden beschleunigt und aus den Maxwell-Gleichungen folgt, dass beschleunigte Ladungen Energie abstrahlen. Mit anderen Worten sollten Atome instabil sein, da das Elektron in den Kern stürzen sollte. Außerdem würde es dabei Licht mit einem kontinuierlichen Spektrum abstrahlen. Aber offentsichtlich sind Atome stabil.
Die Suche nach der Erklärung von diesen Sachverhalten hat zu einem neuen Teilgebiet der Physik geführt – der Quantenmechanik.

1.1 Quantenmechanische Behandlung des Rubidiums

Die Schrödingergleichung für ein Valenzelektron im Coulombpotential eines Kernes lautet

$$-\frac{\hbar^2}{2m_1}\Delta_1\Psi - \frac{\hbar^2}{2m_2}\Delta_2\Psi - \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r}\Psi = E\Psi(\underline{r}_1, \underline{r}_2), \tag{1.1.1}$$

wobei m_1 die Masse und $\underline{r}_1$ der Ortsvektor des Elektrons ist, entsprechend ist m_2 die Masse, $\underline{r}_2$ der Ortsvektor und $Z = 37$ die Ladung des Kerns. Ψ ist die Wellenfunktion des Elektrons.
Da das Coulombpotential kugelsymmetrisch ist, wird zur Vereinfachung der Rechnung in Kugelkoordinaten transformiert. Diese Gleichung kann dann separiert werden in den Winkelanteil und in den Radialanteil. Wie man das genau berechnet, kann der interessierte Leser in Büchern über Quantenmechanik nachlesen, z.B. in [6].
Die Lösungen für die Eigenwertgleichung des Winkelanteils sind die Kugelflächenfunktionen

$$Y_l^m(\vartheta,\varphi) = \sqrt{\frac{2l+1}{2}\cdot\frac{(l-m_l)!}{(l+m_l)!}}\cdot\frac{(-1)^{m_l}}{2^l l!}(1-\cos\vartheta)^{\frac{m_l}{2}}\frac{d^{l+m_l}(\cos^2\vartheta-1)^l}{(d\cos\vartheta)^{l+m_l}} \cdot\frac{1}{\sqrt{2\pi}}\,\mathrm{e}^{i\cdot m_l\varphi}, \tag{1.1.2}$$

die zum einen aus den normierten Legendre-Polynomen

$$\Theta_l^m(\vartheta) = \sqrt{\frac{2l+1}{2}\cdot\frac{(l-m_l)!}{(l+m_l)!}}\cdot\frac{(-1)^{m_l}}{2^l l!}(1-\cos\vartheta)^{\frac{m_l}{2}}\frac{d^{l+m_l}(\cos^2\vartheta-1)^l}{(d\cos\vartheta)^{l+m_l}} \tag{1.1.3}$$

und der Lösung der Azimutalgleichung

$$\Phi_{m_l}(\varphi) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\,\mathrm{e}^{i\cdot m_l\varphi} \tag{1.1.4}$$

bestehen. Wobei l die Bahndrehimpulsquantenzahl ist und m_l die magnetische Quantenzahl. Der Bahndrehimpuls l ist ganzzahlig und für m_l gilt $-l \leq m_l \leq l$. Die Kugelflächenfunktionen sind Lösungen für alle radialsymmetrischen Probleme, d.h. für alle Atome, die ein Valenzelektronen haben.
Für den Radialteil gibt es keine analytische Lösung. Man kann den Radialteil der Wellenfunktion mit dem Numerovverfahren berechnen [7]. Die so berechneten radialen Wellenfunktionen wurden im Kap.1.9 benutzt, um die Lebensdauer zu berechnen.
Die Schrödingergleichung beschreibt nicht vollständig die Energie und die Wellenfunktion der Valenzelektronen im Atom, da sie den Spin des Elektrons nicht berücksichtigt. Deshalb muss die LS-Kopplung (Spin-Bahn-Kopplung) und die Hyperfeinstruktur, das ist die Kopplung zwischen dem Kernspin und dem Elektronenspin, nachträglich hinzugefügt werden. Diese Effekte werden in Kap.1.2 behandelt. Der Lamb-Shift wurde außer Acht gelassen, weil die Energieverschiebung, die durch ihn verursacht wird, bei den Messungen keine Rolle spielt. Der Lamb-Shift wird durch Vakuumfluktuationen und die Quantisierung des Coulombfeldes des Kerns verursacht.

1.2 Atome im Magnetfeld

In diesem Kapitel wurde eine teilweise halbklassische Erklärung gewählt, da diese verständlicher ist als die Herleitung des Bahndrehimpulses, des Spins, der LS-Kopplung und der Hyperfeinstruktur aus der Diracgleichung und trotzdem zu denselben Ergebnissen führt. Die Herleitung aus der Diracgleichung kann in [6] nachgelesen werden.
Die Spin-Bahnkopplung kann durch die folgende Überlegung berechnet werden. So bewegt sich das Elektron in einem statischen elektrischen Feld

$$\underline{E} = -\frac{1}{e}\,\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0}\,\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}r}\frac{\underline{r}}{r}, \tag{1.2.1}$$

das der Kern mit der Ladung Ze erzeugt. Das Coulombfeld ist elektrostatisch. Deshalb wird im Ruhesystem des Elektrons laut den Maxwellgleichungen ein Magnetfeld

$$\underline{B}_e = -\frac{1}{c^2}\underline{v} \times \underline{E} \tag{1.2.2}$$

erzeugt. Das Elektron besitzt einen Spin $\underline{s}$ mit dem magnetischen Moment

$$\underline{\mu}_s = \frac{e\underline{s}}{m_e}. \tag{1.2.3}$$

Dessen Kopplung an das Magnetfeld $\underline{B}$ mit der Gl.(1.2.1) führt zu der Energie

$$\begin{aligned} E_{ls} &= -\underline{\mu}_s \cdot \underline{B}_e \\ &= \frac{Ze^2\mu_0}{4\pi m_e^2 r^3}\underline{p} \times \underline{r} \cdot \underline{s}, \end{aligned} \tag{1.2.4}$$

mit dem Elektronenimpuls

$$p = m_e\underline{v} \tag{1.2.5}$$

und es gilt

$$c^2 = \frac{1}{\mu_0\epsilon_0}. \tag{1.2.6}$$

Das Korrespondenzprinzip besagt, dass in der Quantenmechanik dieselben Gesetzmäßigkeiten zwischen physikalischen Größen gelten, wie in der klassischen Mechanik, man aber die klassische Größe durch den entsprechenden Operator ersetzen muss. Für den Drehimpuls $\underline{l}$ folgt dann

$$\underline{l} = \underline{p} \times \underline{r}. \tag{1.2.7}$$

Damit wird aus der Gl.(1.2.4) mit der Gl.(1.2.6)

$$E_{ls} = \frac{Ze^2\mu_0}{4\pi m_e^2 r^3}\underline{l} \cdot \underline{s}. \tag{1.2.8}$$

Da sich der Spin des Elektrons bezüglich des Laborsystems (in dem gemessen wird) dreht, muss in die obere Gleichung noch ein Faktor $\frac{1}{2}$, der sogenannte Thomas-Faktor, eingefügt werden [8]. Somit folgt für die obere Gleichung:

$$E_{ls} = \frac{Ze^2\mu_0}{8\pi m_e^2 r^3}\underline{l} \cdot \underline{s}. \tag{1.2.9}$$

Um den Ausdruck $\underline{l} \cdot \underline{s}$ berechnen zu können, wird der Gesamtdrehimpuls

$$\underline{j} = \underline{l} + \underline{s} \tag{1.2.10}$$

eingeführt. Damit folgt mit dem Satz von Pythagoras und den Erwartungswerten der Operatoren[1]

$$\underline{l} \cdot \underline{s} = \frac{1}{2}[j(j+1) - l(l+1) - s(s+1)]\hbar. \tag{1.2.11}$$

Das Elektron bewegt sich klassisch gesehen auf einer Kreisbahn um den Kern, was einem Ringstrom (s. Abb.(1.1)) entspricht. So ein Ringstrom würde das folgende magnetische Moment erzeugen:

$$\underline{\mu}_e = I \cdot \underline{A} \tag{1.2.12}$$

$$= -\frac{evr}{2} \cdot \widehat{n}. \tag{1.2.13}$$

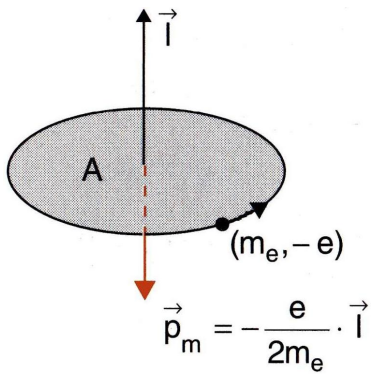

Abbildung 1.1: Veranschaulichung des Ringstroms, den das Elektron erzeugt [9].

Die Gl.(1.2.7) kann zu

$$\underline{l} = m \cdot r \cdot v \cdot \widehat{n} \tag{1.2.14}$$

umgeschrieben werden. Aus den beiden Gleichungen (1.2.13) und (1.2.14) folgt für das magnetische Moment des Bahndrehimpulses

$$\underline{\mu}_e = -\frac{e}{2m_e}\underline{l}. \tag{1.2.15}$$

Als nächstes wird das Verhalten der Drehimpulse im Coulombpotential des Kernes behandelt. Der Gesamtdrehimpuls des Atoms bleibt in einem Zentralpotential, und dazu gehört das Coulombfeld, zeitlich konstant und damit auch $\underline{j}$. Da bei quantenmechanischen Drehimpulsen nur der Betrag und eine Raumkomponente gleichzeitig eindeutig bestimmbar sein können, präzedieren der Bahndrehimpuls $\underline{l}$ und der Spin $\underline{s}$ um den Gesamtdrehimpuls[2] $\underline{j}$. Bei einem äußeren Magnetfeld erfährt das magnetische Moment $\underline{\mu}_j$ des Gesamtdrehimpulses ein Drehmoment und damit auch der Gesamtdrehimpuls $\underline{j}$, der anfängt um das äußere Magnetfeld zu präzedieren. Der Bahndrehimpuls $\underline{l}$ und der Spin $\underline{s}$ präzedieren weiterhin um den Gesamtdrehimpuls $\underline{j}$ und damit auch ihre magnetischen Momente.

[1] Der Erwartungswert eines Drehimpulses $\underline{d}$ ist $|\underline{d}| = \hbar\sqrt{d(d+1)}$. Wobei für d, der maximale Wert den d annehmen kann, eingesetzt wird.

[2] Bis jetzt ist $\underline{j}$ eine Erhaltungsgröße, aber kein quantenmechanischer Drehimpuls. Deshalb ist er eindeutig bestimmbar.

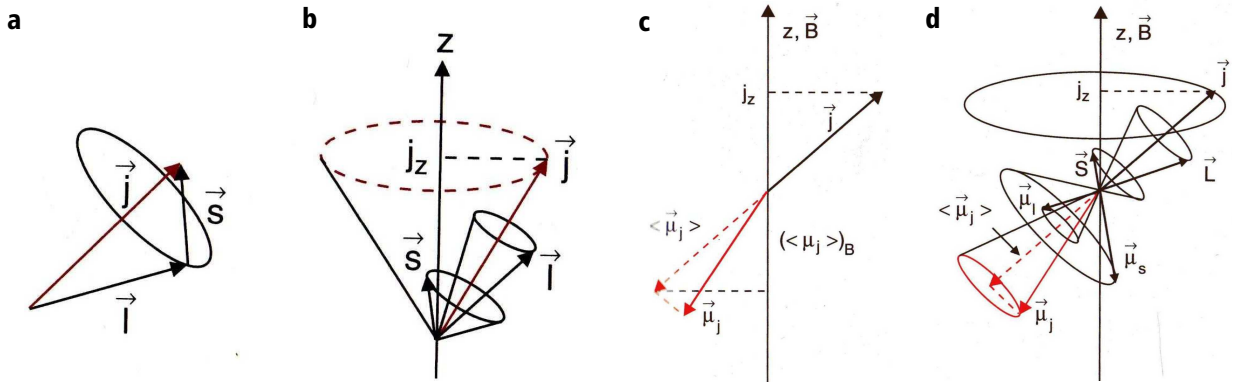

Abbildung 1.2: **a+b** Kopplung von $\underline{l}$ und $\underline{s}$ zu $\underline{j}$ **a** im stationären Fall, d.h. ohne äußeres Magnetfeld und **b** bei einer Präzession von $\underline{j}$, d.h. mit einem äußeren Magnetfeld [9].
c Die Projektion von $\underline{\mu}_j$ auf den Gesamtdrehimpuls $\underline{j}$ wird als $\langle\mu_j\rangle$ bezeichnet. **d** Bei einem angelegten Magnetfeld erfährt $\underline{\mu}_j$ ein Drehmoment und damit auch $\underline{j}$ [9].

Wenn man die Gl.(1.2.3) mit der Gl.(1.2.15) vergleicht, stellt man fest, dass im magnetischen Moment des Spins ein Faktor zwei steht, der dazu führt, dass der Gesamtdrehimpuls $\underline{j}$ und sein magnetisches Moment $\underline{\mu_j}$ nicht mehr parallel zueinander sind. Der zeitliche Mittelwert für $\langle\mu_j\rangle$ entspricht der Projektion von $\underline{\mu_j}$ auf den Gesamtdrehimpuls $\underline{j}$:

$$\langle\mu\rangle_j = \frac{\underline{\mu}_j \cdot \underline{j}}{|\underline{j}|}. \tag{1.2.16}$$

Nach einer kurzen Rechnung folgt

$$\langle\mu_j\rangle = -\frac{3j(j+1)+s(s+1)-l(l+1)}{2\sqrt{j(j+1)}}\mu_B \tag{1.2.17}$$

$$= \frac{g_j\mu_B}{\hbar}|\underline{j}|, \tag{1.2.18}$$

wobei

$$g_j = 1 + \frac{j(j+1)+s(s+1)-l(l+1)}{2j(j+1)} \tag{1.2.19}$$

als Landé-Faktor bezeichnet wird. Die Projektion vom Gesamtdrehimpuls $\underline{j}$ auf das Magnetfeld $\underline{B}$ wird als m_j bezeichnet. Somit haben Atome im Magnetfeld $\underline{B}$ folgenden magnetfeldabhängigen Energieterm

$$E_{\text{mag}} = m_j g_j \mu_B B. \tag{1.2.20}$$

Ein weiterer Effekt, der nicht aus der Schrödingergleichung folgt, ist die Wechselwirkung zwischen dem Magnetfeld, das das Elektron erzeugt, und dem magnetischen Moment des Kernspins $\underline{\mu_I}$

$$E_{\text{HFS}} \quad = \quad -\underline{\mu}_I \cdot \underline{B}_j. \tag{1.2.21}$$

Für das magnetische Moment beim Kern gilt

$$\underline{\mu}_I = g_I \frac{\mu_K}{\hbar} \underline{I}. \tag{1.2.22}$$

$\underline{I}$ ist der Kernspin[3],

$$\mu_K = \frac{m_e}{m_p} \mu_B \tag{1.2.23}$$

ist das Kernmagneton und g_I ist der Kern-g-Faktor[4].
Die Energie des magnetischen Moments $\underline{\mu_I}$ vom Kern im Magnetfeld der Hülle $\underline{B}_j$ beträgt

$$E_{\text{HFS}} \quad = \quad -g_I \frac{\mu_K}{\hbar} \underline{I} \cdot \underline{B}_j. \tag{1.2.24}$$

Mit dem Gesamtdrehimpuls des Atoms $\underline{F} = \underline{j} + \underline{I}$ und dem Satz von Pythagoras kann das Skalarprodukt berechnet werden und es folgt aus Gl.(1.2.24)

$$E_{\text{HFS}} = \frac{g_I \mu_K B_j}{2\sqrt{j(j+1)}} \underbrace{\frac{F(F+1) - j(j+1) - I(I+1)}{\sqrt{j(j+1)I(I+1)}}}_{\cos(\underline{j},\underline{I})}. \tag{1.2.25}$$

Die Hyperfeinaufspaltung ist bei $l = 0$ am größten, weil dann die Aufenthaltswahrscheinlichkeit vom Elektron beim Kern am größten ist und damit auch die Wechselwirkung zwischen den beiden.

1.3 Rydbergatome

Bei Rydbergatomen ist mindestens ein Elektron hochangeregt. Dieses Elektron wechselwirkt kaum noch mit dem Kern und den anderen Elektronen. Im Weiteren wird angenommen, dass nur ein Valenzelektron angeregt ist, was in dem Experiment der Fall ist. Bei den anderen Elektronen ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit überall um den Kern gleich groß. Deshalb sieht das hochangeregte Valenzelektron effektiv das Potential

[3] Bei ^{87}Rb gilt $|\underline{I}| = 3/2$.
[4] Für ^{87}Rb beträgt $g_I = 2$.

$$W = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r}, \tag{1.3.1}$$

das dem des Wasserstoffs entspricht. Nils Bohr hat durch gleichsetzen der Coulombkraft mit der Zentripetalkraft und der Quantisierung des Drehimpulses klassisch die Formel für die Energieniveaus des Wasserstoffs hergeleitet

$$E = -\frac{m_e e^4}{32\pi^2\epsilon_0^2\hbar^2}\frac{1}{n^2} = -\frac{R_R}{n^2} \tag{1.3.2}$$

mit der Hauptquantenzahl $n \in \mathbb{N}$. Diese Formel gilt auch für Rubidium-Rydbergatome, die eine hohe Drehimpulsquantenzahl haben. Bei niedrigen Drehimpulsquantenzahlen, d.h. $|\underline{l}| \leq 3$, ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit in Kernnähe größer als bei Elektronen mit höheren Drehimpulsquantenzahlen. Die Elektronen mit niedrigen $\underline{l}$ wechselwirken mit den anderen Elektronen. Um das zu berücksichtigen, wird die effektive Hauptquantenzahl n^* eingeführt

$$E_{n,l} = -\frac{R_R}{n^{*2}} = -\frac{R_R}{(n^2 - \delta_l)^2}. \tag{1.3.3}$$

δ_l ist der Quantendeffekt, der durch die Rydberg-Ritz-Gleichung [10] beschrieben wird

$$\delta_{n,j,l} = \sum_{i=0,2,4} \frac{\delta_i}{(n - \delta_0)^i}. \tag{1.3.4}$$

δ_i ist eine empirisch bestimmte Größe (s. Tab.1.1).
Wie bereits erwähnt wurde, haben Rydbergatome hochangeregte Elektronen, weshalb bei ihnen die Ionisierungsenergie ziemlich niedrig ist. Das führt dazu, dass Rydbergatome sehr anfällig sind für äußere elektrische Felder. Dies wird experimentell zur Detektion ausgenutzt. Dabei werden mit den Feldplatten (s. Kap.3) elektrische Felder an die Atomwolke angelegt, die groß genug sind, um die Rydbergatome zu ionisieren, aber nicht um die Grundzustandsatome zu ionisieren.

$L,\ J$	0, 1/2	1, 1/2	1, 3/2
δ_0	3,1311804(10)	2,6548849(10)	2,6416737(10)
δ_2	0,1784(6)	0,2900(6)	0,2950(7)
δ_4	-1,8	-7,9040	-0,97495
δ_6	-	116,4373	14,6001
δ_8	-	-405,907	-44,7265
für $n >$	14	11	13
$L,\ J$	2, 3/2	2, 5/2	3, J
δ_0	1,34809171(40)	1,34646572(30)	0,016312
δ_2	-0,60286(26)	-0,59600(18)	-0,064007
δ_4	-1,50517	-1,50517	-0,36005
δ_6	-2,4206	-2,4206	3,2390
δ_8	19,736	19,736	-
für $n >$	4	4	4

Tabelle 1.1: Die empirisch bestimmten Größen δ_i (i= 0, 2, 4, 6, 8) aus der Rydberg-Ritz-Gleichung, mit denen der Quantendefekt für die Bahndrehimpulse L = 1, 2, 3 berechnet werden kann. In der letzten Zeile ist die Hauptquantenzahl n angegeben, ab der die angegebenen δ_i gelten (aus [10–14]).

1.4 Lebensdauer

Angeregte Atome im Zustand $|k\rangle$ zerfallen spontan, d.h. ohne äußere Störung, in energetisch niedriger liegende Zustände $\sum_i^k |i\rangle$. Die Übergangsrate Γ_s entspricht dem Einsteinkoeffizienten A_{ik} [15, 16]

$$\begin{aligned} A_{ik} &= \frac{\max(l_i, l_k)}{2l_k+1} \frac{2e^2\omega_{ik}^3}{3\epsilon_0 c^3 h} \left| \int \Psi_i^* \underline{r}^3 \Psi_k d\varphi d\vartheta dr \right|^2 \\ &= \frac{\max(l_i, l_k)}{2l_k+1} \frac{2\omega_{ik}^3}{3\epsilon_0 c^3 h} |d_{ik}|^2. \end{aligned} \tag{1.4.1}$$

Die inverse Lebensdauer des spontanen Zerfalls $\frac{1}{\tau_s}$ entspricht der Summe aller möglichen Übergänge aus dem angeregten Zustand $|k\rangle$

$$\frac{1}{\tau_s} = \sum_i^k A_{ik}. \tag{1.4.2}$$

Die Lebensdauer hängt von der Gewichtung der entarteten Anfangs- und Endzustände

$$g_{ik} = \frac{\max(l_i, l_k)}{2l_k+1}, \tag{1.4.3}$$

von der Übergangsfrequenz ω_{ik} und von dem Dipolmatrixelement d_{ki}

$$\underline{d}_{ki} = e \int \Psi_k^* \underline{r}^3 \sin\vartheta \Psi_i d\vartheta d\varphi dr \tag{1.4.4}$$

ab. Der Zustand, in dem sich das Elektron befindet, und der, in den es zerfällt, wechselwirken miteinander durch die Dipolwechselwirkung. Deshalb enthält die Gl.(1.4.4) den Faktor $e\underline{r}$. Außerdem steckt im Dipolmatrixelement der räumliche Überlapp der Wellenfunktionen von beiden Zuständen.

Das Austauschteilchen der Coulombwechselwirkung ist das Photon. Das beobachtet man auch im Experiment. Dort wird, wenn das Elektron den Zustand wechselt, ein Photon emittiert oder absorbiert. Das Photon hat einen Spin von $s = \hbar$ und wegen der Drehimpulserhaltung muss das Elektron bei einem Zustandswechsel entsprechend seinen Bahndrehimpuls l ändern. Das hat auch zur Folge, dass der Winkelanteil des Dipolmatrixelements nur bei Zustandsänderungen mit $\Delta l = \pm 1$ und $\Delta m_l = 0, \pm 1$ ungleich null ist.

Bei der Emission eines Photons, bei dem der Spin

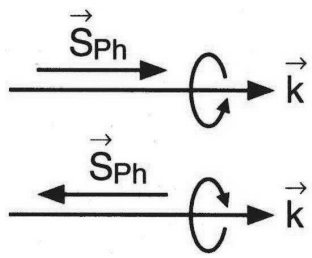

Abbildung 1.3: Veranschaulichung des Zusammenhangs von $\underline{k}$ und dem Spin beim rechtspolarisierten Licht (*oben*) und linkspolarisierten Licht (*unten*). [9]

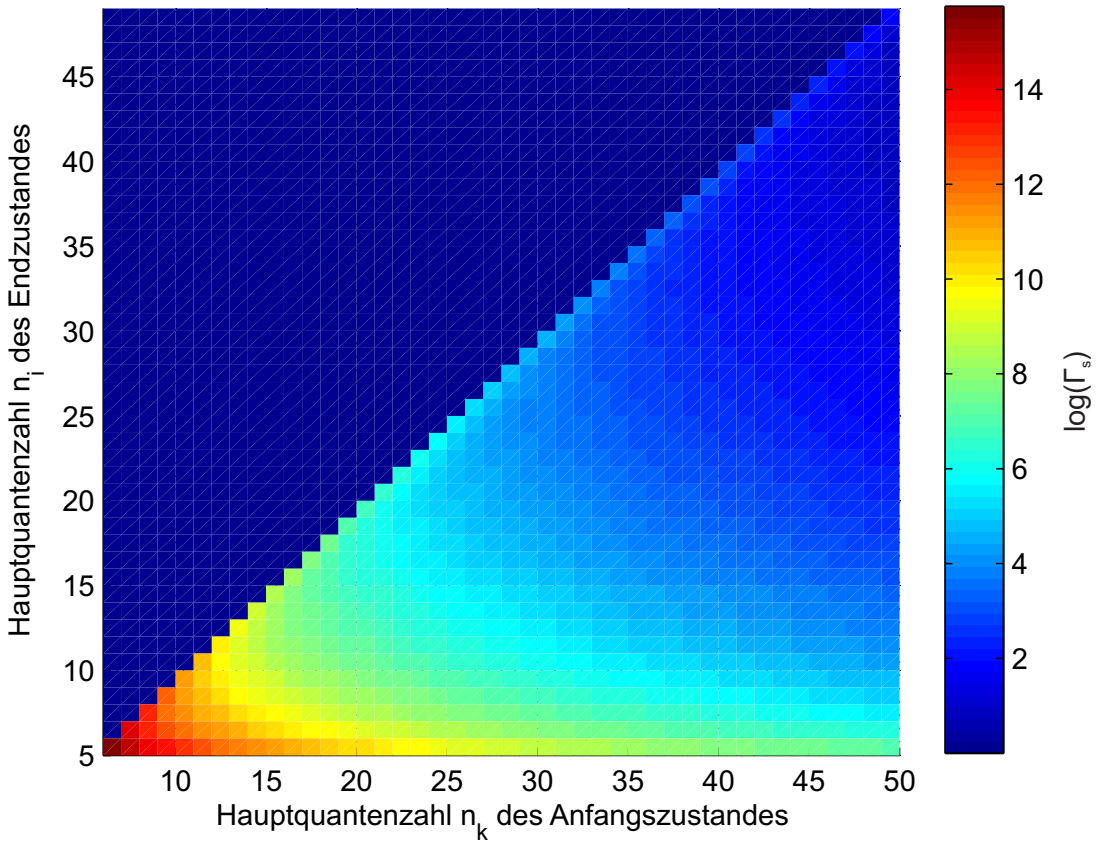

Abbildung 1.4: Logarithmus der berechneten Übergangsraten des spontanen Zerfalls Γ_s für den Zustand n_k $S_{\frac{1}{2}}$ in den Zustand n_i $P_{\frac{1}{2}}$.

in Bewegungsrichtung zeigt, d.h. für die Projektion des Photonspins auf den k-Vektor gilt $m_s = +1$, ändert sich die magnetische Quantenzahl m_l des Elektrons um -1. Bei dem Photon handelt es sich um rechtszirkulares Licht. Bei linkszirkularem Licht zeigt der Spin des Photons entgegen der Bewegungsrichtung und für die Projektion des Photonspins gilt $m_s = -1$. Bei der Emission ändert sich m_l um $+1$. Das linearpolarisierte Licht ist eine Überlagerung von rechts- und lichtszirkularen Licht, d.h. bei der Absortion ändert sich m_l um 0. In Abb.(1.4) sind die Zerfallsraten Γ_s des spontanen Zerfalls logarithmisch aufgetragen. Die Zerfallsraten aus Anfangszuständen mit einer relativ kleinen Hauptquantenzahl n_k sind vergleichsweise groß. Weil zum einen ist die Übergangsfrequenz relativ groß, wenn einer der Zustände eine kleine Hauptquantenzahl hat, da

$$\omega_{ik} \propto \left(\frac{1}{n_i^{*2}} - \frac{1}{n_k^{*2}} \right) \tag{1.4.5}$$

gilt. Zum anderen ist der räumliche Überlapp der Wellenfunktionen von dem Anfangs- und Endzustand relativ groß. Wenn die Zerfallsraten Γ_s eines Zustandes relativ groß

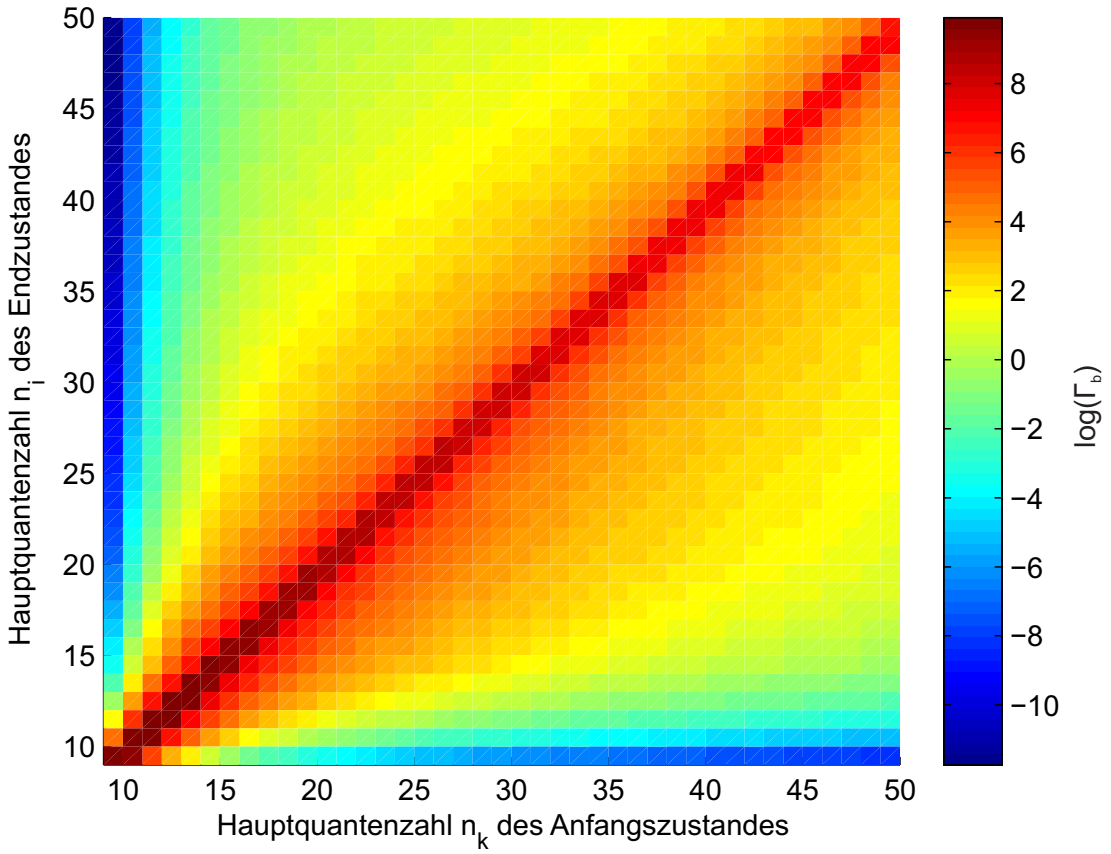

Abbildung 1.5: Logarithmus der berechneten Übergangsraten Γ_b für die Zerfälle, die durch Wärmestrahlung initiiert werden, für den Zustand n_k $S_{\frac{1}{2}}$ in den Zustand n_i $P_{\frac{1}{2}}$. Die Farbskala in dieser Abbildung ist anders kodiert als die Farbskala in Abb.(1.4), sprich dieselbe Farbe entspricht nicht demselben Wert.

sind, dann ist dessen Lebensdauer τ_s relativ klein (s. Abb.(1.9)).
Wenn sich das Elektron in einem Zustand befindet, der eine relativ große Hauptquantenzahl n_k hat, dann ist der räumliche Überlapp der Wellenfunktionen zu den Zuständen, die energetisch nahe an dem Zustand $|k\rangle$ liegen, proportional zu n^{-3} [17] und die Übergangsfrequenz nähert sich einem Grenzwert, wie man es an Gl.(1.4.5) erkennt. Damit ist der Überlapp der Wellenfunktionen für die Größe der Übergangsraten ausschlaggebend. Bei den Zuständen, die weiter vm Zustand $|k\rangle$ entfernt sind, ist zwar der räumliche Überlapp der Wellenfunktionen relativ klein, aber die Übergangsfrequenz ω_{ik} ist relativ groß. Die Übergangsfrequenz in Zustände mit niedriger Hauptquantenzahl, z.B. 5 - 7, ist beim Rubidium etwa zwei Größenordnungen größer als die Übergangsfrequenz in die Nachbarzustände, weshalb die Zerfallsrate in diese Zustände relativ groß ist (s. Abb.(1.4))

und der Großteil der Atome in den Grundzustand zerfällt. Die Lebensdauer für hochangeregte Zustände ist viel größer als für Zustände mit niedriger Hauptquantenzahl (vgl. Abb.(1.9)).
Bei endlichen Temperaturen muss auch der Einfluss der Wärmestrahlung beachtet werden. Die Photonen dieser Strahlung können Übergänge des angeregten Elektrons initiieren. Das führt dazu, dass die Übergangsrate Γ_b mit der Photonenzahl per Mode bei der entsprechenden Temperatur gewichtet wird

$$\Gamma_b = \sum_i^k \frac{\max(l_i, l_k)}{2l_k+1} \frac{2\omega_{ik}^3}{3\epsilon_0 c^3 h} |d_{ik}|^2 \frac{1}{\mathrm{e}^{\frac{\hbar\omega_{ik}}{k_B T}} - 1} \tag{1.4.6}$$

$$= \sum_i^k \frac{\max(l_i, l_k)}{2l_k+1} \frac{2\pi e^2}{3\epsilon_0 h^2} |d_{ik}|^2 \cdot \frac{8\pi h}{c^3} \frac{\nu^3}{\mathrm{e}^{\frac{\hbar\omega_{ik}}{k_B T}} - 1}. \tag{1.4.7}$$

k_B ist die Boltzmannkonstante. Die berechneten Übergangsraten sind in der Abb.(1.5) logarithmisch abgebildet. Die durch die Wärmestrahlung initiierten Übergänge können

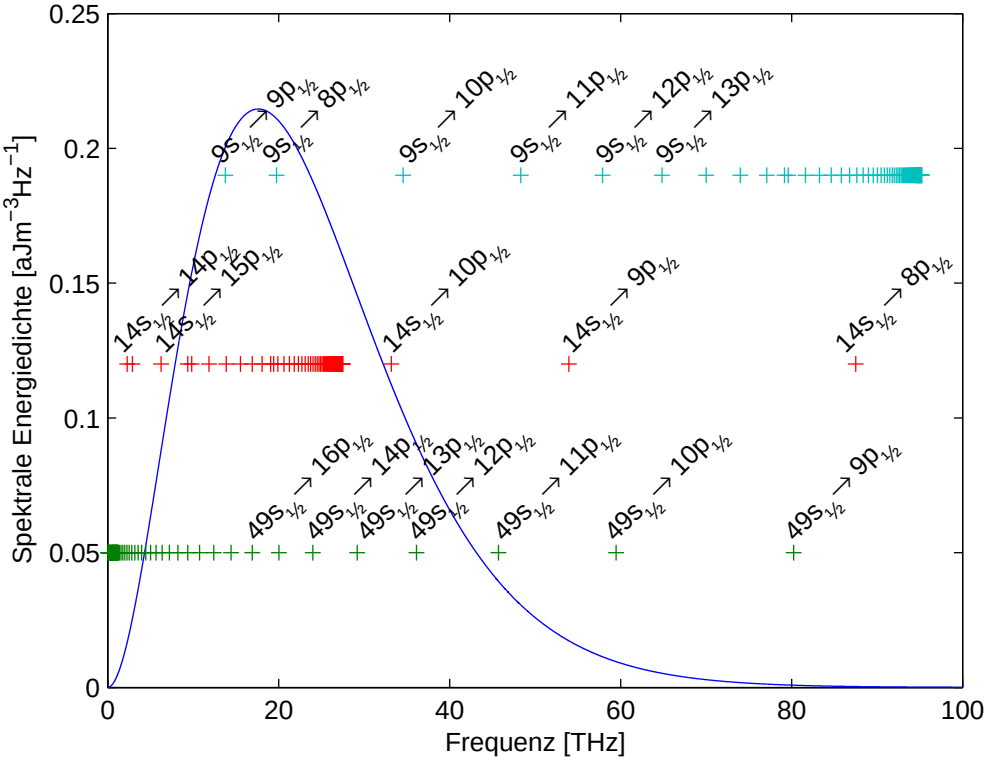

Abbildung 1.6: Die spektrale Energiedichte bei einer Temperatur von 300 K (*blaue Kurve*). Außerdem sind noch die Übergangsfrequenzen aus den Anfangszuständen $n_k = 9$ (*hellblau*), 14 (*rot*) und 49 (*grün*) aufgetragen.

durch induzierte Emission in die Zustände, die energetisch niedriger liegen als der angeregte Zustand $|k\rangle$, erfolgen. Durch die Absorption der Photonen der Wärmestrahlung können auch Übergänge in höher liegende Zustände erfolgen. Wie groß die Zerfallsrate Γ_b für die induzierte Emission durch die Wärmestrahlung ist, hängt von der Gewichtung der entarteten Zustände, von der spektralen Energiedichte

$$w_\nu = \frac{8\pi h}{c^3} \frac{\nu^3}{\mathrm{e}^{\frac{h\nu}{k_B T}} - 1} \tag{1.4.8}$$

und dem Dipolmatrixelement ab. Die Gewichtung der entarteten Zustände ist nur ein konstanter Faktor, der bei Übergängen von $n_k l_{j_k}$ nach $n_i l_{j_i}$ gleich bleibt.
Im Folgenden wird das Verhalten der Zerfallsraten Γ_b an den Übergängen von $n\ s_{\frac{1}{2}}$ nach $n\ p_{\frac{1}{2}}$ erörtert. Wie man an Abb.(1.7) erkennt, sind die Dipolmatrixelemente am größten, wenn die Anfangs- und Endzustände benachbarte Zustände sind. Das liegt daran, dass dann der räumliche Überlapp am größten ist. Die Zerfallsraten Γ_b verhalten sich genauso, was den Schluss nahe legt, dass das Dipolmatrixelement einen stärkeren Einfluss nimmt als die spektrale Energiedichte (s. Abb.(1.8)).
Mit steigender Hauptquantenzahl nimmt die Größe des Dipolmatrixelements zwischen den Nachbarzuständen zu, weil mit steigender Hauptquantenzahl der Quantendefekt abnimmt und damit die Aufenthaltswahrscheinlichkeit am Kern abnimmt. Man sieht dies auch indem der Grenzwert für eine große Hauptquantenzahl in den Gl.(1.3.3) und Gl.(1.3.4) gebildet wird. Das hat zur Folge, dass sich die Energieniveaus von den Zuständen mit der gleichen Hauptquantenzahl aber unterschiedlichen Bahndrehimpulsquantenzahlen einander annähern und damit auch die räumliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit deren Wellenfunktionen. Aber dass die Zerfallsraten für die Übergänge von den Zuständen n_k = 8, 9 in die Nachbarzustände am größten sind, liegt an der spektralen Energieverteilung. Die entsprechenden Übergangsfrequenzen liegen an deren Maximum. Das sieht man an den *hellblauen* Kreuzen in der Abb.(1.6). In dieser Abbildung, sowie in Abb.(1.8) erkennt man, dass vergleichsweise die spektrale Energiedichte für Zustände größer als $n_k = 15$ viel kleiner ist.
Im Experiment wird die effektive Lebensdauer τ eines Zustandes bei endlicher Temperatur gemessen. Für die effektive Lebensdauer, deren berechnete Werte in Abb.(1.9) abgebildet sind, gilt

$$\tau = \frac{\tau_s \cdot \tau_b}{\tau_s + \tau_b}, \tag{1.4.9}$$

wegen des Zusammenhangs

$$\frac{1}{\tau} = \Gamma_s + \Gamma_b. \tag{1.4.10}$$

Die berechneten Lebensdauern in Abb.(1.9) wurden mit den ebenfalls berechneten Lebensdauern in [18] verglichen. Die Abweichung zwischen den Zuständen lag unter 6%.

Der Unterschied rührt wahrscheinlich daher, dass die die Wellenfunktionen in [18] und [7] unterschiedlich berechnet wurden.

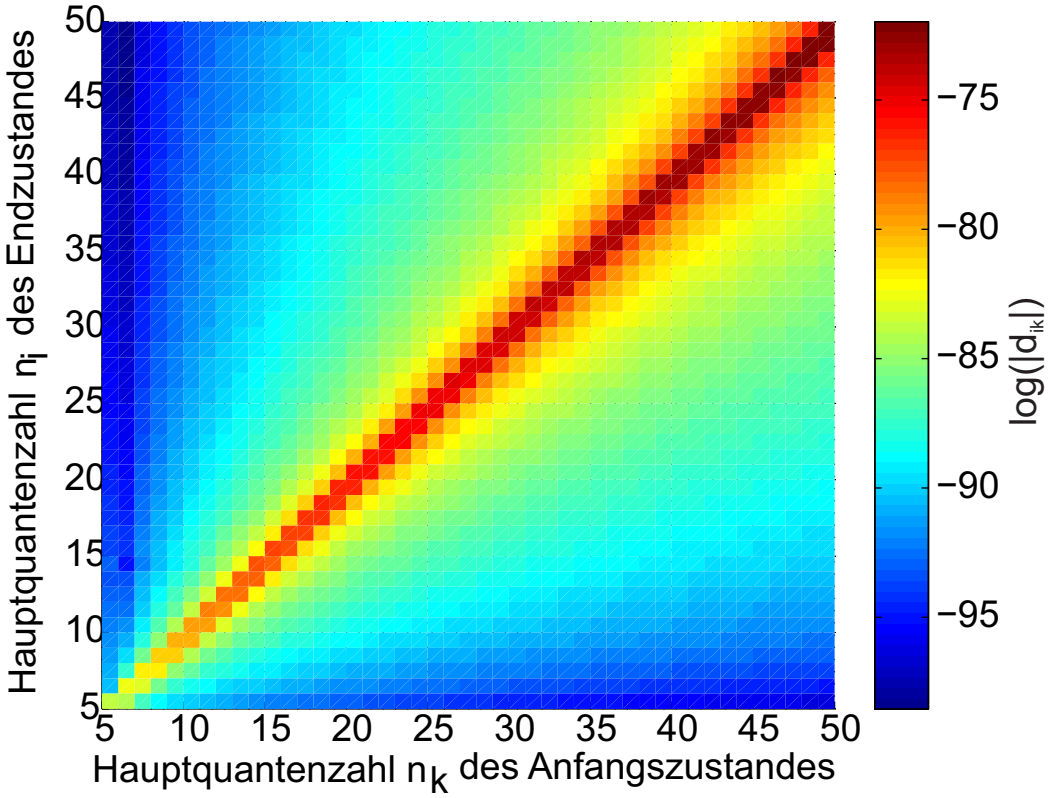

Abbildung 1.7: Logarithmus der Dipolmatrixelemente zwischen den Zuständen n_k $S_{\frac{1}{2}}$ und n_i $P_{\frac{1}{2}}$.

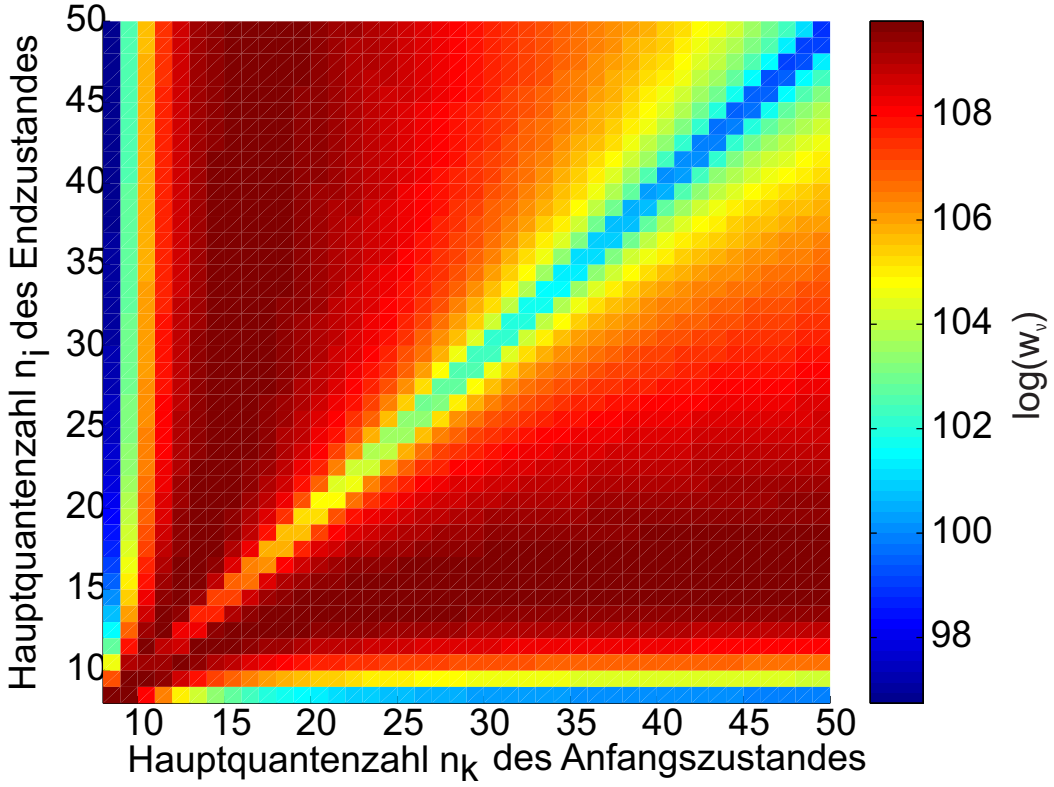

Abbildung 1.8: Logarithmus der spektralen Energiedichte der Übergangsfrequenzen von n_k $S_{\frac{1}{2}}$ nach n_i $P_{\frac{1}{2}}$ bei einer Temperatur von 300 K.

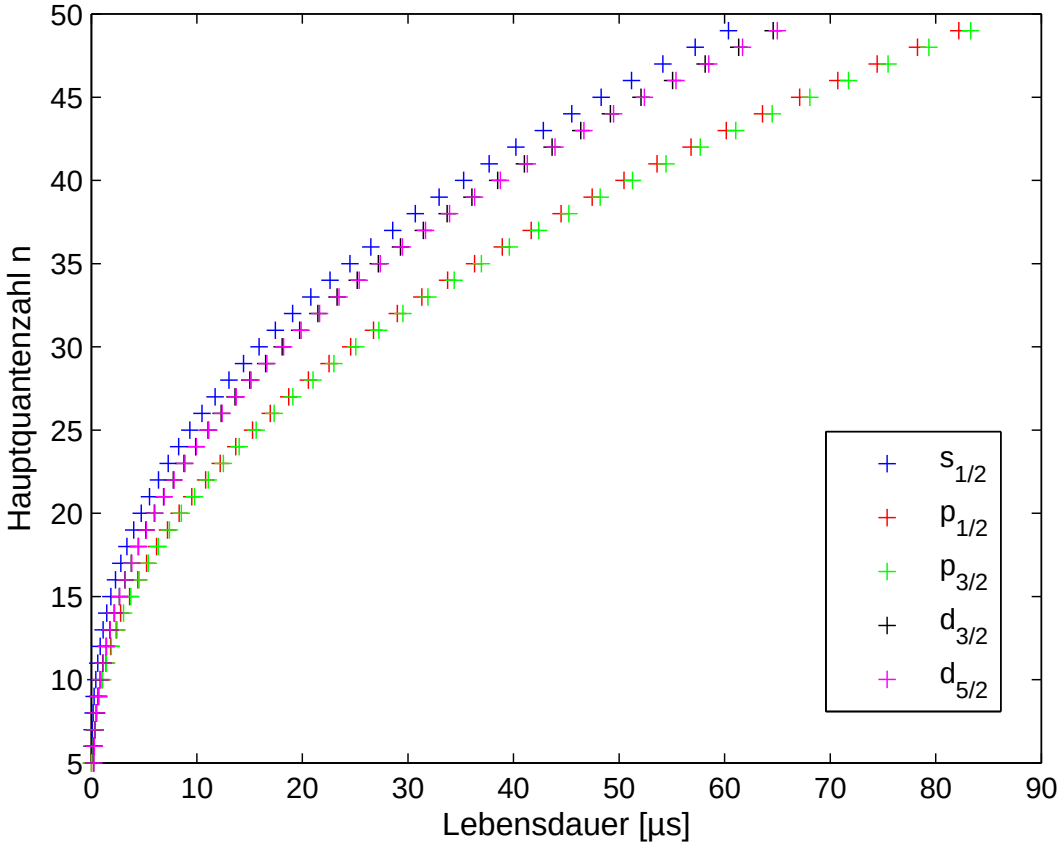

Abbildung 1.9: Berechnete Lebensdauern bei der Temperatur 300 K.

Kapitel 2

Zwei-Niveau-System

Die zeitliche Entwicklung des Zustandes eines Zwei-Niveau-Atoms, das mit einer elektromagnetischen Welle wechselwirkt, kann mit der Schrödingergleichung

$$\frac{d}{dt}\left|\Psi(t)\right\rangle = -\frac{i}{\hbar}H(t)\left|\Psi\right\rangle(t) \tag{2.0.1}$$

berechnet werden, wobei H der allgemeine Hamiltonoperator

$$H = H_0 + W(t) \tag{2.0.2}$$

ist, der sich aus dem Hamiltonoperator H_0 für das ungestörte Atom und der Störung $W(t)$, die die elektromagnetische Welle verursacht, zusammensetzt. Aus der Störungstheorie folgt, dass die Wellenfunktion des gestörten Zustandes sich aus den Wellenfunktionen der beteiligten Zustände, sprich des Grundzustandes $|g\rangle$ und des angeregten Zustandes $|e\rangle$, zusammensetzt [6, 19]. Die beiden Eigenzustände sind durch zeitabhängige Koeffizienten gewichtet, die die zeitlich abhängige Beimischung der einzelnen Zustände in dem gestörten Zustand ausdrücken. Für die gestörte Wellenfunktion folgt damit

$$\left|\Psi(t)\right\rangle = c_e(t)\left|e\right\rangle + c_g(t)\left|g\right\rangle. \tag{2.0.3}$$

Da die Ausdehnung des Atoms viel kleiner ist als die Wellenlänge der elektrischen Welle und angenommen wird, dass das Atom sich nicht bewegt, darf die Dipolnäherung angewendet werden. Mit dieser ergibt sich für die elektrische Welle

$$\begin{aligned} \underline{E}(t) &= \hat{\epsilon_x} E_0 \cos(\omega_L t) \\ &= \hat{\epsilon_x}\frac{E_0}{2}(\mathrm{e}^{i\omega_L t} + \mathrm{e}^{-i\omega_L t}). \end{aligned} \tag{2.0.4}$$

ϵ ist der Polarisationsvektor, der einfachheitshalber in x-Richtung zeigen soll, E_0 die Amplitude der elektrischen Welle und ω_L die Kreisfrequenz des Laserlichtes. Für die Störung $W(t)$ folgt

$$\underline{W}(t) = -d_{eg} \cdot \underline{E}, \tag{2.0.5}$$

die mit der Vollständigkeitsrelation

$$\mathbb{1} = \langle e|e\rangle + \langle g|g\rangle \tag{2.0.6}$$

zu

$$\begin{aligned} \underline{W}(t) &= -|q|\hat{\epsilon_x} x \underline{E}(t) \\ &= -\underline{d}_{eg}\underline{E}(t)(|e\rangle\langle g| + |g\rangle\langle e|) \end{aligned} \tag{2.0.7}$$

umgeschrieben werden kann. Das Dipolmatrixelement wird als d_{eg} bezeichnet.
Mit einem Bezugssystem, in dem die Basisfunktionen rotieren, ergibt sich für die Koeffizienten aus Gl.(2.0.3), die den Wahrscheinlichkeitsamplituden entsprechen,

$$c_e(t) = C_e\, \mathrm{e}^{-i\omega_e t} \tag{2.0.8}$$

$$c_g(t) = C_g\, \mathrm{e}^{-i\omega_g t}\,. \tag{2.0.9}$$

Mit der Rabifrequenz Ω

$$\Omega = \frac{d_{ge}E_0}{\hbar} \tag{2.0.10}$$

und der Verstimmung $\delta = \omega_L - \omega_0$ folgt

$$\dot{C}_e = \frac{i}{2}\Omega C_g \left[\mathrm{e}^{-i\delta t} + \mathrm{e}^{i(\omega_0+\omega_L)}\right] \tag{2.0.11}$$

$$\dot{C}_g = \frac{i}{2}\Omega C_e \left[\mathrm{e}^{i\delta t} + \mathrm{e}^{-i(\omega_0+\omega_L)}\right]. \tag{2.0.12}$$

Da nur die Fälle mit kleiner Verstimmung interessant sind, können die schnell oszillierenden Terme $\mathrm{e}^{\pm i(\omega_0+\omega_L)}$ vernachlässigt werden (rotating wave approximation). Nach einer kurzen Rechnung und der Annahme, dass sich das Atom am Anfang im Grundzustand befindet, d.h. $C_g(0) = 1$ und $C_e(0) = 0$, und der Erhaltung der Wahrscheinlichkeitsdichte

$$|C_g(t)|^2 + |C_e(t)|^2 = 1 \tag{2.0.13}$$

ergibt sich für die Wahrscheinlichkeitsamplituden C_e und C_g

$$C_e(t) = \left[i\frac{\Omega}{\Omega_v}\sin\frac{\Omega_v t}{2}\right]\mathrm{e}^{\frac{-i\delta t}{2}} \tag{2.0.14}$$

$$C_g(t) = \left[\cos\frac{\Omega t}{2} - i\frac{\delta}{\Omega_v}\sin\frac{\Omega_v t}{2}\right]\mathrm{e}^{\frac{i\delta t}{2}} \tag{2.0.15}$$

mit der verallgemeinerten Rabifrequenz

$$\Omega_v = \sqrt{\Omega^2 + \delta^2}. \tag{2.0.16}$$

Die Betragsquadrate von Gl.(2.0.15) und Gl.(2.0.14) geben die zeitabhängige Besetzung des angeregten und des Grundzustands an. Falls die Anregungswelle resonant ist, dann oszilliert die Besetzung zwischen dem Grundzustand und dem angeregten Zustand mit der Rabifrequenz Ω. Bei Verstimmungen $\delta \neq 0$ wird der angeregte Zustand niemals vollständig besetzt und die Besetzung oszilliert mit der verallgemeinerten Rabifrequenz Ω_v, die immer größer ist als die Rabifrequenz Ω (s. Abb.(2.1)).
In der Schrödingergleichung (2.0.1) wurde das zeitliche Verhalten eines Atoms, das mit einer elektromagnetischen Welle wechselwirkt, behandelt. Falls man die Wechselwirkung eines Atomensembles aus N Atomen mit einer elektromagnetischen Welle behandeln möchte, muss die Schrödingergleichung für N Atome aufgestellt werden. Aus der Schrö-

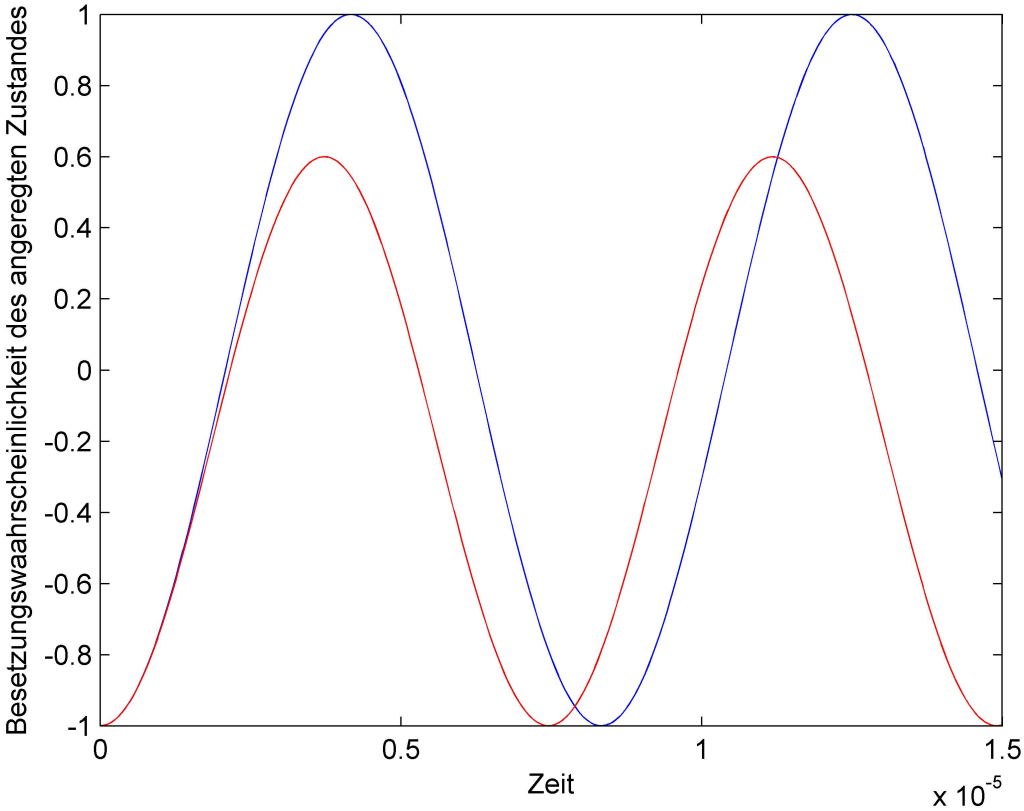

Abbildung 2.1: Vergleich von Rabioszillationen bei verstimmter (*rot*) und nicht verstimmter (*blau*) Anregung. Bei ersterer sind die Rabioszillationen schneller als bei nicht verstimmter Anregung. Die Amplitude nimmt mit wachsender Verstimmung ab.

dingergleichung folgen auch keine dissipativen Effekte, z.B. spontaner Zerfall, und keine dekohärenten Effekte. Diese können durch die Einführung zusätzlicher Wechselwirkungen berücksichtigt werden. Es ist offensichtlich, dass die Behandlung eines Atomensembles, das mit einer elektromagnetischen Welle wechselwirkt, mit der Schrödingergleichung sehr kompliziert ist.
Hier bietet sich der Dichtematrixformalismus an, da die Lösung der Liouville-Gleichung

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar}\left[H,\rho\right] - \frac{1}{2}\left\{\Gamma,\rho\right\} \tag{2.0.17}$$

das zeitliche Verhalten des Atomensembles mit dekohärenten und dissipativen Effekten angibt. Diese sind im letzten Summanden berücksichtigt. In der Dichtematrix

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{gg} & \rho_{ge} \\ \rho_{eg} & \rho_{ee} \end{pmatrix} \tag{2.0.18}$$

stehen in den Diagonalelementen die Populationen der einzelner Zustände und in den Außerdiagonalelemeten die Kohärenzen. Diese geben die Kopplung der einzelnen Zustände aneinander an. Die Komponenten der Dichtematrix ρ hängen mit den Koeffizienten aus Gl.(2.0.8) und Gl.(2.0.9) wie folgt zusammen:

$$\rho_{ee} = |c_e|^2 \tag{2.0.19}$$

$$\rho_{gg} = |c_g|^2 \tag{2.0.20}$$

$$\rho_{eg} = \rho_{ge}^* = c_e c_g^*. \tag{2.0.21}$$

Mit der drehwellennäherung (rotating wave approximation), bei der in ein Bezugssystem gewechselt wird, das mit der Laserfrequenz ω_L oszilliert, wird die Dichtematrix folgendermaßen transformiert

$$\widetilde{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{gg} & \rho_{ge}\,\mathrm{e}^{i\omega_L t} \\ \rho_{eg}\,\mathrm{e}^{-i\omega_L t} & \rho_{ee} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \widetilde{\rho}_{gg} & \widetilde{\rho}_{ge} \\ \widetilde{\rho}_{eg} & \widetilde{\rho}_{ee} \end{pmatrix}. \tag{2.0.22}$$

In der nachfolgenden Betrachtung wird der letzte Summand in der Liouville-Gleichung (2.0.17) vernachlässigt, um einen Einblick in das zeitliche Verhalten des Atomensembles zu bekommen. Der Einfluss der dissipativen und dekohärenten Effekte wird in Kap.2.2 behandelt.
Aus der Liouville-Gleichung ohne dissipative Effekte

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar}\left[H,\rho\right] \tag{2.0.23}$$

folgt für das zeitliche Verhalten der Komponenten der Dichtematrix $\widetilde{\rho}$

$$\dot{\widetilde{\rho}}_{gg} = -\frac{i}{2}\Omega\left(\widetilde{\rho}_{eg} - \widetilde{\rho}_{ge}\right) \tag{2.0.24}$$

$$\dot{\widetilde{\rho}}_{ge} = -\frac{i}{2}\Omega\left(\widetilde{\rho}_{ee} - \widetilde{\rho}_{gg}\right) - i\delta\widetilde{\rho}_{ge} \tag{2.0.25}$$

$$\dot{\widetilde{\rho}}_{eg} = \frac{i}{2}\Omega\left(\widetilde{\rho}_{ee} - \widetilde{\rho}_{gg}\right) + i\delta\widetilde{\rho}_{eg} \tag{2.0.26}$$

$$\dot{\widetilde{\rho}}_{ee} = \frac{i}{2}\Omega\left(\widetilde{\rho}_{eg} - \widetilde{\rho}_{ge}\right). \tag{2.0.27}$$

Die Gl.(2.0.25) und Gl.(2.0.26) sind komplex konjugiert zueinander. Damit reduzieren sich die vier Gleichungen auf drei unabhängige Gleichungen.
Zwischen den Komponenten von $\widetilde{\rho}$ und denen von $\dot{\widetilde{\rho}}$ kann eine anschauliche Beziehung hergestellt werden, wenn man den Blochvektor $\underline{R}(t)$

$$\underline{R}(t) = \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \widetilde{\rho}_{eg} + \widetilde{\rho}_{ge} \\ i(\widetilde{\rho}_{eg} - \widetilde{\rho}_{ge}) \\ \widetilde{\rho}_{ee} - \widetilde{\rho}_{gg} \end{pmatrix} \tag{2.0.28}$$

und den Vektor der Rabifrequenz $\underline{\Omega}$

$$\underline{\Omega} = \begin{pmatrix} \Omega \\ 0 \\ \delta \end{pmatrix} \tag{2.0.29}$$

einführt. Für die zeitliche Entwicklung des Blochvektors $\underline{\mathrm{R}}$(t) gilt dann

$$\dot{\underline{R}}(t) = \begin{pmatrix} \dot{u} \\ \dot{v} \\ \dot{w} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \delta v \\ -\delta u + \Omega w \\ -\Omega v \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \dot{\widetilde{\rho}}_{eg} + \dot{\widetilde{\rho}}_{ge} \\ i(\dot{\widetilde{\rho}}_{eg} - \dot{\widetilde{\rho}}_{ge}) \\ \dot{\widetilde{\rho}}_{ee} - \dot{\widetilde{\rho}}_{gg} \end{pmatrix}. \tag{2.0.30}$$

Diese Gleichungen werden als die optischen Blochgleichungen bezeichnet. Sie können eleganter durch ein Kreuzprodukt

$$\frac{\mathrm{d}R}{\mathrm{d}t} = -\underline{\Omega} \times \underline{R} \tag{2.0.31}$$

ausgedrückt werden. Da es bei dieser Betrachtung keine Zerfälle gibt, gilt

$$u^2(t) + v^2(t) + w^2(t) = 1. \tag{2.0.32}$$

D.h. die Länge des Vektors $\underline{R}(t)$ bleibt erhalten. Seine Spitze bewegt sich auf einer Einheitskugel, der sogenannten Blochkugel.

2.1 Bedeutung der Komponenten des Blochvektors

Die w-Komponente des Blochvektors $\underline{R}(t)$ entspricht der Besetzungsdifferenz zwischen dem Grundzustand und dem angeregten Zustand. Der Ausdruck $\frac{\widetilde{\rho}_{ee}-\widetilde{\rho}_{gg}}{2}$ wird als Inversion bezeichnet.
Bei der Betrachtung des Erwartungswertes des Dipoloperators

$$\begin{aligned}
\langle \underline{d} \rangle &= \mathrm{tr}(\rho d) \\
&\overset{d_{eg}=d_{ge}}{=} d_{eg}(u\cos\omega_L t - v\sin\omega_L t) && (2.1.1)\\
&= d_{eg}\left[u\cos(\omega_L t) - v\cos\left(\omega_L t + \frac{\pi}{2}\right)\right] && (2.1.2)
\end{aligned}$$

[20] erkennt man, dass u proportional zu dem Anteil des Dipolmoments ist, der in Phase mit dem elektrischen Feld des Laserlichts oszilliert und v proportional zu dem Anteil des Dipolmoments ist, der um 90° außer Phase zu diesem oszilliert. (Als tr wurde die Spur einer Matrix bezeichnet. Außerdem gilt $d_{eg} = d_{ge}$, weil der Dipoloperator reell ist.)
Als nächstes wird die absorptive Komponente des Blochvektors $\underline{R}(t)$ hergeleitet. Dazu wird ein Elektron betrachtet, das in einem elektrischen Feld um die Strecke dr bewegt wird. Es wird klassisch die mittlere Leistung berechnet, die am Elektron geleistet wurde

$$\begin{aligned}
\left\langle \frac{dW}{dt} \right\rangle &= \epsilon E_0 \cos\omega_L t \left\langle e\frac{dr}{dt} \right\rangle \\
&= \epsilon E_0 \cos(\omega_L t)\langle \dot{d} \rangle \\
&\overset{\text{Gl.(2.1.2)}}{=} -d_{eg}\epsilon E_0 \omega_L [v\cos^2(\omega_L t) + u\cos(\omega_L t)\cdot\sin(\omega_L t)] && (2.1.3)
\end{aligned}$$

ϵ = Richtungsvektor des elektrischen Feldes des Lasers

die dann zeitlich gemittelt wird über die Schwingungsdauer T des elektrischen Feldes

$$\begin{aligned}
\overline{\left\langle \frac{dW}{dt} \right\rangle} &= -d_{eg}\epsilon E_0 \omega_L \left[\frac{\int_0^T v\cos^2(\omega_L t)dt}{T} + \frac{\int_0^T u\cos(\omega_L t)\cdot\sin(\omega_L t)dt}{T}\right] \\
&= -d_{eg}\epsilon E_0 \omega_L \frac{v}{2} \\
&= -\frac{\hbar\Omega}{2}\omega_L v && (2.1.4)
\end{aligned}$$

An der oberen Gleichung erkennt man, dass der absorptive Teil nur von der Komponente v abhängt.
Nun wird gezeigt, was die u-Komponente des Blochvektors $\underline{R}$ ist. Aus der Elektrodynamik müsste der Leser den komplexen Brechungsindex n kennen. Der Imaginärteil von

n entspricht dem Extinktionskoeffizienten und der Realteil entspricht der Brechzahl, die die Dispersion angibt. Mit dem Extinktionskoeffizienten wird die Abschwächung einer elektromagnetischen Welle ausgedrückt, also Streuung und Absorption. Bei vernachlässigbarer Streuung entspricht der Extinktionskoeffizient dem Absorptionskoeffizienten.
Es wurde bereits gezeigt, dass der Imaginärteil der Kohärenz $\widetilde{\rho}_{eg}$, also die v-Komponente, sich proportional zum absorptiven Teil des Atoms verhält. Nun liegt der Schluss nahe, dass der Realteil von der Kohärenz $\widetilde{\rho}_{eg}$, also die u-Komponente, sich proportional zum dispersiven Teil des Atoms verhält.

2.2 Dissipative Effekte

Wenn in der Liouville-Gleichung (2.0.17) die dissipativen Effekte berücksichtigt werden, wobei vorausgesetzt wurde, dass der Grundzustand nicht zerfällt ($\Gamma_{gg} = 0$), dann erhält man

$$\dot{\widetilde{\rho}}_{gg} = -\frac{i}{2}\Omega\left(\widetilde{\rho}_{eg} - \widetilde{\rho}_{ge}\right) - \frac{1}{2}\Gamma_{ge}(\widetilde{\rho}_{eg} + \widetilde{\rho}_{ge}) \tag{2.2.1}$$

$$\dot{\widetilde{\rho}}_{ge} = -\frac{i}{2}\Omega\left(\widetilde{\rho}_{ee} - \widetilde{\rho}_{gg}\right) - i\delta\widetilde{\rho}_{ge} - \frac{1}{2}[\widetilde{\rho}_{ge}\Gamma_{ee} + \Gamma_{ge}(\widetilde{\rho}_{ee} + \widetilde{\rho}_{gg})] \tag{2.2.2}$$

$$\dot{\widetilde{\rho}}_{eg} = \frac{i}{2}\Omega\left(\widetilde{\rho}_{ee} - \widetilde{\rho}_{gg}\right) + i\delta\widetilde{\rho}_{eg} - \frac{1}{2}[\Gamma_{ee}\widetilde{\rho}_{eg} + \Gamma_{eg}(\widetilde{\rho}_{ee} + \widetilde{\rho}_{gg})] \tag{2.2.3}$$

$$\dot{\widetilde{\rho}}_{ee} = \frac{i}{2}\Omega\left(\widetilde{\rho}_{eg} - \widetilde{\rho}_{ge}\right) - \frac{1}{2}\Gamma_{eg}(\widetilde{\rho}_{ge} + \widetilde{\rho}_{eg}) + \Gamma_{ee}\widetilde{\rho}_{ee}. \tag{2.2.4}$$

Die Komponenten u und v sind der Real- und der Imaginärteil der Kohärenz $\widetilde{\rho}_{eg}$, weshalb $\Gamma_{eg} = \Gamma^*_{ge}$ gelten muss. Somit lauten die dissipativen Beiträge für die einzelnen Komponenten von $\dot{R}(t)$

$$\begin{aligned}\dot{u}_{\text{diss}} &= -\frac{1}{2}\Gamma_{ee}(\widetilde{\rho}_{eg} + \widetilde{\rho}_{ge}) - \frac{1}{2}\Gamma_{ge}(\widetilde{\rho}_{ee} + \widetilde{\rho}_{gg}) - \frac{1}{2}\Gamma_{eg}(\widetilde{\rho}_{ee} + \widetilde{\rho}_{gg}) \\ &= -\frac{1}{2}\Gamma_{ee}u - \text{Re}(\Gamma_{ge})\end{aligned} \tag{2.2.5}$$

$$\begin{aligned}\dot{v}_{\text{diss}} &= -\frac{i}{2}\Gamma_{ee}(\widetilde{\rho}_{eg} - \widetilde{\rho}_{ge}) - \frac{i}{2}\Gamma_{ge}(\widetilde{\rho}_{ee} + \widetilde{\rho}_{gg}) + \frac{i}{2}\Gamma_{eg}(\widetilde{\rho}_{ee} + \widetilde{\rho}_{gg}) \\ &= -\frac{1}{2}\Gamma_{ee}v - \text{Im}(\Gamma_{ge})\end{aligned} \tag{2.2.6}$$

$$\dot{w}_{\text{diss}} = -\Gamma_{ee}\widetilde{\rho}_{ee}. \tag{2.2.7}$$

Der Ausdruck $-\Gamma_{ee}\widetilde{\rho}_{ee}$ ist die Rate der Atome, die spontan zerfallen. Dabei verliert der angeregte Zustand an Population

$$\dot{\widetilde{\rho}}_{ee} = -\Gamma_{ee}\widetilde{\rho}_{ee} \tag{2.2.8}$$

und der Grundzustand gewinnt denselben Beitrag an Population

$$\dot{\widetilde{\rho}}_{gg} = \Gamma_{ee}\widetilde{\rho}_{gg} \tag{2.2.9}$$

Die spontane Emission führt dazu, dass die Länge des Blochvektors sich proportional zu $\mathrm{e}^{-t\Gamma_{ee}}$ verkürzt. Wobei die Rate des spontanen Zerfalls Γ_{ee} mit dessen Lebensdauer τ verknüpft ist durch

$$\tau = \frac{1}{\Gamma_{ee}}. \tag{2.2.10}$$

Wegen dem spontanen Zerfall geht die Phasenbeziehung zwischen den Atomen im Ensemble verloren, was in den Gl.(2.2.5) und Gl.(2.2.6) in den Summanden $-\frac{1}{2}\Gamma_{ee}u$ bzw. $-\frac{1}{2}\Gamma_{ee}v$ ausgedrückt ist. Falls die Umgebung überall homogen ist und alle Atome gleich an das Licht koppeln, verschwindet der Term Γ_{eg}. In dem Fall würde für die Lebensdauer der Kohärenz

$$\tau_k = 2 \cdot \tau \tag{2.2.11}$$

gelten. Wenn die Umgebung der Atome des Ensembles nicht homogen ist, weil z.B. die Atome eine unterschiedliche Dichteverteilung in der Atomwolke haben, oder die Atome unterschiedlich an das Lichtfeld koppeln, weil z.B. die Intensität des Lichts im Laserstrahl nicht überall gleich ist, dann verschwindet Γ_{eg} nicht. In dem Fall kann Γ_{eg} eine Funktion von den Komponenten der Dichtematrix sein. Aber Γ_{eg} ist dann positiv, da die erwähnten Effekte zu einem Verlust der Phasenbeziehung zwischen den Atomen in dem Ensemble führen. Somit folgt für die Beziehung in Gl.(2.2.11)

$$\tau_k \leq 2 \cdot \tau. \tag{2.2.12}$$

Mit steigender Dekohärenz steigt auch die statistische Verteilung der Phase zwischen den einzelnen Atomen im Ensemble. Eine Manipulation des Systems hat zur Folge, dass die Atome ohne Phasenbeziehung unterschiedlich auf diese reagieren und unterschiedliche Zustände annehmen. Da der Blochvektor $\underline{R}(t)$ das statistische Mittel des Atomensembles angibt, mitteln sich diese Zustände raus. Die Phasenbeziehung kann auch nicht durch äußere Manipulationen wiedergewonnen werden. Dieser Verlust der Kohärenz führt dazu, dass der Blochvektor sich in der u-v-Ebene auf die w-Achse zubewegt. Diese Bewegung ist proportional zu $\mathrm{e}^{-\frac{t}{\tau_k}}$.

2.3 Resonante Pulse

Bei resonanten Pulsen hat der Vektor $\underline{\Omega}$ die folgende Form

$$\underline{\Omega} = \begin{pmatrix} \Omega \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}. \tag{2.3.1}$$

Das führt dazu, dass der Blochvektor $\underline{R}(t)$ um die u-Achse präzediert. Dies entspricht den Rabioszillationen.
Diese Präzession des Blochvektors kann durch eine Drehmatrix Θ(t) [21] beschrieben werden

$$R(t) = \Theta(t) \cdot R(t = 0) \tag{2.3.2}$$

mit

$$\Theta(t) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(\vartheta(t)) & \sin(\vartheta(t)) \\ 0 & -\sin(\vartheta(t)) & \cos(\vartheta(t)) \end{pmatrix}. \tag{2.3.3}$$

Der Winkel ϑ(t) wird durch die Pulsfläche des koppelnden Lichtfeldes bestimmt

$$\vartheta(t) = \int_0^t \Omega(t')dt' \tag{2.3.4}$$

- **π-Puls**
  Bei einem π-Puls wird der Blochvektor an der u-Achse gespiegelt und aus Gl.(2.3.2) wird

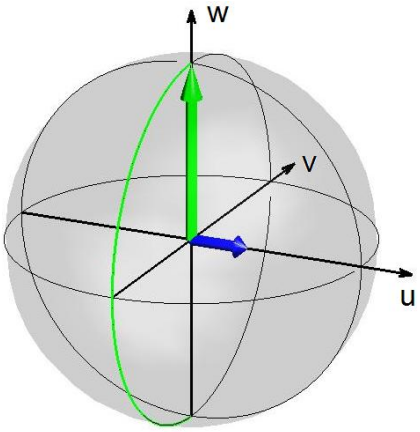

Abbildung 2.2: Darstellung der Blochkugel mit der Position des Blochvektors $\underline{R}(t)$ (*grün*) nach einem resonanten π-Puls, der zu einer vollständigen Inversion geführt hat. Vor der Anregung befand sich das Atom im Grundzustand. Der *blaue* Pfeil gibt den Vektor $\underline{\Omega}$ an und die *grüne Linie* gibt die Trajektorie des Blochvektors $\underline{R}(t)$ an.

$$\underline{R}\,(t=\pi) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} u \\ -v \\ -w \end{pmatrix}. \tag{2.3.5}$$

Anders gesagt führt der π-Puls zu einer kompletten Inversion (s. dazu Abb.(2.2)).

- **$\frac{\pi}{2}$-Puls**
  Bei einem $\frac{\pi}{2}$-Puls wird aus Gl.(2.3.2)

$$\underline{R}\left(t=\frac{\pi}{2}\right) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 0 & -1 & 0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} u \\ w \\ -v \end{pmatrix} \tag{2.3.6}$$

  Wie man sieht führt ein $\frac{\pi}{2}$-Puls dazu, dass die v- und die w-Komponente vertauscht werden.

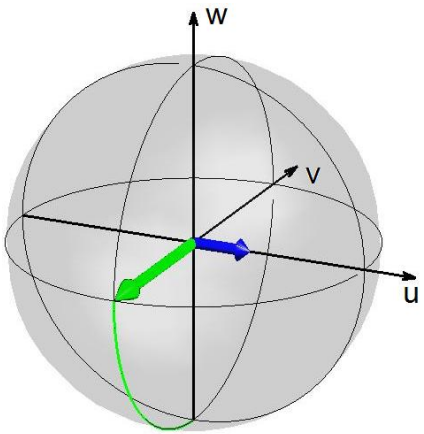

Abbildung 2.3: Darstellung der Blochkugel mit der Position des Blochvektors $\underline{R}(t)$ (*grün*) nach einem resonanten $\frac{\pi}{2}$-Puls, der diesen in die Äquatorialebene überführt. Vor der Anregung befand sich das Atom im Grundzustand.

2.4 Nicht resonante Pulse

Bei nicht resonanten Pulsen wird die Drehachse um $(-\Omega, 0, -\delta)$ gegenüber der u-Achse verschoben. Das führt dazu, dass keine komplette Inversion mehr stattfinden kann, da der Blochvektor $\underline{R}(t)$ nicht mehr durch den oberen Pol geht. Je größer die Verstimmung δ ist, desto weiter ist der obere Umkehrpunkt des Blochvektors $\underline{R}(t)$ vom Nordpol der Blochkugel entfernt. Außerdem führt es dazu, dass die Rabioszillationen schneller werden verglichen mit der Oszillation auf Resonanz, weil der Blochvektor $\underline{R}(t)$ mit der verallgemeinerten Rabifrequenz $\Omega_v = \sqrt{\Omega^2 + \delta^2}$ oszilliert.
Wenn nach der Anregung mit nicht resonanten Pulsen das Lichtfeld ausgeschaltet wird, dann präzediert der Blochvektor $\underline{R}(t)$ weiterhin, aber nun um die w-Achse $(0, 0, -\delta)$. Diese Oszillationen rühren daher, dass bei ausgeschaltetem Licht das Atom mit seine Eigenfrequenz ω_0 oszilliert. Das Bezugssystem rotiert mit der Laserfrequenz ω_L (s. Gl.(2.0.22)), was zu einer Phasenverschiebung führt.

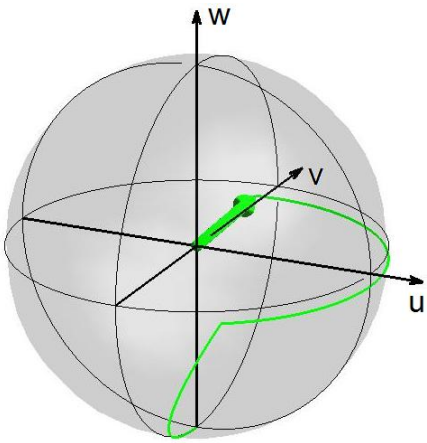

Abbildung 2.4: Das Atom wird mit einem verstimmten $\frac{\pi}{2}$-Puls angeregt und dann wird das Lichtfeld ausgeschaltet. Da die Basis sich mit der Laserfrequenz ω_L dreht und der Blochvektor $\underline{R}(t)$ sich mit der Eigenfrequenz des Atoms ω_0 dreht, führt das zur Präzession des Blochvektors $\underline{R}(t)$ um die w-Achse.

2.5 Ramseyspektroskopie

Die Ramseyspektroskopie besteht aus drei Teilschritten: $\frac{\pi}{2}$-Puls, freie Präzession und $\frac{\pi}{2}$-Puls.
Beim ersten $\frac{\pi}{2}$-Puls werden die Blochvektoren in die Äquatorialebene überführt, wobei die Verstimmung δ sehr klein gegenüber der Rabifrequenz sein soll.

- **Resonanter $\frac{\pi}{2}$-Puls**
  Während der Laser ausgeschaltet ist, gibt es keine freie Präzession des Blochvektors

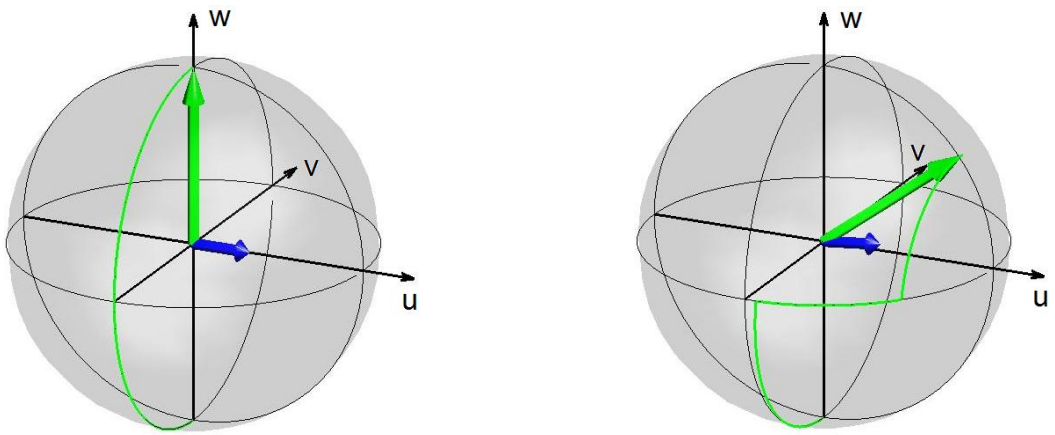

Abbildung 2.5: *Links:* Beim resonanten $\frac{\pi}{2}$-Puls gibt es keine freie Präzession während der Wartezeit, was zur Folge hat, dass beim zweiten $\frac{\pi}{2}$-Puls das Atom vollständig angeregt wird. Beim verstimmten $\frac{\pi}{2}$-Puls kommt es während der Wartezeit zur freien Präzession. Man erkennt auch, dass der Vektor $\underline{\Omega}$ gegen die u-Achse leicht geneigt ist.

und der zweite $\frac{\pi}{2}$-Puls überführt den Blochvektor auf den Nordpol der Blochkugel, d.h. die Atome sind vollständig angeregt.
Bei der Variation der Wartezeit t sollten sich die Blochvektoren immer auf dem Nordpol befinden, d.h. man erhält ein maximales Spektroskopiesignal.

- **Nicht resonanter $\frac{\pi}{2}$-Puls**
  Während der Laser für die Zeit t ausgeschaltet ist, findet eine freie Präzession statt. Falls der Fall $\delta t = (2n+1) \cdot \pi$ $(n \in \mathbb{N})$ eintritt, dann überführt der zweite $\frac{\pi}{2}$-Puls die Blochvektoren auf den Südpol der Blochkugel, d.h. die Atome relaxieren vollständig.
  Bei $\delta t = 2n\pi$ überführt der zweite $\frac{\pi}{2}$-Puls die Blochvektoren auf den Nordpol der Blochkugel.
  Sonst landet der Blochvektor nach dem zweiten $\frac{\pi}{2}$-Puls auf einen Zwischenwert auf der Blochkugel.

Bei der Variation der Verstimmung δ, erhält man eine oszillierende Intensität des Spektroskopiesignals. Nur beim resonanten $\frac{\pi}{2}$-Puls kann eine Inversion erreicht werden. Bei festgehaltener Wartezeit gibt es eine Verstimmung δ, bei der der Blochvektor $\underline{R}(t)$ sich bei der freien Präzession um 2π dreht. Da der Vektor $\underline{\Omega}$ gegenüber der u-Achse geneigt ist, kommt bei dem zweiten $\frac{\pi}{2}$-Puls keine Inversion zu Stande. Das Spektrum hat dort aber ein relatives Maximum (s. Abb.(2.6)).
Wenn es bei den Ramseymessungen keine dissipativen und dekohärenten Effekte gibt, dann haben alle Atome in dem Ensemble den gleichen Zustand und die Ramseypulse bewirken die gleiche Zustandsänderung. Deshalb wird auf Resonanz bei den Atomen immer eine vollständige Inversion erreicht. Auch bei längerer Wartezeit relaxiert das System

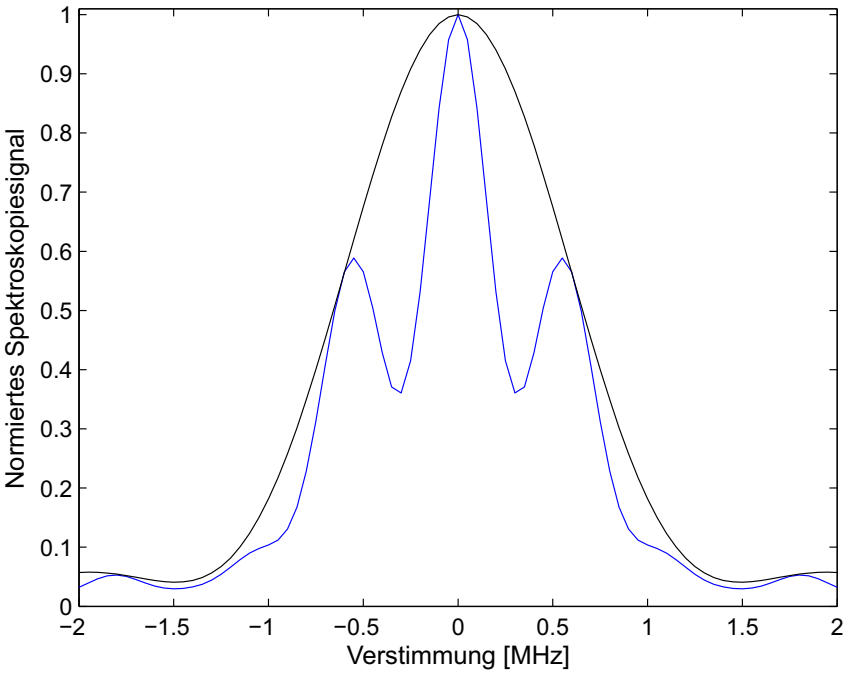

Abbildung 2.6: Ein Ramseyspektrum *blau* bei dem die Wartezeit 1 μs betrug. Die Ramseypulse dauerten 0,75 μs. Das *schwarze* Spektrum erhält man nach einem einzigen Ramseypuls mit der Dauer von 0,75 μs.

vollständig zwischen den Maxima (s. dazu Abb.(2.7)).
Wenn dissipative und dekohärente Effekte vorhanden sind, dann wird mit steigender Wartezeit keine vollständige Inversion auf der Resonanz erreicht. Auch die Nebenmaxima sind nicht so hoch (s. Abb.(2.8)). Bei den Atomen, die spontan zerfallen, bewirkt der zweite $\frac{\pi}{2}$-Puls, dass diese in die Äquatorialebene angeregt werden. Was gemessen wird, ist der Mittlerwert der Zustände, die die Atome in dem Ensemble annehmen. Bei langer Wartezeit verglichen mit T_1 bewirkt der zweite $\frac{\pi}{2}$-Puls nur eine Anregung in die Äquatorialebene der Blochkugel. Die dekohärenten Effekte führen auch dazu, dass die Atome nicht alle die gleiche Phase nach der Wartezeit haben. Der zweite $\frac{\pi}{2}$-Puls hat dann entsprechend eine andere Auswirkung auf ihre Zustände, deshalb verschmiert das Ramseyspektrum und das System relaxiert nicht vollständig zwischen den Maxima.

Die Ramseyspektren in Abb.(2.6) sehen wie die Beugungsbilder an einem Einzel- bzw. Doppelspalt aus. Das ist nicht weiter verwunderlich, da hinter den beiden Experimenten dieselbe Physik steckt. Bei der Beugung von Licht am Einzel-/Doppelspalt wird die Lichtwelle vom Ortsraum, der durch den Spalt gegeben ist, in den Impulsraum Fouriertransformiert. Bei der Ramseyspektroskopie wird die Wellenfunktion des Atomensembles aus der Zeitdarstellung in die Energiedarstellung Fourier-transformiert. Der mathematische Unterschied zwischen den beiden Experimenten liegt darin, dass beim Doppelspalt-

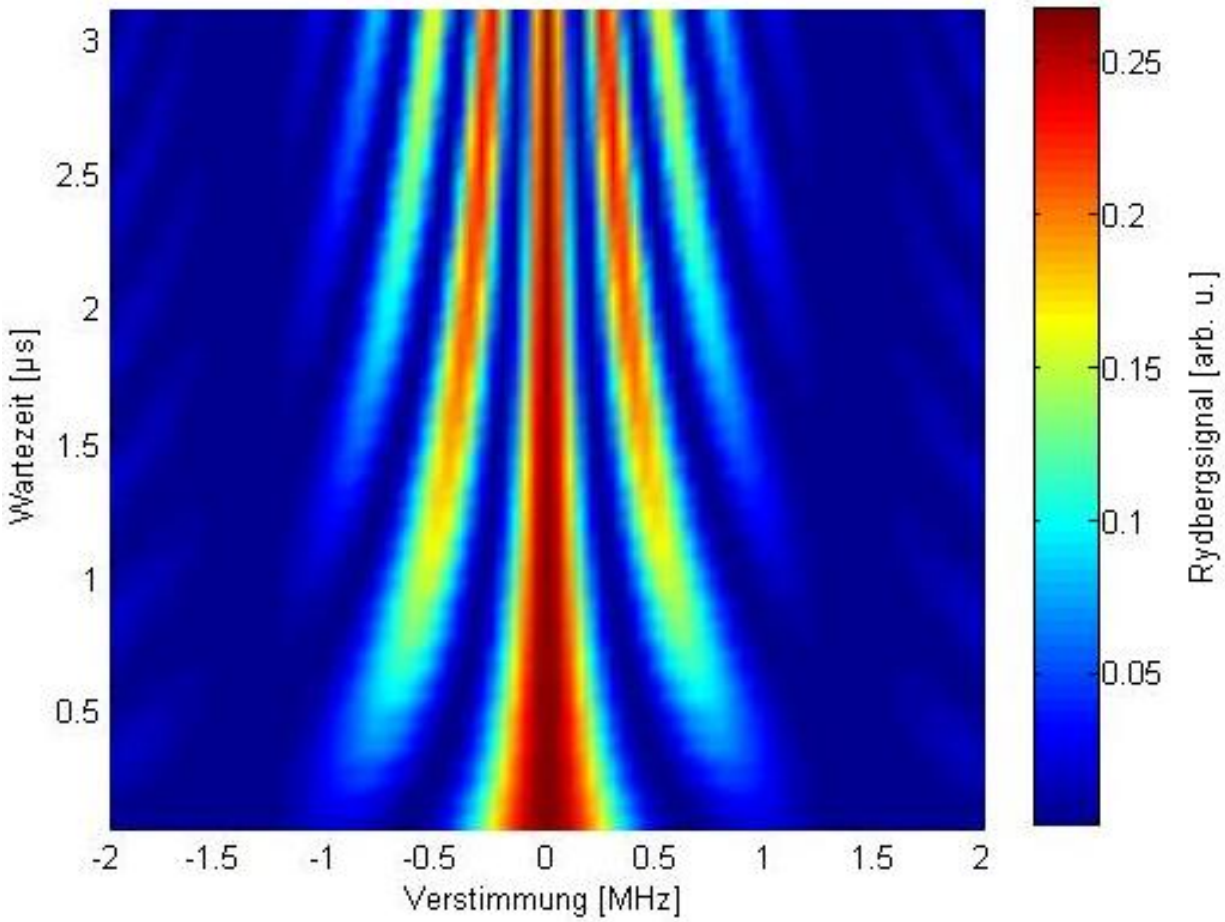

Abbildung 2.7: Ramseyspektrum ohne spontanen Zerfall und dekohärenten Effekten. Die Rabifrequenz Ω ist um zwei Größenordnungen kleiner als die effektive Rabifrequenz Ω_v.

experiment die Darstellung im Impulsraum auf den Ortsraum projeziert wird und bei der Ramseyspektroskopie wird direkt die Energiedarstellung gemessen. Das Analogon zu dem Spalt im Doppelspaltversuch ist die Länge des Ramseypulses und die Wartezeit zwischen den Ramseypulsen entspricht dem Spaltabstand beim Doppelspaltexperiment. Die Fouriertransformierte eines Kastenpotentials mit der Länge $2\tau_{\frac{\pi}{2}}$ ist eine Sinc-Funktion

$$N(\Omega_v) \propto \frac{\tau_{\frac{\pi}{2}}^2}{2\pi}\text{sinc}^2(\Omega_v\frac{\tau_{\frac{\pi}{2}}}{2}) \tag{2.5.1}$$

und genau das erhält man auch bei der Ramseyspektroskopie mit der Wartezeit $\tau_w = 0$s. $N(\delta)$ ist die Anzahl der Rydbergatome, die bei der Verstimmung δ angeregt wurden. Die Sinc-Funktion ist quadriert, da die Anzahl der Rydbergatome gemessen wird. Die Breite

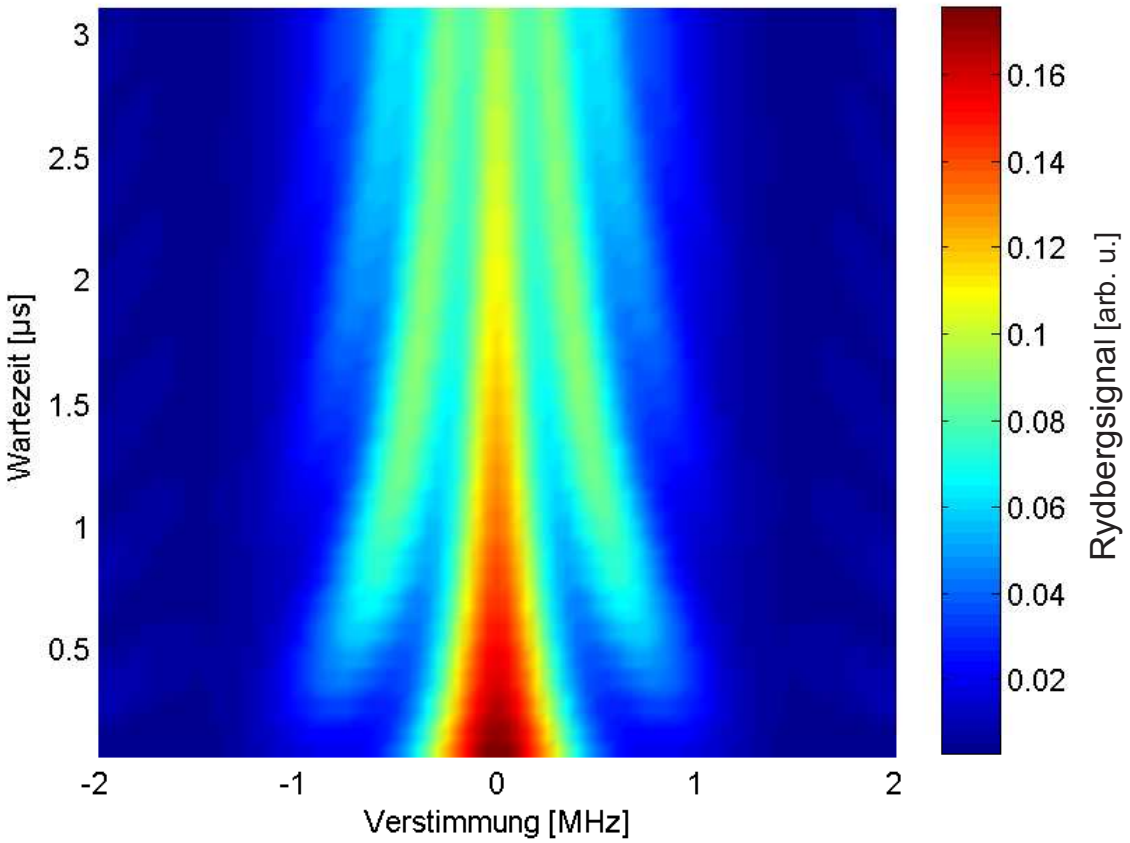

Abbildung 2.8: Ramseyspektrum mit spontanen Zerfall und dekohärenten Effekten. Die Rabifrequenz Ω ist um zwei Größenordnungen kleiner als die effektive Rabifrequenz Ω_v. Die Lebensdauern für den spontanen Zerfall und die Dekohärenz liegen im μs-Bereich.

der Sinc-Funktion ist die inverse Breite der transformierten Kastenfunktion, also im Falle der Ramseyspektroskopie die Länge des Ramseypulses. Im Folgenden wird angenommen, dass die Verstimmung δ groß ist im Vergleich zur Rabioszillation Ω. Damit folgt für die effektive Rabioszillation $\Omega_v \approx \delta$. Mit dieser Näherung folgt für eine Ramseymessung mit einer endlichen Wartezeit zwischen den Pulsen

$$N(\delta) \propto \frac{\tau_{\frac{\pi}{2}}^2}{2\pi} \mathrm{sinc}^2(\delta \frac{\tau_{\frac{\pi}{2}}}{2}) \cos^2(\delta(\tau_w + \tau_{\frac{\pi}{2}})) \tag{2.5.2}$$

Das hat zur Folge, dass die Sinc-Funktion die Amplitude der Kosinus-Funktion modelliert, aber keinen Einfluss auf dessen Frequenz hat. Für den Abstand a_r der Maxima beim Kosinus erhält man

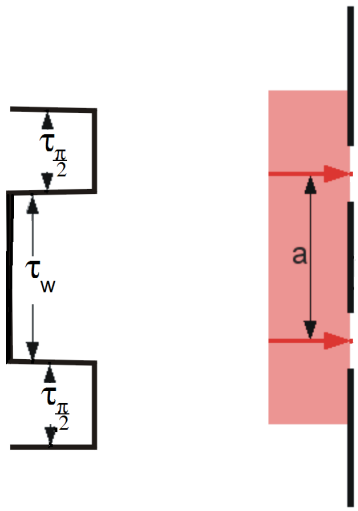

Abbildung 2.9: *Links:* Schematische Abbildung der Ramseypulse und der Wartezeit dazwischen. *Rechts:* Zum Vergleich dazu die schematische Abbildung des Doppelspaltes mit der Spaltbreite a.

$$a_r = \frac{1}{2(\tau_w + \tau_{\frac{\pi}{2}})} \tag{2.5.3}$$

Der Spaltabstand beim Doppelspalt entspricht der Summe aus Wartezeit τ_w und Ramseypuls $\tau_{\frac{\pi}{2}}$, wie man es in Abb.(2.9) sieht. Damit ist Gl.(2.5.3) analog wie beim Doppelspaltexperiment.

2.6 Rotary-Echo-Spektroskopie

Bei der Rotary-Echo-Spektroskopie beträgt die Zeit des Anregungspulses t_a. Dann wird die Phase des Anregungslichtes um π verschoben. Damit folgt für das Dipolmatrixelement aus Gl.(1.4.4)

$$\begin{aligned} \underline{d}_{eg} &= e \int \Psi_e^* \underline{r}^3 \sin\vartheta \Psi_g \, \mathrm{e}^{i\pi} \, d\vartheta d\varphi dr \\ &= -e \int \Psi_e^* \underline{r}^3 \sin\vartheta \Psi_g d\vartheta d\varphi dr \end{aligned} \tag{2.6.1}$$

Da die Rabifrequenz proportional (s. Gl.(2.0.10)) zum Dipolmatrixelement ist, ändert auch diese ihr Vorzeichen. Damit invertiert der zweite Puls die zeitliche Entwicklung des ersten Pulses bei kohärenten Systemen.
Der folgende Abschnitt behandelt die Anregung auf Resonanz. Wenn die beiden Pulse gleichlang sind oder der zweite Puls $2n$-mal ($n \in \mathbb{N}$) so lang ist wie der erste, dann ist

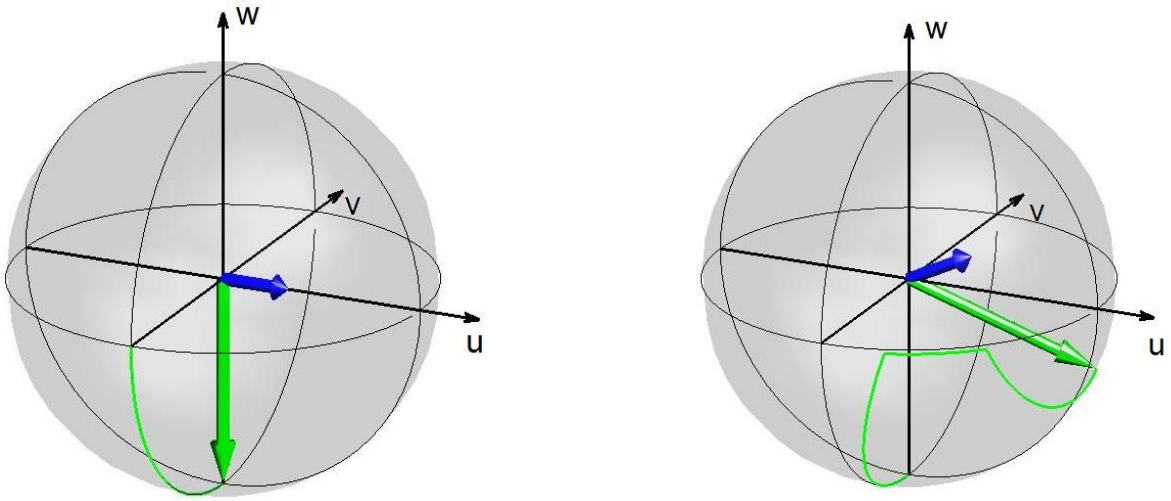

Abbildung 2.10: *Links:* Bei resonanter Anregung gibt es eine vollständige Inversion bei der Rotary-Echo-Spektroskopie, wenn $t_a = t_\pi$ gilt. *Rechts:* Bei verstimmter Anregung kommt es in diesem Fall zu keiner vollständigen Inversion.

die Inversion komplett. Das entspricht den obersten und untersten Punkten auf Resonanz in Abb.(2.11). Falls der zweite Puls t_π kürzer ist als der erste Puls t_a, dann wird der Anregungspuls nicht komplett invertiert und es wird eine endliche Besetzung des angeregten Zustandes gemessen. Falls der zweite Puls t_π länger ist als der Anregungspuls t_a, dann relaxiert das Atomensemble komplett und wird dann wieder angeregt, weshalb auch dann eine endliche Besetzung des angeregten Zustandes gemessen wird. Wenn die beiden Pulse gleich lang sind, dann relaxiert das Atomensemble vollständig. Das entspricht der Mitte in Abb.(2.11).
Bei verstimmter Anregung präzediert der Blochvektor in der Äquatorialebene der Blochkugel während der Wartezeit. Je nachdem an welcher Stelle sich der Blochvektor am Anfang des zweiten Pulses befindet, kann dieser dazu führen, dass die Atome durch diesen weiter angeregt werden. Die Anregung mit nicht resonanten Pulsen erreicht bei entsprechender Verstimmung ihr Maximum bei gleich langen Pulsen.

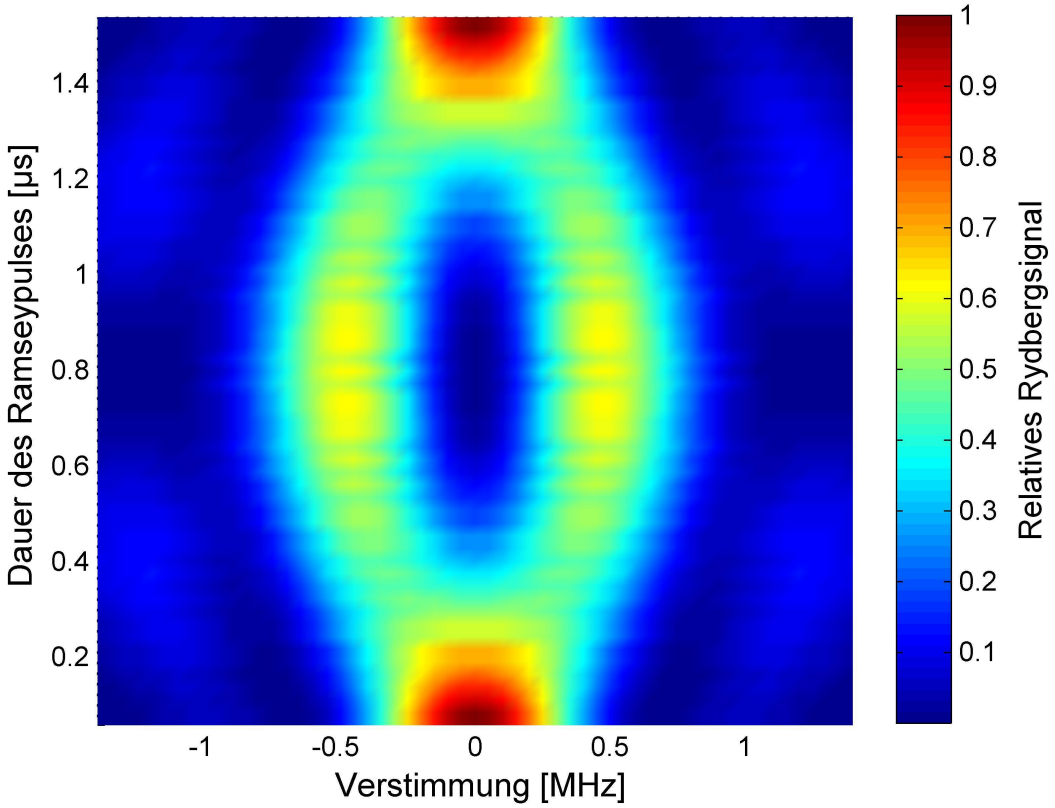

Abbildung 2.11: Ein Rotary-Echo-Spektrum ohne spontane und dekohärente Zerfälle.

2.7 Kühlmethoden für Atome

Wenn die Atome Photonen absorbieren, wie in Kap.1.9 und Kap.2 beschieben wurde, dann absobiert das Atom nicht nur dessen Energie, sondern auch dessen Impuls

$$M\underline{v}_i + \hbar\underline{k} = M\underline{v}_f \tag{2.7.1}$$

M ist die Masse des Atoms, $\underline{v}_i$ seine Anfangsgeschwindigkeit und $\underline{v}_f$ seine Endgeschwindigkeit. Die Emission eines Photons und damit auch von dessen Impuls erfolgt beim spontanen Zerfall in den Raum statistisch verteilt.
Wenn der Laser entgegengerichtet der Bewegungsrichtung der Atome ist, dann werden die Atome bei der Absorption abgebremst. Bei der Emission der Photonen werden sie im Mittel in alle Richtungen gleichstark beschleunigt. Diese beiden Effekte führen dazu, dass die Atome gekühlt werden.
Wenn sich die Atome bezüglich des Laserstrahls bewegen, dann hat der Laserstrahl im Ruhesystem der Atome wegen dem Dopplereffekt die Frequenz

$$\omega_A = \omega_L - v_{\|} \tag{2.7.2}$$

wobei $v_{\|}$ die Geschwindigkeitskomponente der Atome parallel zum Laserstrahl ist. Das Kühlen ist am effektivsten, wenn die relative Laserfrequenz resonant ist, somit muss der Laserstrahl beim Kühlen der Atome entsprechend rotverschoben sein, um den Dopplereffekt zu kompensieren. Wenn die Atome abgebremst werden, dann wird mit Hilfe des Zeemaneffekts dafür gesorgt, dass die Laserfrequenz resonant bleibt. Der interessierte Leser kann den Aufbau eines Zeemanslowers in [22] und [23] nachlesen.
Die in dem Zeemanslower vorgekühlten Atome werden in der Cloverleaf-Falle weitergekühlt und gefangen. Diese Falle gehört zum Typ der magnetooptischen Fallen. In diesen Fallen werden die Atome durch drei gegenläufige Laserpaare in allen drei Dimensionen weiter gekühlt. Da bei der Absorption der Photonen ein Rückstoß erfolgt, werden die Atome so auch gefangen. Wenn die Atome weit genug abgekühlt sind, werden sie in die Magnetfalle umgeladen. Dort werden sie durch das Anlegen von Magnetfeldern gefangen. Die Magnetfelder sorgen dafür, dass sich die potentielle Energie der Atome bei der Fortbewegung aus dem Fallenzentrum erhöht, weshalb sich die Gesamtenergie des Atoms erhöht. Da alle Systeme danach streben, dass sich ihre Gesamtenergie minimiert, streben die Atome danach, in der Fallenmitte zu bleiben. Eine intensivere Behandlung von magnetooptischen Fallen kann man in [22] und [24] nachlesen.
Die kleblattförmige Falle besteht aus ingesamt zwölf Spulen. Die beiden Pinchspulen in Helmholz-Anordnung (s. Abb.(2.12)) sorgen für den axialer Einschluss. Da die Krümmung des erzeugten Magnetfelds relativ groß ist, sorgen die beiden Biasspulen in Helmholz-Anordnung für eine geringere Krümmung, womit die Größe der Falle in axialer Richtung vergrößert wird. Der Strom in den Biasspulen ist gegenläufig zu dem in den Pinchspulen. Außerdem können mit den Biasspulen bei Experimenten, bei denen Magnetfelder von Nöten sind, wie z.B. in Kap.1.2 und in Kap.6, diese angelegt werden. Die

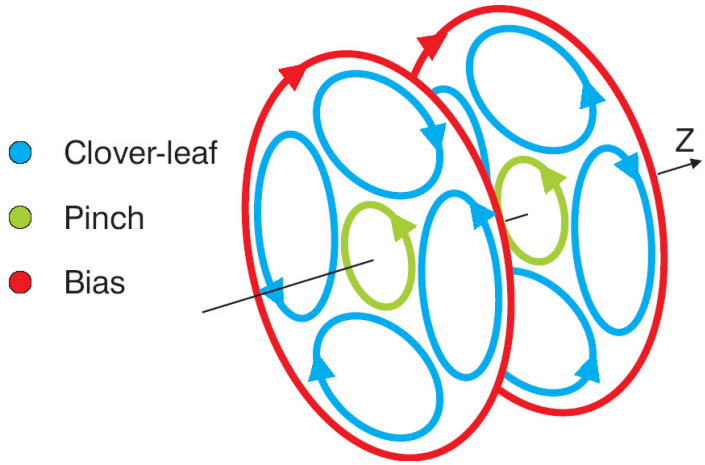

Abbildung 2.12: Schematische Anordnung der zwölf Spulen aus denen die Cloverleaf-Falle besteht mit der Richtung des Stromflusses [22].

acht kleblattförmigen Spulen („Cloverleaf-Spulen“) erzeugen ein Quadrupolfeld mit dem die Atome in radialer Richtung eingeschlossen werden.

Kapitel 3

Aufbau und Durchführung von Experimenten an ultrakalten Atomen

Vor dem Experiment wird ein Gemisch aus ^{85}Rb und ^{87}Rb im natürlichen Isotopenverhältnis 72:28 auf 160°C erhitzt, damit die Atome verdampfen. Ein Atomstrahl gelangt über den Zeemanslower, in dem dieser auf 2 mK vorgekühlt wird, in die Vakuumkammer. Bei 2 mK ist die Eigenbewegung der Atome so gering, dass sie in einer magnetooptischen Falle gefangen werden können. In der Vakuumkammer herrscht ein Ultrahochvakuum von 10^{-11} mbar, um Stöße mit heißen Hintergrundatomen zu verhindern. Dort werden die Atome in der Cloverleaf-Falle weiter gekühlt wie in dem Kap.2.7 beschrieben wurde. In dieser Falle werden Temperaturen von 20 mK erreicht. Im nächsten Schritt werden die Atome durch optische Molassekühlung gekühlt, dabei werden Temperaturen von 20 μK erreicht. Dann werden die Atome in eine Magnetfalle umgeladen und durch Verdampfungskühlung weiter gekühlt, indem Radiofrequenzen eingestrahlt werden, die den Übergangsfrequenzen der heißesten Atome in einem ungebundenen Zustand entsprechen. Dabei werden die Atome von dem Zustand $m_F = 2$ in die Zustände $m_F \leq 0$ übergeführt, die nicht gefangen sind. Es entstehen dabei auch Atome, die sich in dem Zustand $m_F = 1$ befinden. Ohne die heißen Atome nimmt die Atomwolke ein neues thermisches Gleichgewicht ein, bei dem sie eine niedrigere Temperatur besitzt. So werden Temperaturen von wenigen μK erreicht. Die Dichte der Atomwolke liegt dann bei etwa $3{\cdot}10^{13}$ cm^{-3}.
Für die magnetooptische Falle, den Zeemanslower und die Abbildung der Atome, auf die später eingegangen wird, wird ein Titanium-Saphir-Laser (Modell MBR 110) benutzt. Der TiSa-Laser wird mit dem Festkörperlaser Nd:YVO_2 (Modell V-10) gepumpt. Die Ausgangsleistung des TiSa-Lasers nach dem optischen Isolator, der Rückreflexe vom Laserlicht von außen verhindern soll, beträgt ca. 1,2 W bei der Wellenlänge 780 nm. Der TiSa-Laser treibt den atomaren Übergang von $5S_{\frac{1}{2}}$ ($F = 2, m_F = 2$) in $5P_{\frac{3}{2}}$ ($F = 3, m_F = 3$). Nach der Kühlung der Atome werden diese in Rydbergzustände angeregt, wie es in Kap.3.1 beschrieben wird.
Wenn während der Messung die Anregungsfrequenz für die Rydberganregung verändert wird, so geschieht das, indem die Radiofrequenz, die am AOM des infraroten Lasers an-

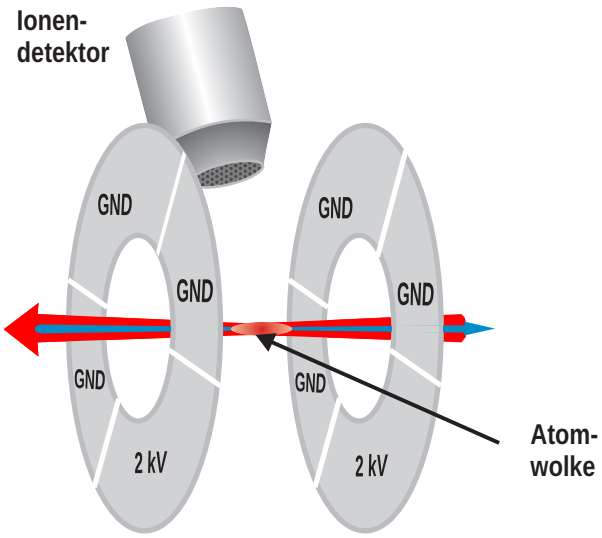

Abbildung 3.1: Aufbau zur Ionisation und Detektion der Rydbergatome
In der Mitte des Bildes sind die Laserlichter und die Atomwolke *(rot)* dargestellt. Um die Laserstrahlen sind die acht Feldplatten aufgebaut mit denen die Rydbergatome ionisiert werden. Oben im Bild sieht man die MCP, mit denen die Ionen der ionisierten Rydbergatome, detektiert werden [25].

liegt, verändert wird. In einer einzigen Wolke können über 500 Anregungen erfolgen und damit über 500 Datenpunkte aufgenommen werden.
Die Detektion der Rydbergatome erfolgt mit Multikanalplatten (MCP: multi chanal plate) (s. Abb.(3.1))[1]. An die Feldplatten wird eine Spannung von 2 kV angelegt und so ein elektrisches Feld von 430 Vcm^{-1} erzeugt, das ausreicht, um die Rydbergatome zu ionisieren, aber zu klein ist, um die Grundzustandsatome zu ionisieren. Die entstandenen Ionen werden zur Multikanalplatte hin im elektrischen Feld beschleunigt und schlagen aus der Oberfläche der Multikanalplatte Sekundärelektronen heraus, wodurch der Puls verstärkt wird. Der erzeugte Ladungspuls wird über einen Strom-Spannungswandler an eine Digitalisierungskarte geleitet, worauf ein Programm den Puls auswertet. Die Fläche des Pulses ist proportional zu der Zahl der Atome, die ionisiert wurden. Genaueres zur Funktionsweise der Multikanalplatte kann in [26] nachgelesen werden. Bei der Messung erhält man das Signal der Multikanalplatte aufgetragen über der Frequenz.
Die Dichte der Atomwolke wird anhand von Absorptionsaufnahmen nach einer Messreihe bestimmt. Es werden für eine resultierende Aufnahme der Atomwolke jeweils drei Bilder gemacht. Zum einen ein Absorptionsbild, ein Bild nur mit dem Laserlicht und ein Bild von der Kammer ohne Laserlicht. Dieses Bild gibt die Hintergrundstrahlung an, die von den anderen Bildern dann abgezogen wird. Aus der Differenz von dem Laserlicht und dem Absorptionslicht kann die Dichteverteilung der Atome bestimmt werden.

[1] Der genaue Aufbau kann in [26] nachgelesen werden.

Da die Atomwolke zylindersymmetrisch ist, kann daraus die dreidimensionale Dichteverteilung geschlussfolgert werden. Einen ausführlichere Beschreibung des Ofens, des Zeemanslowers und der Vakuumkammer kann der Leser in der Dissertation von R. Löw [22] nachlesen.
Um die Temperatur der Atomwolke bestimmen zu können, wird die Magnetfalle ausgeschaltet und nach ca. 2 ms freien Falls wird ein Absorptionsbild aufgenommen. Anhand der Expansion der Wolke während der kräftefreien Zeit kann deren Temperatur bestimmt werden.

3.1 Optischer Aufbau zur Anregung der Atome

Die Rydberganregung erfolgt durch einen Zweiphotonenprozess. Dabei werden die Atome im Grundzustand $5S_{\frac{1}{2}}$ über den Zwischenzustand $5P_{\frac{3}{2}}$, zu dem das Anregungslaserlicht von 780 nm stark verstimmt ist, in den Rydbergzustand angeregt. Der Anregungsweg wird in der Abb.(3.3) gezeigt. Die Verstimmung um etwa 400 MHz zu dem

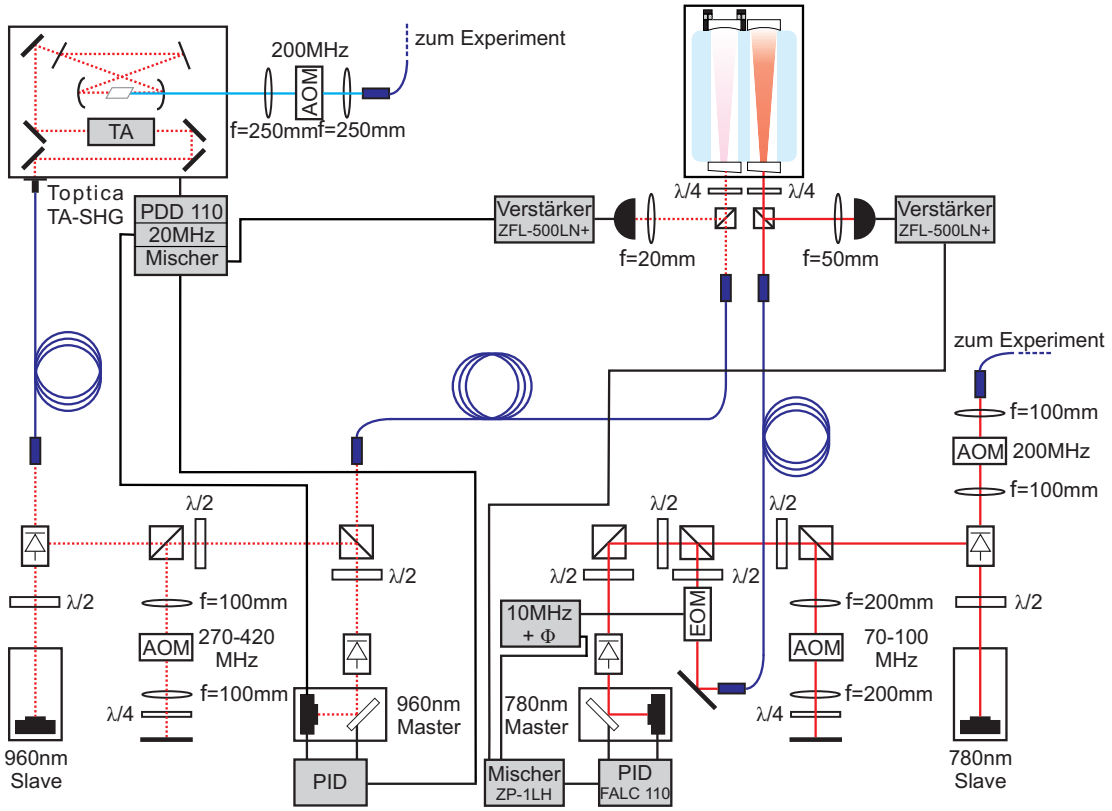

Abbildung 3.2: In diesem Schema ist der optische Aufbau zu sehen, mit dem die Laser stabilisiert werden. Der 960 nm Laser wird noch zusätzlich frequenzverdoppelt. Es sind nur die Teile des optischen Aufbaus abgebildet, die für die Stabilisierung der Laser relevant sind. [26]

Zwischenzustand sorgt dafür, dass dieser fast nicht besetzt wird. Er erhöht nur die Wahrscheinlichtkeit, dass die Atome in den Rydbergzustand angeregt werden. Die Anregung vom Zwischenzustand in den Rydbergzustand erfolgt mit Licht der Wellenlänge um 480 nm (die Wellenlänge hängt von dem Rydbergzustand ab in den man anregt). Da es keine Diodenlaser mit dieser Wellenlänge gibt, wird ein infraroter Laser mit der Wellenlänge 960 nm verwendet, dessen Licht frequenzverdoppelt wird.

Es wird nun ein grober Überblick über den optischen Aufbau gegeben, der in Abb.(3.2) schematisch gezeigt ist. In der Diplomarbeit von J. Balewski [26] wird genauer darauf

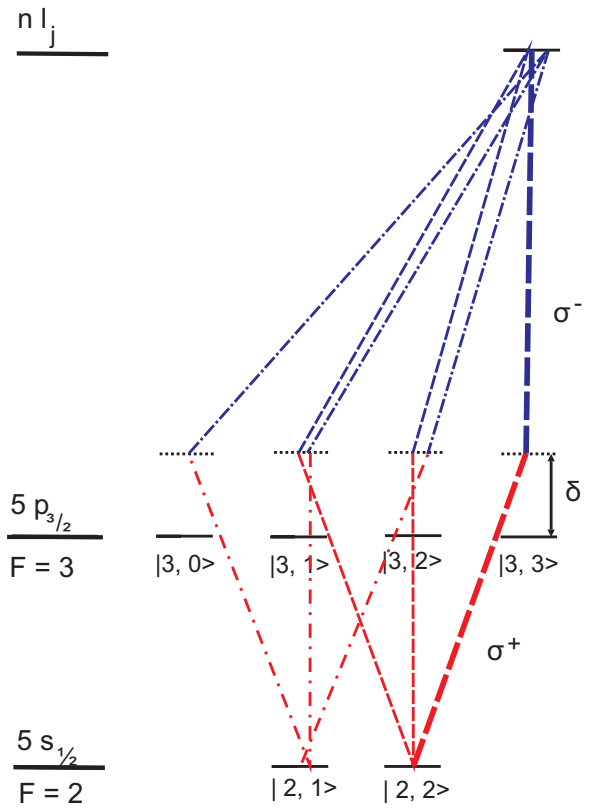

Abbildung 3.3: Schema der Anregung in den Rydbergzustand nL_J. Die Anregung erfolgt aus dem Zustand $F = 2, m_F = 2$, wobei auch Atome im Zustand $F = 2, m_F = 1$ erzeugt werden, weil die Atome in der Wolke nicht vollständig spinpolarisiert sind. δ ist die Verstimmung zum Zwischenniveau $F = 3$. Der Übergang über den hauptsächlich angeregt wird, ist dicker eingezeichnet als die anderen. Die anderen Übergänge sind möglich, weil es nicht nur einen Grundzustand gibt und das Laserlicht nicht perfekt polarisiert ist. Außerdem findet die Anregung in der LS-Basis statt und die Zwischenzustände sind gemischte Zustände (außer dem Zustand $F = 3, m_F = 3$). Die Anregung erfolgt in verschiedene Unterzustände des Rydbergzustandes nL_J.

eingegangen. Der optische Aufbau ist für die beiden Laser fast identisch. Deshalb gilt die Beschreibung im Folgenden für beide Laser, außer es wird ausdrücklich erwähnt.
In den Masterlasern, das sind die Diodenlaser mit einem externen Resonator, wird das Laserlicht erzeugt. Ein Teil des Lichtes wird in den Resonator geleitet, um mit der Methode nach Pound-Drever-Hall [27] zu stabilisieren. Das Ausgangssignal wird in den PID eingespeist, der die Laserfrequenz nachjustiert, indem er entweder den Diodenstrom ändert oder das Beugungsgitter des externen Resonators im Laser verkippt. Der rote Laser wird vor dem Resonator durch einen EOM geleitet, der für die Phasenmodulation sorgt. Beim infraroten Laser wird die Phase durch Änderung des Diodenstroms moduliert.
Der größte Teil des Lichts des Masterlasers wird durch den doppelten Durchgang durch den AOM frequenzverschoben. Der Slavelaser, das ist der Laser ohne einen externen Resonator, sorgt für eine Verstärkung des Laserlichtes auf eine konstante Leistung. Als nächstes wird das IR-Licht im Toptica TA-SHG mit einem nichtlinearen Kristall frequenzverdoppelt.
Der letzte AOM vor dem Experiment dient als Lichtschalter.

Kapitel 4

Messungen an den Spulen der Cloverleaf-Falle

Aufgrund der Erneuerung der Spulen in der Cloverleaf-Falle wurden diese neu gewickelt und die Magnetfelder gemessen und miteinander verglichen.
Bei der Wicklung der Spulen wurde am Anfang und nach jeder Wicklung der Widerstand im Kupferdraht gemessen, um sicher zu gehen, dass es keinen Kurzschluss gibt. Der benuzte Kupferdraht ist innen hohl, damit die Spulen mit Wasser gekühlt werden können. Die Ströme, die während der Messungen angelegt werden, sind so hoch, dass das nötig ist. Um sicher zu gehen, dass die Kühlung auch nach der Wicklung ausreichend hoch ist, wurde die Durchflussgeschwindigkeit von Wasser gemessen. Sie betrug bei den Cloverleafspulen zwischen 96 l/s und 105 l/s und bei den Pinchspulen zwischen 85 l/s und 91 l/s. Dies ist für die Kühlung ausreichend.
Die Messungen der Magnetfelder wurden mit einer Hallsonde durchgeführt. Es wurde das Magnetfeld der einzelnen Cloverleaf-, Pinch- und Biasspulen in Abhängigkeit vom relativen Abstand gemessen. Die gemessenen Magnetfelder der Spulen sind in Abb.(4.1) bis Abb.(4.4) dargestellt. Die Versorgungsspannung der Hallsonde betrug 7 V und an die Spulen wurden 35 A angelegt. Außerdem wurden die Pinch- und Biasspulen aufgebaut und der Abstand der Biasspulen zur Kunstoffform, in der später die Cloverleafspulen und Pinchspulen eingeklebt wurden, gesucht, bei dem das Magnetfeld im Fallenzentrum ungefähr 1 G betrug. Dies ist bei einem Abstand von 2,7 cm gewährleistet. Die Versorgungsspannung der Hallsonde betrug 6 V und es wurde 37,2 A an die Spulen angelegt. Im Fallenzentrum ist ein geringes Magnetfeld vonnöten, um Majoran-Spin-Flips und damit Atomverluste zu vermeiden.

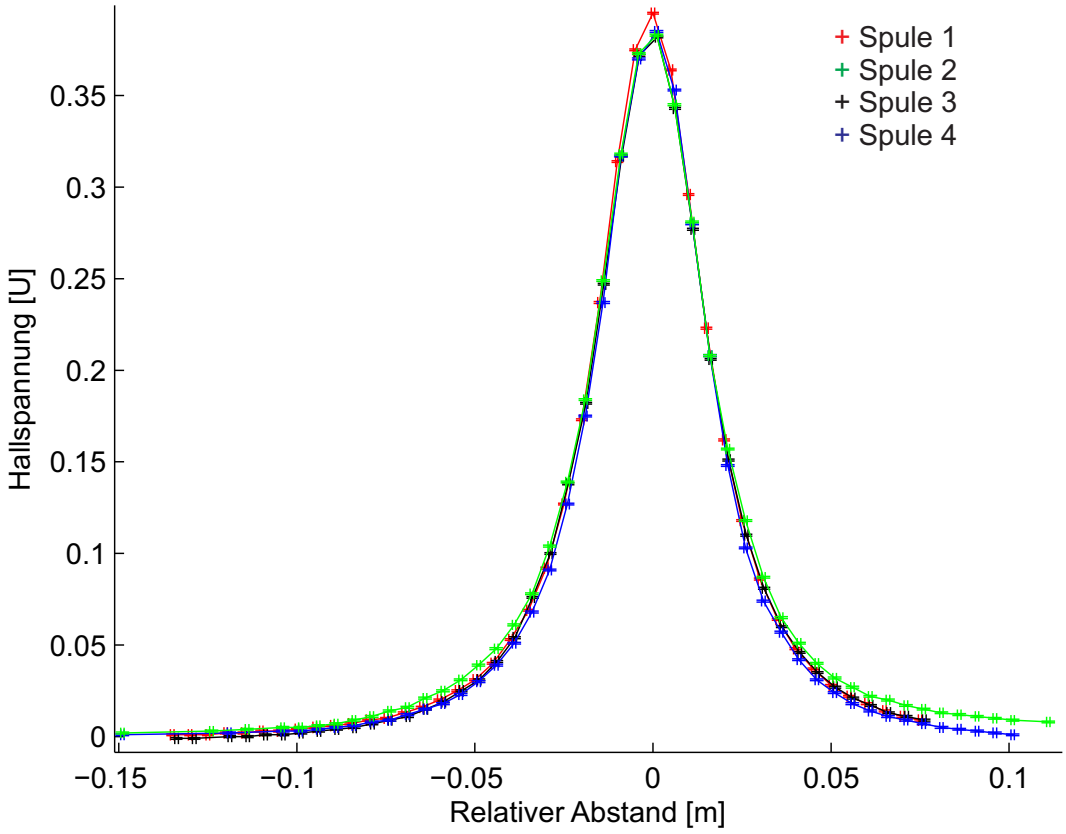

Abbildung 4.1: Gemessenes Magnetfeld von vier Cloverleafspulen.

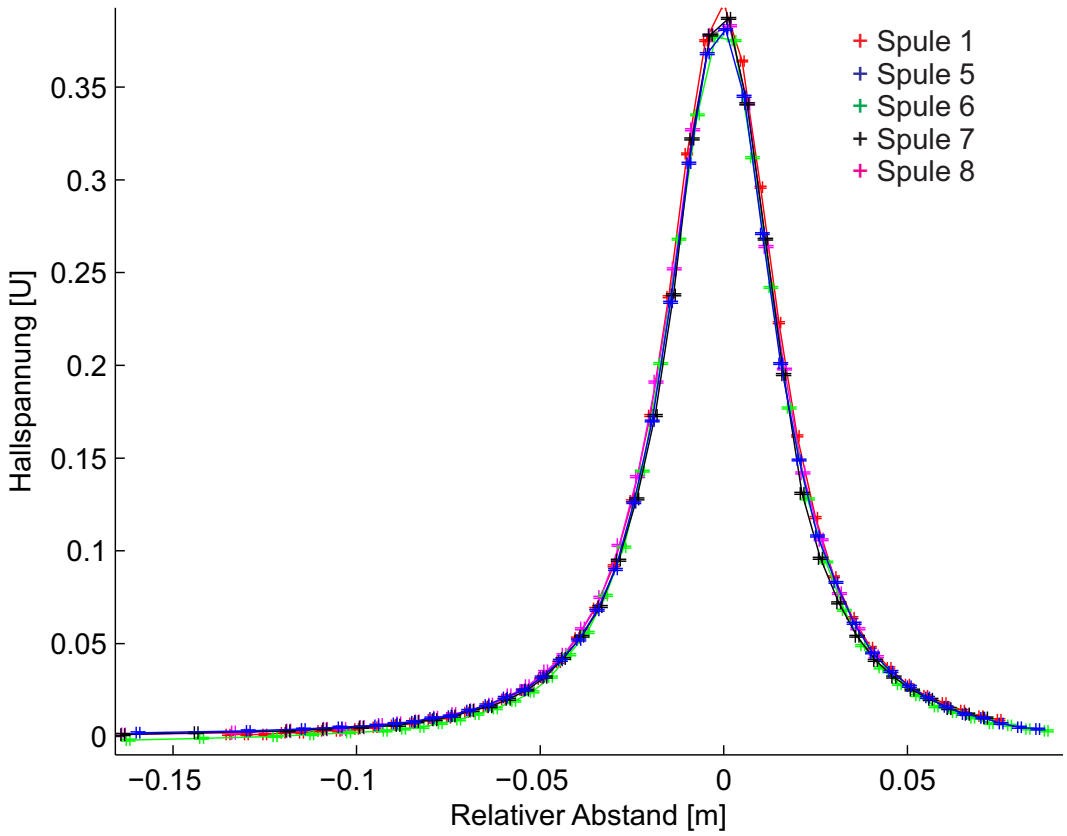

Abbildung 4.2: Gemessenes Magnetfeld der anderen vier Cloverleafspulen. Die rote Kurve zeigt das Magnetfeld derselben Spule wie in Abb.(4.1). Sie wurde als Referenz in diese Abbildung eingefügt.

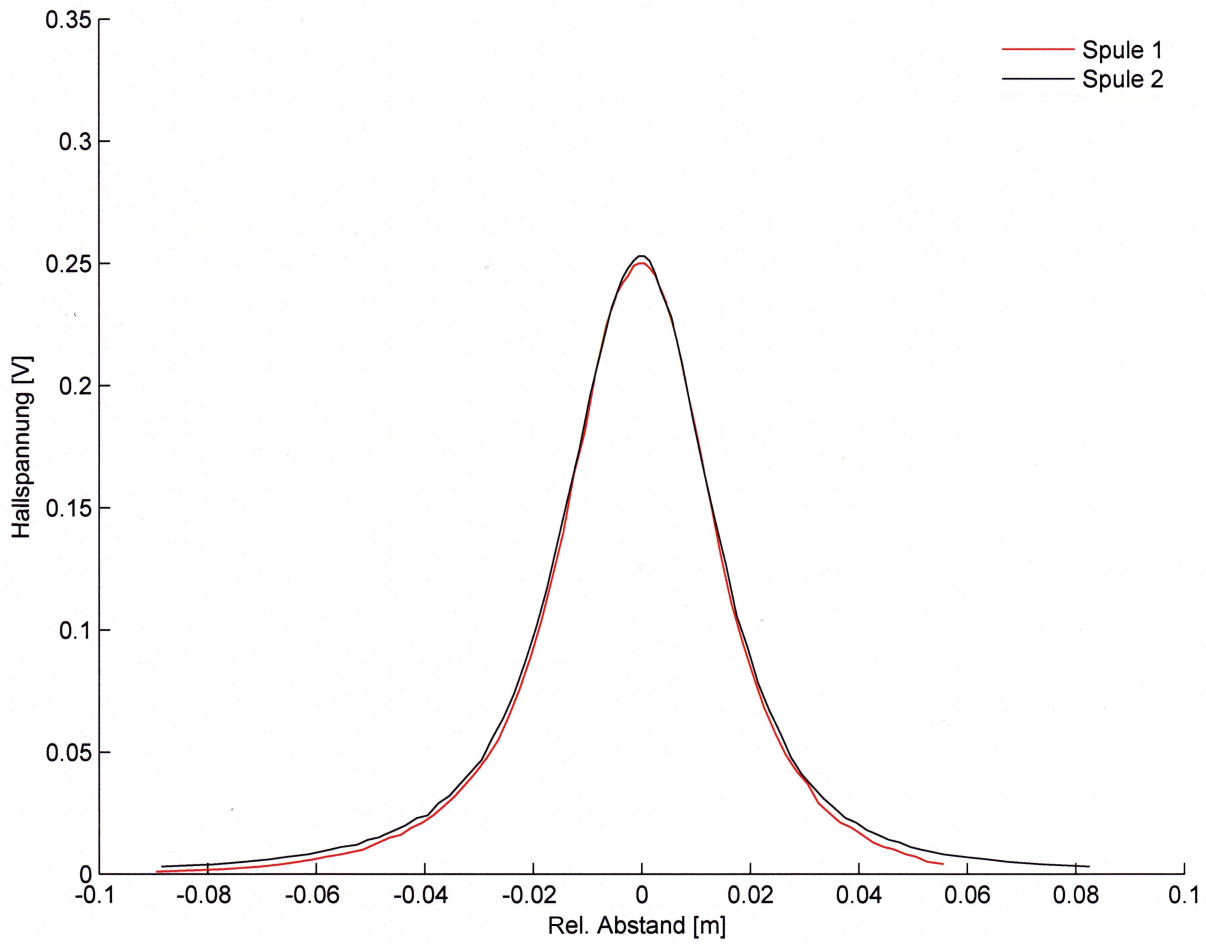

Abbildung 4.3: Gemessenes Magnetfeld der beiden Pinchspulen.

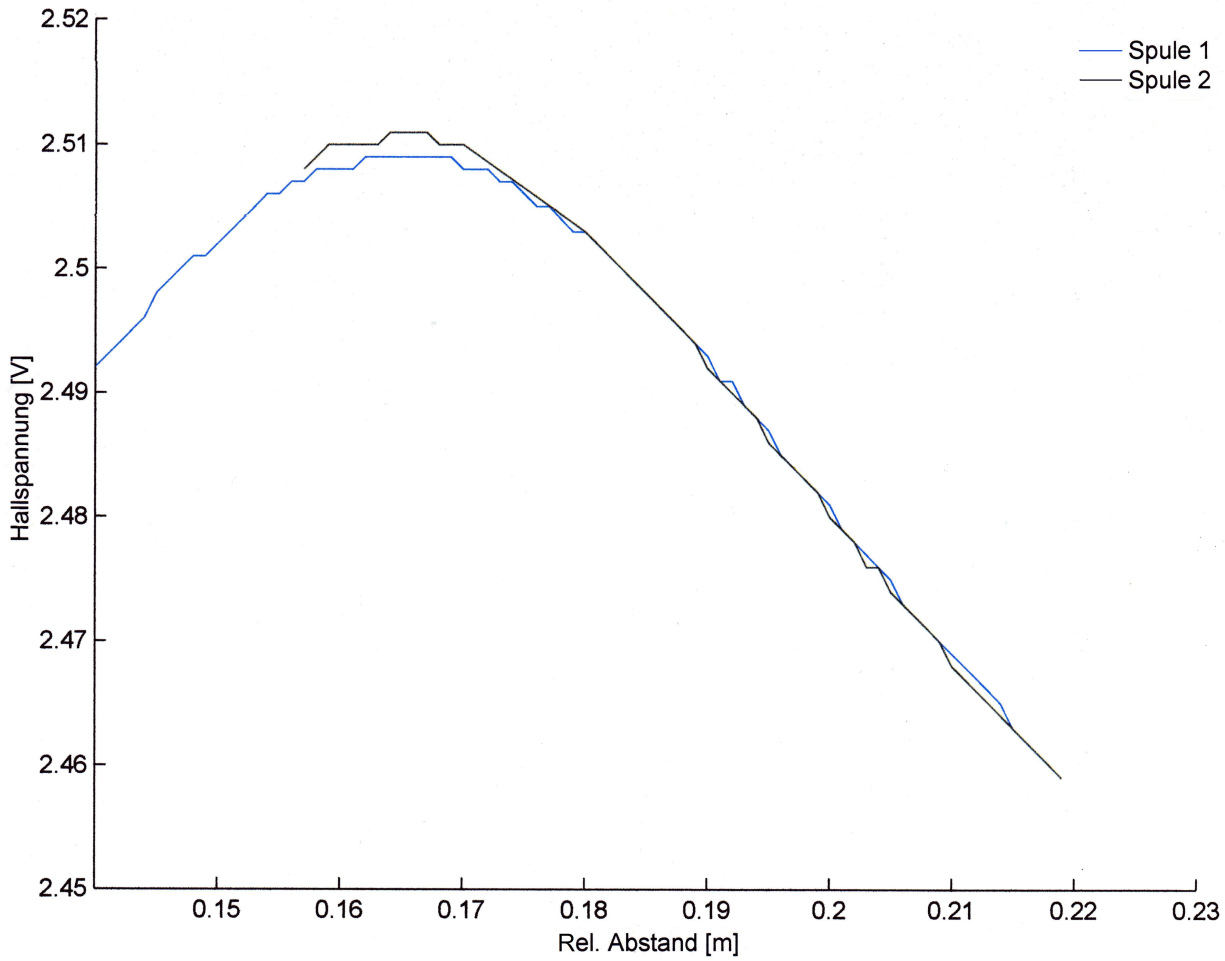

Abbildung 4.4: Gemessenes Magnetfeld der beiden Biasspulen.

Kapitel 5

Rydberg-Moleküle

Der Bindungsmechanismus der sogenannten weitausgedehnten Rydberg-Moleküle, deren Verhalten im Magnetfeld und deren kohärentes Verhalten im Rahmen dieser Diplomarbeit behandelt wird, ist keine kovalente Bindung, wie bei den alltäglichen Molekülen, sondern er beruht auf der Streuung des Valenzelektrons vom Rydbergatom am Grundzustandsatom. Laut Streutheorie macht sich die Wechselwirkung zwischen dem gestreuten und dem streuenden Teilchen nur in einer Phasenverschiebung der Wellenfunktion des gestreuten Teilchens bemerkbar. Anders ausgedrückt: Bei Kenntnis der Phasenverschiebung der Wellenfunktion des gestreuten Teilchens können die Bindungsbedingungen zwischen dem Rydbergatom und dem Grundzustandsatom hergeleitet werden.

5.1 Wechselwirkung zwischen Rydbergatom und Grundzustandsatom

Der Hamiltonoperator für die Wechselwirkung eines Rydbergatoms mit einem Grundzustandsatom lautet

$$H = -\left(\frac{\hbar^2}{\mu}\Delta - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_1}\right) - \left(\frac{e^2}{(4\pi\epsilon_0)^2}\frac{\alpha}{2r^4}\right) - \left(\frac{\hbar^2}{m_{\text{Rb}}}\Delta - \frac{e^2}{(4\pi\epsilon_0)^2}\frac{\alpha}{2R^4}\right). \quad (5.1.1)$$

μ ist die reduzierte Masse des Rydbergatoms und m_{Rb} ist die Masse eines Rubidiumatoms. r_1 und R sind die Beträge der Richtungsvektoren des Elektrons und des Grundzustandsatoms. α ist die Polarisierbarkeit des Grundzustandsatom, die für den Grundzustand $\alpha = 319 \pm 6$ a.u. [28] beträgt.
Der Ausdruck in der ersten Klammer in Gl.(5.1.1) entspricht dem Hamiltonoperator für das Rydbergatom. Die Wechselwirkung zwischen dem Rydberg-Rumpfatom und dem Grundzustandsatom (das ist die dritte Klammer in der Gl.(5.1.1)) ist so klein, dass sie vollkommen vernachlässigt wird. Die Wechselwirkung des Rydbergvalenzelektrons mit dem Grundzustandsatom (das ist die zweite Klammer in der Gl.(5.1.1)) kann als eine

äußere Störung betrachtet werden, weil dieser Term im Allgemeinen klein ist, außer wenn sich das Elektron am Ort des Grundzustandsatom aufhält. Störungen, die lokal groß werden, können nicht mit der stationären Störungstheorie behandelt werden, da die Entwicklung der Energie in Abhängigkeit der störenden Wechselwirkung lokal in höheren Ordnungen nicht vernachlässigbar klein wird. Aber es bietet sich an, das Problem mit der Streutheorie zu behandeln. Bei der Streutheorie wird das Verhalten der Phasenverschiebung, die von der Streuung eines freien Teilchens am Streupotential herrührt, in Abhängigkeit der kinetischen Energie des gestreuten Teilchens bestimmt. Dabei ist nur der Zustand des gestreuten Teilchens außerhalb der Wirkung des Streupotentials relevant, somit ist das Problem der Störung, die lokal groß wird, umgangen. Die Grundvoraussetzung für die Behandlung mit der Streutheorie ist, dass das gestreute Teilchen sich frei bewegt. Das Valenzelektron kann als quasifrei betrachtet werden, da seine Bindungsenergie an sein Rumpfatom sehr klein ist. Außerdem ist die Wechselwirkung des Rydberg-Rumpfatoms und dem Grundzustand so weit entfernt vernachlässigbar klein.

5.2 Streutheorie

Im folgenden Kapitel werden atomare Einheiten benutzt.
Bei einem Teilchen, das an einem kurzreichweitigen Potential gestreut wird, lautet die Schrödingergleichung:

$$\left(\frac{p^2}{2m} + V(r)\right)\Psi(r) = E\Psi(r). \tag{5.2.1}$$

Die Wechselwirkung in Gl.(5.1.1) zwischen dem Grundzustandsatom und dem Valenzelektron ist zwar keine kurzreichweitige Wechselwirkung, aber das Ergebnis aus dieser Behandlung, nämlich dass die Streuung eines freien Teilchen an einem Potential sich nur auf die Phase des gestreuten Teilchens auswirkt, gilt generell.
Das einfallende Teilchen wird vor dem Streuprozess als ebene Welle $\Psi_e(r)$ beschrieben und nach dem Streuprozess wird es asymptotisch als eine auslaufende Kugelwelle $\Psi_K(e)$ betrachtet

$$\begin{aligned} \Psi(r) &= \Psi_e(r) + \Psi_K(e) \\ &\overset{r\to\infty}{=} \Psi_e(r) + f\frac{\mathrm{e}^{ikr}}{r}. \end{aligned} \tag{5.2.2}$$

Sogar wenn das einfallende Teilchen scharf begrenzt ist, kann es durch eine ebene Welle beschrieben werden, wenn die Amplitude entsprechend gewählt wird. f ist die Streuamplitude. Wenn das Potential, an dem gestreut wird, kugelsymmetrisch ist, dann ist das ganze Problem unabhängig von dem azimutalen Winkel und es bietet sich an, als Basis die Kugelflächenfunktionen zu wählen. Da die Kugelflächenfunktionen die Eigenfunktionen des Drehimpulsoperators sind und dieser mit dem Hamiltonoperator kommutiert, ist das auch legitim. Damit folgt für eine ebene Welle, die sich in z-Richtung bewegt,

$$A_0\,\mathrm{e}^{ikz} = A_0 \sum_{l=0}^{\infty} i^l (2l+1) j_l(kr) P_l(\cos\vartheta). \tag{5.2.3}$$

A_0 ist die Amplitude, k der Betrag des k-Vektors, P_l sind die Legendre-Polynome und j_l die Kugel-Bessel-Funktion.
Nachdem das Teilchen gestreut wurde und sich außerhalb des Einflussbereiches des streuenden Potentials befindet, bewegt es sich wieder kräftefrei. Es bewegt sich also genauso wie vor dem Streuprozess. Und da das Betragsquadrat der Amplitude die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Teilchens angibt, würde eine Amplitudenmodulation der Teilchenerhaltung widersprechen. Somit kann das Potential nur die Frequenz beeinflussen und die Modulation von Frequenzen hat eine Phasenverschiebung zur Folge, wie in Abb.(5.1) gezeigt wird. Das erkennt man auch an der Streuamplitude

$$f(\vartheta) = \frac{1}{k} \sum_{l} (2l+1)\,\mathrm{e}^{i\delta_l} \sin\delta_l P_l(\cos\vartheta). \tag{5.2.4}$$

Die genaue Berechnung kann der interessierte Leser in [29] nachlesen. Der differentielle Wirkungsquerschnitt $d\sigma(\vartheta)$ entspricht dem relativen Teilchenfluss der gestreuten Teilchen in einen Raumwinkel $d\Omega$

$$d\sigma(\vartheta) = |f(\vartheta)|^2 d\Omega. \tag{5.2.5}$$

Nach der Integration über den gesamten Raum folgt für den totalen Wirkungsquerschnitt

$$\sigma = 4\pi(2l+1)\frac{\sin^2\delta_l}{k^2}. \tag{5.2.6}$$

In der ERT (effective range theory) [30, 31] wird die Phasenverschiebung der Wellenfunktion in Termen von k^2 entwickelt, weil so die Berechnung von vielen Phasenverschiebungen umgangen wird, indem man nur ein paar Parameter berechnen muss. Bei niederenergetischer Streuung reduzieren sich die Paramenter auf die Streulänge a und den effektiven Radius r_0. Die Entwicklung lautet dann:

$$k\cot\delta_l = -\frac{1}{a} + \frac{1}{2} r_0 k^2 + O(k^4). \tag{5.2.7}$$

Wobei r_0 nicht nur von der Länge des Potentials abhängt, sondern auch von seiner Tiefe. Wenn die kinetische Energie des gestreuten Teilchens gering ist, dann ist auch die Phasenverschiebung klein und damit gilt die Näherung

$$\tan\delta_l \approx \sin\delta_l. \tag{5.2.8}$$

Außerdem kommt es dann vorwiegend zur s-Wellen-Streuung. Für Streuungen mit höherem Drehimpuls ist die Zentrifugalbarriere zu groß, für die

$$V_Z = \frac{l(l+1)}{2r^2} \tag{5.2.9}$$

gilt. Für den totalen Wirkungsquerschnitt aus Gl.(5.2.6) folgt mit diesen Näherungen

$$\sigma_{l=0} = 4\pi a^2. \tag{5.2.10}$$

Diese Gleichung sagt aus, dass das Teilchen an einer Kreisscheibe mit dem Radius a gestreut wird. Wenn diese Kreisscheibe keine scharfe Begrenzug hat, die von der Annahme, dass das Potential kurzreichweitig ist, herrührt, sondern verschmiert ist, dann kann man bei Kenntnis von der Streulänge Bedingungen herleiten, bei denen das Elektron eingefangen wird. Dieses Einfangen beruht auf denselben Effekten, wie das Einfangen von Körpern aufgrund der Gravitationskraft, die auch langreichweitig ist. Je nachdem wie

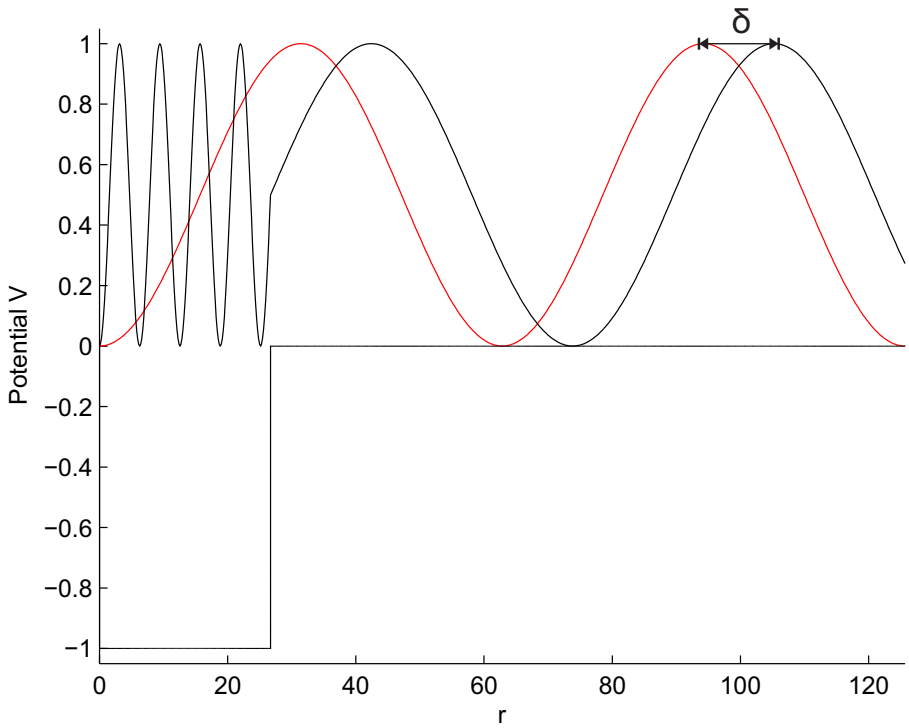

Abbildung 5.1: Die *rote* Kurve zeigt das Verhalten der Wellenfunktion eines Teilchen, das sich frei bewegt. Bei der *schwarzen* Kurve ist dasselbe Teilchen dem Potential V ausgesetzt. Im Bereich $r < 0$ bewegt es sich auch frei und damit verhält sich die schwarze Kurve genauso wie die rote. Während es sich in dem Einflussbereich des Potentials $-V$ befindet, ändert sich seine Frequenz. Diese wird größer, weil das Teilchen in dem Potentialtopf eine niedrigere potentielle Energie besitzt als außerhalb. Die Gesamtenergie des Teilchens bleibt erhalten. Nachdem das Teilchen den Potentialtopf verlässt, bewegt es sich wieder frei und seine Frequenz ist dann die gleiche wie bei der roten Kurve. Bezüglich des Teilchens, dass das Potential $-V$ nicht gespührt hatte, hat es die Phasenverschiebung δ.

nah ein Felsbrocken an der Sonne vorbeifliegt und welchen Impuls er besitzt, wird er von dieser nur abgelenkt oder eingefangen. Falls seine Bahn stabil ist, wird er zu einem Trabanten der Sonne.
In Gl.(5.2.7) floss u.a. die Annahme ein, dass das Potential kurzreichweitig ist, d.h. unter anderem, dass Potentiale für die

$$V(r) \approx -\frac{\beta^2}{r^4} \tag{5.2.11}$$

gilt, ausgeschlossen sind. Bei einer Weiterentwicklung der ERT, der MERT (modified effective range theory) [32] wurde auch das mit berücksichtigt und für die Phasenverschiebung bei s-Wellenstreuung der Zusammenhang

$$\frac{\tan\delta_0}{k} = -a - \frac{\pi\alpha}{3}k + \frac{4\alpha a}{3}\ln\left(\frac{\sqrt{\alpha}k}{4}\right)k^2 + O(k^3) \tag{5.2.12}$$

und bei l $>$ 0

$$\frac{\tan\delta_l}{k} = \frac{\pi\alpha}{(2l+3)(2l+1)(2l-1)}k + O(k^2) \tag{5.2.13}$$

gefunden.
Aus Gl.(5.2.6) erhält man mit den Berücksichtigungen, dass das Streupotential sich wie in Gl.(5.2.11) verhält und dass es nur s-Wellenstreuung gibt, das Pseudopotential [33]

$$V_P(k) = -4\pi\sum_l (2l+1)\frac{\tan\delta}{k}P_l(\underline{k}_a\cdot\underline{k}_f) \tag{5.2.14}$$

im Impulsraum. k_a und k_f sind die k-Vektoren der ebenen Wellen, die das Valenzelektron vor und nach der Streuung ausdrücken. Die Wirkung einer Phasenverschiebung auf eine Wellenfunktion kann im Impulsraum viel einfacher berechnet werden als im Ortsraum. Als nächstes wird die obere Gleichung Fourier-transformiert

$$V_P(r) = 4\pi\sum_l (2l+1)a_l(k)\left[P_l\left(\frac{\nabla'\cdot\nabla}{k^2}\right)\psi^*(r')\psi(r)\right]_{r=r'}, \tag{5.2.15}$$

weil man zur Bestimmung der Bindungsbedingungen das Pseudopotential im Ortsraum benötigt. Für die s-Wellenstreuung folgt aus Gl.(5.2.15), die in die Gl.(5.2.12) eingesetzt wurde,

$$\begin{aligned} V_P(r) &= 2\pi a(k)|\psi(r)|^2 \\ &= 2\pi\left(a_0 + \frac{\pi\alpha}{3}k(r)\right)|\psi(r)|^2, \end{aligned} \tag{5.2.16}$$

wobei nur die Terme in erster Ordnung in k berücksichtigt wurden. Für die Ortsabhängigkeit des k-Vektors gilt

$$k(r) = \sqrt{2E_{\text{kin}}} = \sqrt{2\left(E_{nl} + \frac{1}{r}\right)}\,. \tag{5.2.17}$$

Diese Gleichung folgt aus der Forderung, dass die erlaubten Energieniveaus im Atom der Summe aus der kinetischen und potentiellen Energie des Valenzelektrons entsprechen. Die Streulänge a_0 hängt von der Ausrichtung des Spins des Rydbergvalenzelektrons gegen das Valenzelektron des Grundzustandsatoms ab. Die beiden Elektronenspins können zu einem Singlett bzw. zu einem Triplett koppeln (näheres s. Kap.(5.3)). Beim ersteren beträgt der berechnete Wert der Streulänge $a_0 =$ 0,627 a.u. bis 2,03 a.u. [34, 35]. Beim Triplett wurde für die Streulänge a_0 der Wert -16,9 a.u. und -13 a.u. berechnet [35, 36]. In [25] wurde anhand von ausgewerteten Messreihen eine Streulänge $a_0 = -18$ a.u. bestimmt. Dieser Wert wurde in Abb.(5.2) eingesetzt, in der das Verhalten der Gl.(5.2.12), die die allgemeine Streulänge $a(k)$ angibt, in Abhängigkeit vom Ort gezeigt wird.
Die Wellenfunktion des Rydbergvalenzelektrons in dem Pseudopotential aus Gl.(5.2.16) kann in den winkelabhängigen Teil, also die Kugelflächenfunktionen, und den radialabhängigen Teil separiert werden. Die Kugelflächenfunktionen können analytisch berechnet werden. Für s-Wellenstreuung beim Triplett folgt aus Gl.(5.2.16)

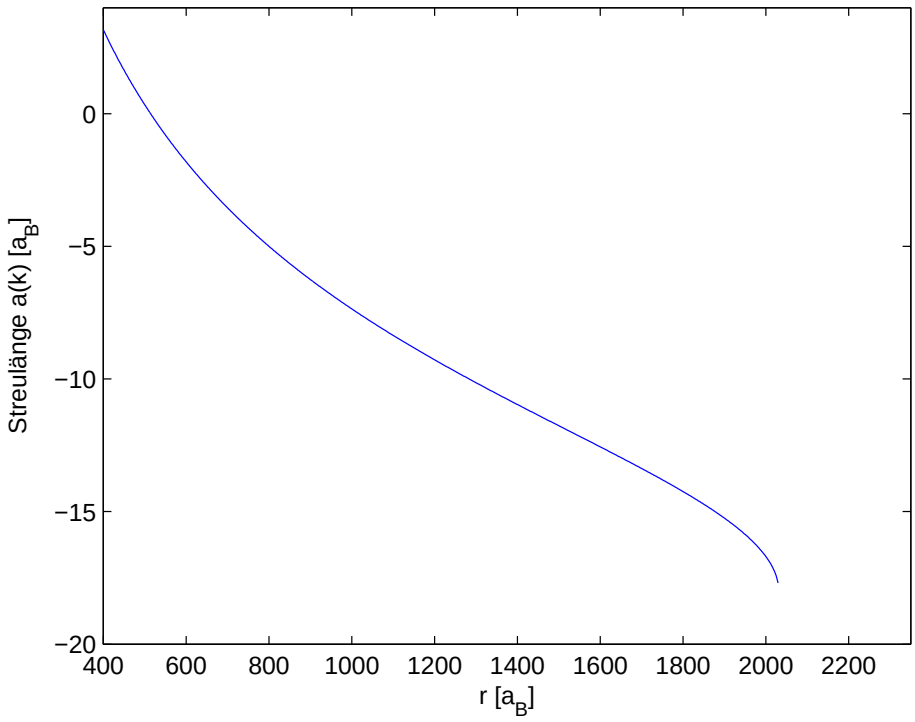

Abbildung 5.2: Die Streulänge $a(k)$ mit dem Wert $a_0 = -18$ a.u. für den Rydbergzustand 35s.

$$V_P = \frac{1}{2}\left(a_0 + \frac{\pi\alpha}{3}k(r)\right)|R_{nl}(r)|^2 \tag{5.2.18}$$

$$\overset{n=35}{=} \frac{1}{2}\left(-18 + \frac{319\cdot\pi}{3}\sqrt{-\frac{2}{n^{*2}} + \frac{2}{r}}\right)|R_{35,0}(r)|^2. \tag{5.2.19}$$

Bei dem Zustand 35s ist das Potential ab der Länge von 500 a_B (Bohrradius) attraktiv (s. Abb.(5.3)) und es gibt zwei Bindungszustände. Den Grundzustand bei -22,5 MHz und den Zustand bei dem die Vibrationsquantenzahl ν eins beträgt. Dieser Zustand liegt bei -10,1 MHz.
Der Singlettzustand ist immer repulsiv.

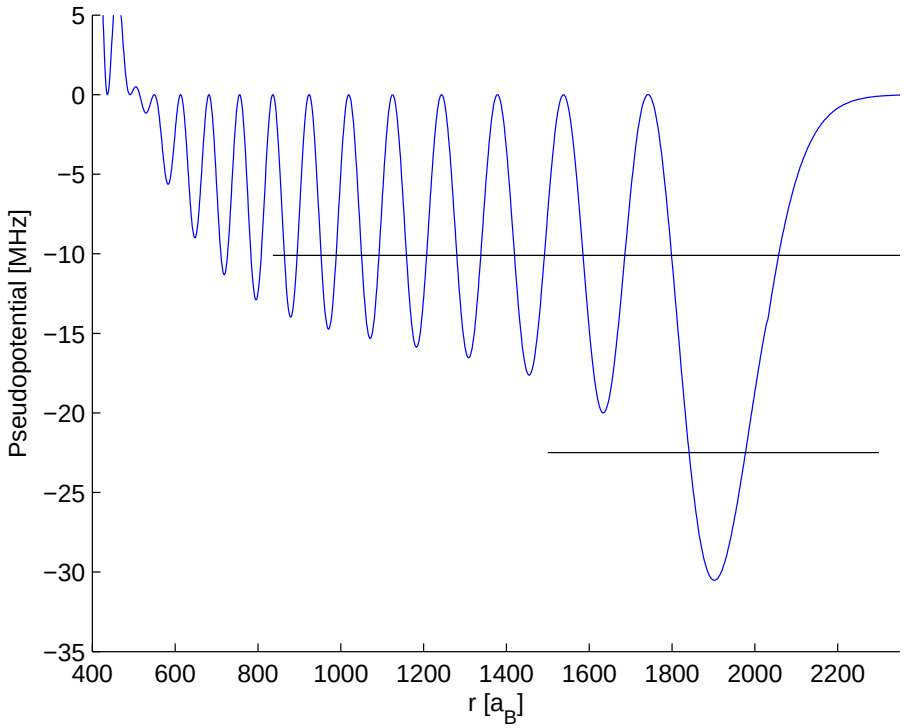

Abbildung 5.3: Das Pseudopotential $V_P(r)$ für den Zustand 35 s. Die beiden horizontalen Linien bei -10,1 MHz und -22,5 MHz geben die Energie der beiden möglichen Rydbergmolekülzustände an. Der Bereich der Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen [25] bei einer Bindung ist durch die Länge der Striche bei den Bindungsenergien wiedergegeben.

5.3 Rydberg-Moleküle im Magnetfeld

Das gestreute Elektron und das Valenzelektron des Grundzustandsatoms halten sich so nah an dem Kern des Grundzustandsatoms auf, dass sie das Magnetfeld, das der Kernspin erzeugt, spüren.
Eine kovalente Bindung zwischen zwei Atomen kommt dadurch zu Stande, dass die Elektronen, die an der kovalenten Bindung beteiligt sind, eine gewisse Aufenthaltswahrscheinlichkeit an beiden Kernen haben. Bei dem Rydberg-Molekül ist der Wechselwirkung zwischen dem Rydbergkern und den an der Bindung beteiligten Elektonen so gering, dass die Aufenthaltwahrscheinlichkeit am Rydbergkern vernachlässigbar klein ist. Es liegt der Schluss nahe, dass sich die beiden Elektronen und das Grundzustandsatom so verhalten, wie ein Atom mit zwei Valenzelektronen[1]. Im Folgenden wird der Bahndrehimpuls der Elektronen außer Acht gelassen, weil die Messungen an dem s-Zustand des Rydberg-Moleküls durchgeführt wurde.
Da die Kopplungsstärke zwischen den Spins etwa 2000-mal größer ist als zwischen dem Elektronenspin und dem Kernspin des Grundzustandsatoms, koppeln die Spins $\underline{S}_1$ und $\underline{S}_2$ der beiden Elektronen aneinander zum Gesamtspin

$$\underline{\Sigma} = \underline{S}_1 + \underline{S}_2. \tag{5.3.1}$$

Man erkennt das, wenn die Gl.(1.2.20) mit der Gl.(1.2.24), in die die Gl.(1.2.23) eingesetzt wurde, vergleicht. Da es keinen Bahndrehimpuls gibt, entspricht der Gesamtspin Σ dem Gesamtdrehimpuls

$$\underline{\Omega} = \underline{\Sigma} = \underline{S}_1 + \underline{S}_2 \tag{5.3.2}$$

Je nachdem wie die Elektronen zueinander ausgerichtet sind, können sie entweder ein Triplett mit $|\underline{\Sigma}| = 1$ oder ein Singlett mit $|\underline{\Sigma}| = 0$ bilden. Beim Triplett nehmen die Elektronen die Zustände

$$|\uparrow\uparrow\rangle \quad \text{mit} \quad M_\Sigma = 1 \tag{5.3.3}$$

$$\frac{1}{\sqrt{2}}\left(|\downarrow\uparrow\rangle + |\uparrow\downarrow\rangle\right) \quad \text{mit} \quad M_\Sigma = 0 \tag{5.3.4}$$

$$|\downarrow\downarrow\rangle \quad \text{mit} \quad M_\Sigma = -1 \tag{5.3.5}$$

ein. Beim Singlett nehmen sie den Zustand

$$\frac{1}{\sqrt{2}}\left(|\downarrow\uparrow\rangle - |\uparrow\downarrow\rangle\right) \quad \text{mit} \quad M_\Sigma = 0 \tag{5.3.6}$$

[1] Das Bild passt nur für die Zeemanlinien. Bei einem Atom mit zwei Valenzelektronen kann im s-Zustand der Spin niemals ein Triplett annehmen. Die Wellenfunktion des s-Zustandes ist symmetrisch. Die Spinwellenfunktion im Triplett ist ebenfalls symmetrisch. Aber die Gesamtwellenfunktion der Elektronen muss antisymmetrisch sein!

ein. M_Σ ist die Projektion von dem Gesamtspin $\underline{\Sigma}$ auf das äußere Magnetfeld.
Der Gesamtdrehimpuls $\underline{\Omega}$ der Elektronen koppelt an den Kernspin $\underline{I}$ des Grundzustandsatoms zum Gesamtdrehimpuls des Moleküls

$$\underline{\Xi} = \underline{\Omega} + \underline{I}. \tag{5.3.7}$$

Kapitel 6

Messungen im Magnetfeld

In diesem Kapitel wird das Verhalten der Rydbergatome und der Rydberg-Moleküle im Magnetfeld behandelt. Da das Verhalten der Rydbergatome im Magnetfeld bekannt ist, eignen sich diese Messungen sehr gut dazu, das Verhalten des Magnetfeldes in der Magnetfalle zu überprüfen. Außerdem kann man so überprüfen, ob andere Effekte bei den Messungen in dem Magnetfeld auftreten. So könnte es zum Beispiel sein, dass während der Anregung elektrische Felder auftreten, die so groß sind, dass die Kopplung des angelegten Magnetfeldes daran nicht vernachlässigbar klein ist.
Es hatte sich herausgestellt, dass es in der Falle ein Offset-Magnetfeld gibt. Damit war klar, dass das nichtlineare Verhalten der Moleküllinien im Magnetfeld auf dieses Offset-Magnetfeld zurückgeführt werden kann und nicht auf das Verhalten der Molekül-Zeemanlinien an sich.
Außerdem konnten die Messungen an den Atomen bei der Diskussion über die auftretenden Molekül-Zeemanlinien zur Rate gezogen werden.

6.1 Rydbergatome im Magnetfeld

Zuerst sei darauf hingewiesen, dass im Folgenden die Braketschreibweise benutzt wird. Im Braket $\langle a|e\rangle$ steht im Bra $\langle a|$ der Anfangszustand und im Ket $|e\rangle$ der Endzustand. Im Folgenden heißt das, dass an erster Stelle die Drehimpulsquantenzahl F des Atoms und an zweiter Stelle deren magnetische Quantenzahl m_F, die hier der Projektion des Drehimpulses auf das angelegte Magnetfeld B entspricht[1], steht. $\langle 2,1|$ bedeutet, dass die Drehimpulsquantenzahl des Atoms $F = 2$ und die magnetische Zahl $m_F = 1$ ist. Wenn sich im Ket zwei Zahlen befinden, dann steht die erste Zahl für den Gesamtdrehimpuls[2] J und die zweite Zahl für dessen magnetische Quantenzahl m_J. Da die s-Zustände des Rydbergzustandes nur aus zwei gestreckten Zuständen bestehen, wurden bei diesen Zuständen im Ket der Bahndrehimpuls l (erste Stelle), dessen magnetische Quantenzahl

[1] Es ist nicht wie allgemein gebräuchlich die Projektion auf das wirklich herrschende Magnetfeld in der Magnetfalle, da es in der Magnetfalle Offset-Magnetfelder gibt, die tagesabhängig sind.

[2] Im Rydbergzustand spielt der Kernspin I keine Rolle. Es wird später genauer darauf eingegangen.

m_J (zweite Stelle), der Spin des Valenzelektrons s (dritte Stelle) und dessen Projektion auf das angelegte Magnetfeld m_s (vierte Stelle) angegeben. Wenn nur ein bestimmter Zustand gemeint ist, dann wird er generell im Ket angegeben, unabhängig davon, ob es der End- oder Anfangszustand ist.
Es wurden die Spektren der 46 $D_{\frac{5}{2}}$-, 46 $D_{\frac{3}{2}}$-, 43 $S_{\frac{1}{2}}$- und 35 $S_{\frac{1}{2}}$-Zustände im variablen Magnetfeld gemessen. Die Durchführung der Messung ist im Kap.3 beschrieben. Bei der Anregung in n $S_{\frac{1}{2}}$ war das Laserlicht mit der Wellenlänge 760 nm σ^+-polarisiert und das Laserlicht mit der Wellenlänge 480 nm σ^--polarisiert. Bei der Anregung in die D-Rydberg-Zustände war das Licht beider Laser σ^+-polarisiert. Die erste Messung einer solchen Messreihe wurde mit dem maximalen angelegten Magnetfeld durchgeführt, bei dem alle sichtbaren Spektren einer Messreihe aufgenommen werden können. Dabei wurde der Frequenzbereich so gewählt, dass alle Linien ins Spektrum passen. In den folgenden Messungen wurde dann das Magnetfeld schrittweise heruntergefahren und jeweils ein Spektrum aufgenommen. Die aufgenommenen Spektren befinden sich im Anhang A.
Während der Rydberganregung wird am Ort der Atome ein Magnetfeld B erzeugt, indem an die Netzteile der Offsetspulen ein Strom angelegt wird. Der angelegte Strom wird im Steuerungsprogramm des Experiments als „Rydbergboden“ eingegeben. Zwischen dem Magnetfeld B und dem „Rydbergboden“ ergab sich bei einer Kalibration folgender Zusammenhang:

$$B[\text{Gauß}] = 2,116 \cdot \text{Rydbergboden} + 1,2457. \tag{6.1.1}$$

Bei der Kalibration wurden die Atome aus dem Zustand $|2,2\rangle$ in den Zustand $|2,1\rangle$ überführt. Da der Zustand $|2,1\rangle$ in der Magnetfalle nicht gefangen wird, verschwindet das Spektroskopiesignal bei der Resonanzfreqenz. Bei einem nicht vorhandenen äußeren Magnetfeld liegt die Resonanzfreqenz bei 6,8 GHz [37]. Wegen der Magnetfeldabhängigkeit der Unterniveaus ist die Resonanzfrequenz auch magnetfeldabhängig. Mit der Gl.(1.2.20) folgt für die Resonanzfrequenz

$$\begin{aligned}\Delta\nu &= \frac{m_{F=1}g_{F=1} - m_{F=2}g_{F=2}}{h} B\mu_B \\ &= \left(-1 \cdot \frac{1}{2} - 2\frac{1}{2}\cdot\right)\frac{\mu_B}{h}B \\ &= -\frac{3}{2}\frac{\mu_B}{h}B. \end{aligned} \tag{6.1.2}$$

Es gilt $g_{F=1} = -\frac{1}{2}$ und $g_{F=2} = \frac{1}{2}$. Mit Gl.(6.1.2) kann das herrschende Magnetfeld bei den Atomen berechnet werden. „Rydbergboden“ verhält sich linear zum Strom, der das Magnetfeld induziert. Ebenso verhält sich der Strom zum Magnetfeld, das er induziert. Deshalb folgt, dass sich das Magnetfeld linear zu „Rydbergboden“ verhält. Abb.(6.1) zeigt die ermittelte Kalibrationskurve.
An eine Messreihe wurde die entsprechende Anzahl an Gauß-Kurven angepasst, um das Maximum zu bestimmen, das die Frequenz ν in der Mitte der Spektrallinie angibt. Es

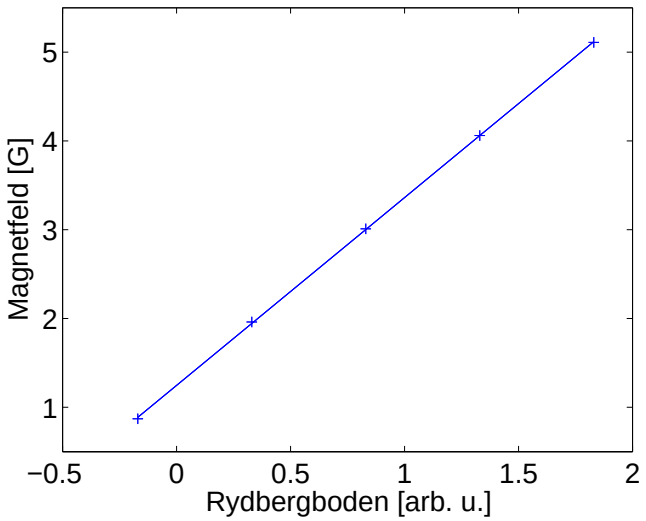

Abbildung 6.1: Abhängigkeit zwischen „Rydbergboden“ und dem erzeugten Magnetfeld.

wurden Gauß-Kurven aufgrund von folgender Überlegung gewählt:
Die linienverbreiternden Effekte, die gleichzeitig die Spektrenform bestimmen, sind die Dopplerverbreiterung, die natürliche Linienbreite und die Verbreiterung des Spektrums, weil das Laserlicht nicht komplett monochrom ist. Die Dopplerverbreiterung führt zu einem Gauß-Profil und beträgt etwa 125 kHz [38]. Die natürliche Linienbreite sorgt für ein Lorentz-Profil und liegt im unteren kHz-Bereich. Die natürliche Linienbreite entspricht dem Kehrwert der Lebensdauer und diese kann für die vier Zustände aus der Abb.(1.9) entnommen werden. Da der Zwischenzustand nicht besetzt wird, hat dieser auch keine Auswirkung auf die Linienbreite der Spektrallinien. Die Verbreiterung aufgrund der endlichen Linienbreite des Laserlichts beträgt ungefähr 100 kHz [26, 39] und sorgt für ein Gauß-Profil. Die natürliche Linienbreite kann verglichen mit den beiden anderen Effekten vernachlässigt werden, weshalb die Spektrallinien auch kein Voigt-Profil haben.
Die ausgewerteten Daten sind in Anhang A enthalten. Danach wurde die ermittelte Frequenz ν über dem Magnetfeld B aufgetragen (s. Abb.(6.2), Abb.(6.4) und Abb.(6.6)). Den jeweiligen $\nu(B)$-Schaubildern folgen die entsprechenden Termschemata für die möglichen Anregungswege der Valenzelektronen (Abb.(6.3), Abb.(6.7) und Abb.(6.5)). In den Termschemata sind nur Übergänge berücksichtigt, bei denen sich der Kernspin nicht ändert, weil es während der Messung keine Vorgänge gibt, die diesen verursachen könnten. Zum einen ist die Zeit während der Anregung so kurz und die Dichte der Atomwolke so klein, dass die Wahrscheinlichkeit für Drei-Körper-Stöße vernachlässigbar klein ist. Und da es zum anderen in der Magnetfalle überall ein Magnetfeld gibt, gibt es auch keine Majorana-Spin-Flips.

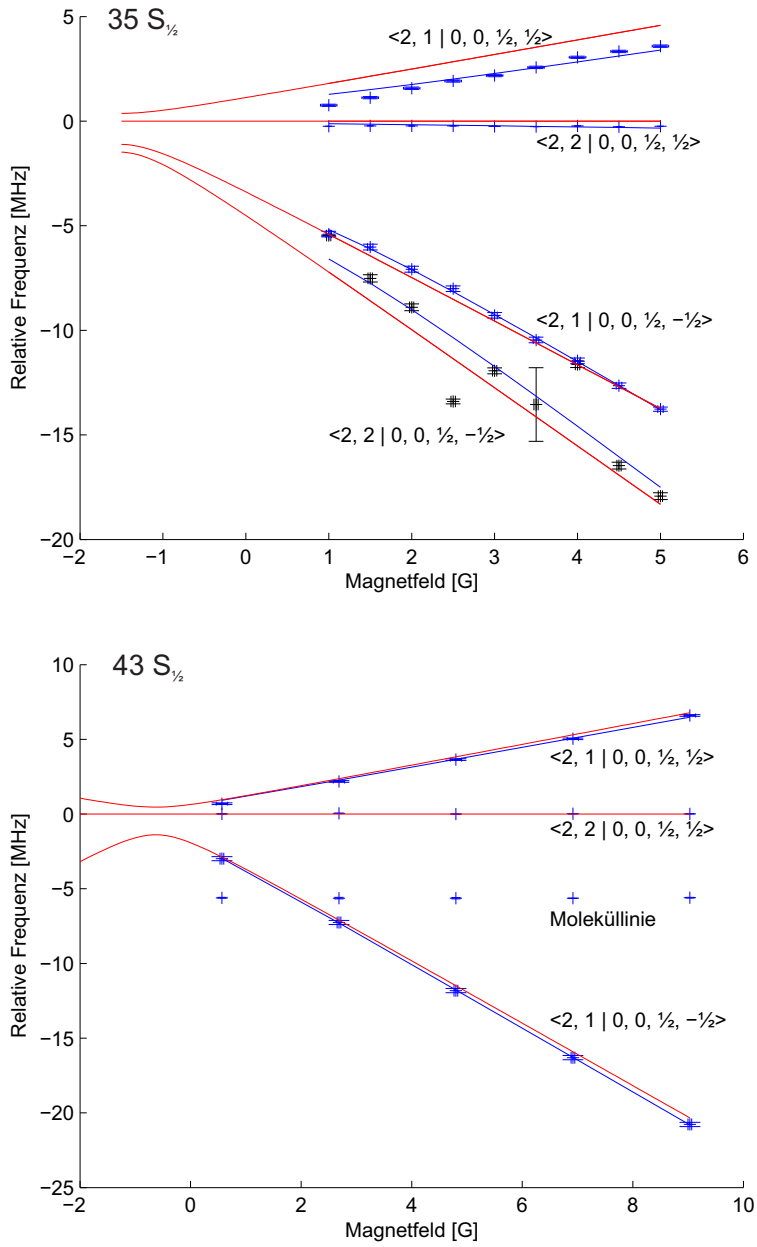

Abbildung 6.2: Zeemanaufspaltung des 43 $S_{\frac{1}{2}}$ (*unten*) und des 35 $S_{\frac{1}{2}}$ (*oben*) Zustandes. Die *blauen* Kurven sind die angepassten Kurven und die *roten* Kurven sind die theoretischen Werte. Bei den Messpunkten der magnetfeldunabhängigen Zeemanlinie wurde der Fehler des Magnetfeldes weggelassen, weil der Fehler des Magnetfeldes antiproportional zur Steigung ist und damit unendlich groß wird. Die Aufspaltung der Zeemanlinien bei Magnetfeld $B = 0T$ und das nichtlineare Verhalten bei kleinen Magnetfeldern wird durch ein Offset-Magnetfeld verursacht. Darauf wird auf S.76 näher eingegangen. *Oben:* Bei den Messdaten der untersten Zeemanlinie wurden die Messpunkte *schwarz* dargestellt, um sie besser zu erkennen, denn sie streuen sehr stark. *Unten:* Die untere magnetfeldunabhängige Zeemanlinie stammt von einem Molekülzustand.

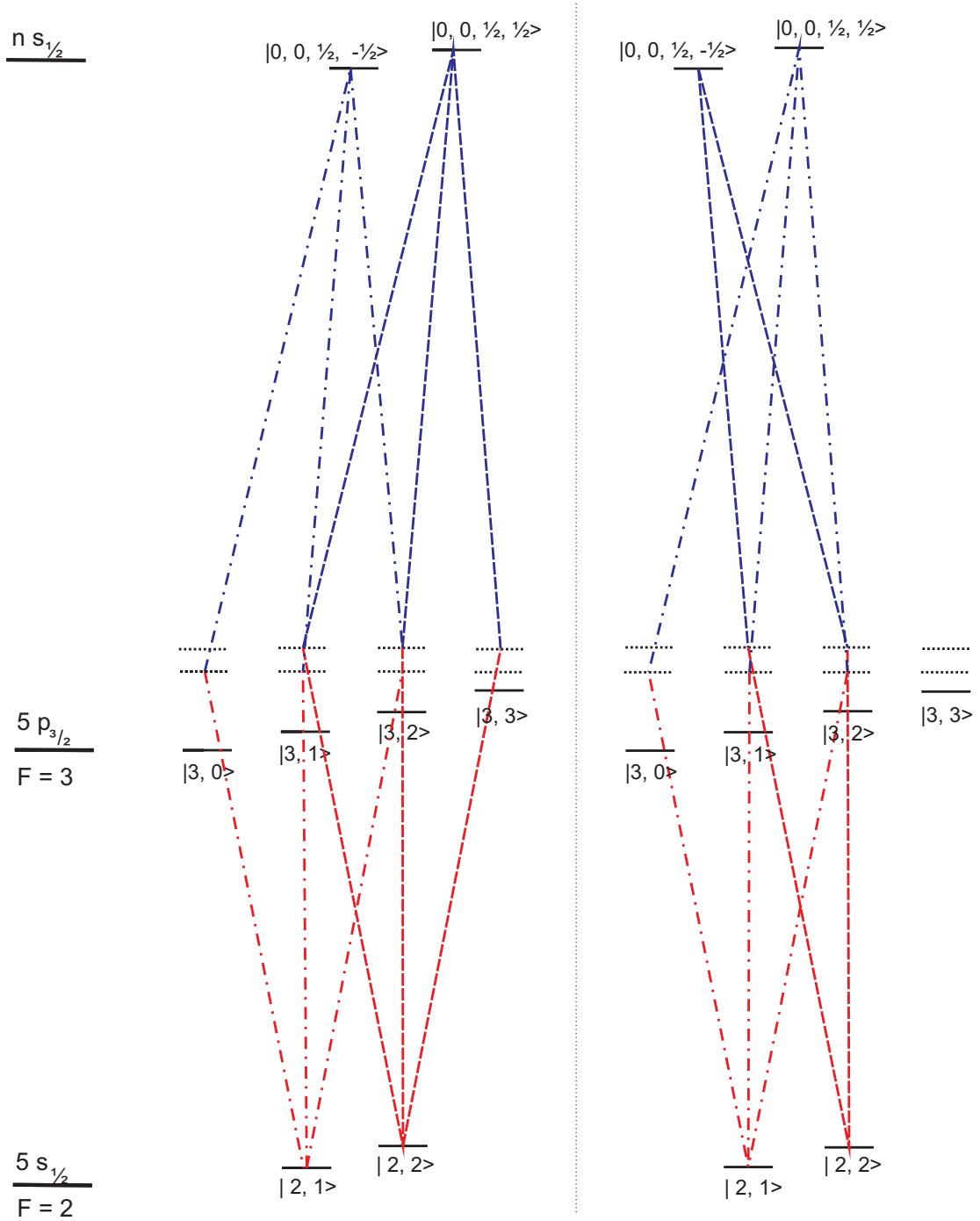

Abbildung 6.3: Mögliche Übergänge für $\langle 2,2|0,0,\frac{1}{2},\pm\frac{1}{2}\rangle$ und $\langle 2,1|0,0,\frac{1}{2},\pm\frac{1}{2}\rangle$. Es handelt sich somit um Übergänge in den Rydbergzustand n $S_{\frac{1}{2}}$, wobei davon ausgegangen wurde, dass bei der Anregung sich der Kernspin nicht geändert hat. $--$ kennzeichnet die Übergänge aus dem Zustand $|2,2\rangle$ und $-\cdot$ kennzeichnet die aus dem Zustand $|2,1\rangle$. Die gestrichelten Linien im Bereich des Zwischenniveaus geben die Verstimmung δ bezüglich von diesem an, wobei die untere Linie die Verstimmung δ des Zustandes $|2,1\rangle$ und die obere Linie die des $|2,2\rangle$ angibt.

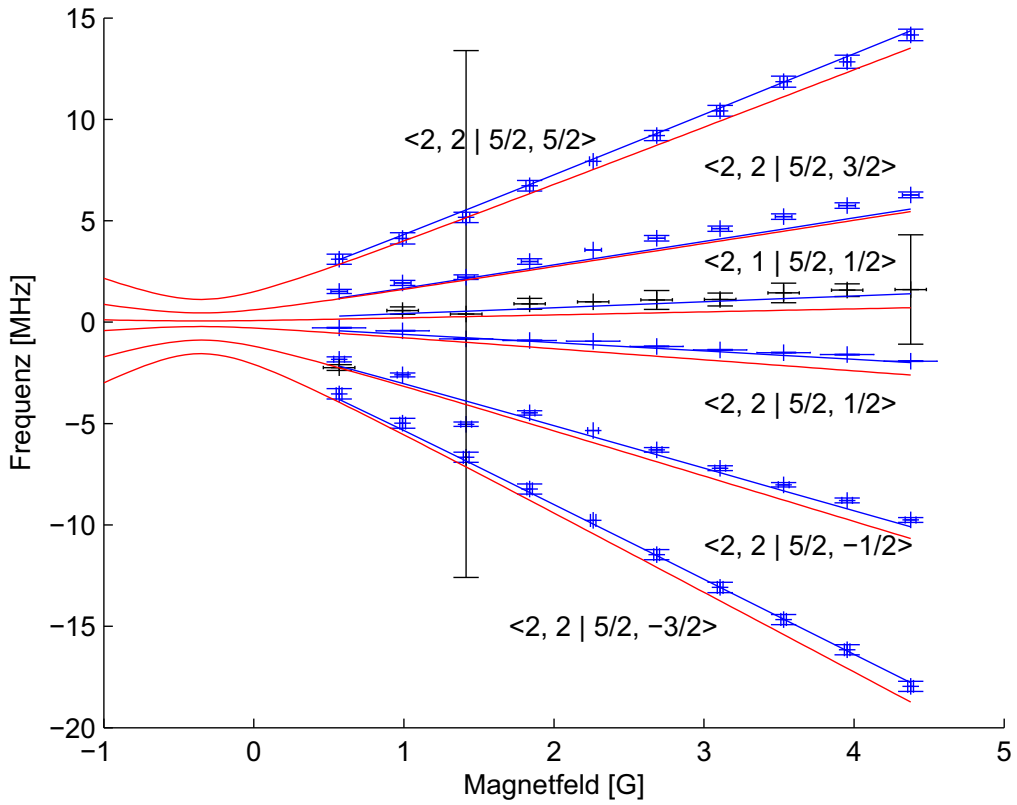

Abbildung 6.4: Zeemanaufspaltung des 46 $D_{\frac{5}{2}}$ Zustandes.
Die *blauen* Kurven sind die angepassten Kurven und die *roten* Kurven sind die theoretischen Werte. Die Aufspaltung der Zeemanlinien bei Magnetfeld $B = 0T$ und das nichtlinieare Verhalten bei kleinen Magnetfeldern wird durch ein Offset-Magnetfeld verursacht. Darauf wird auf S.76 näher eingegangen. Bei den Messdaten einer der Zeemanlinien wurden die Messpunkte *schwarz* dargestellt, um die Fehlerbalken besser zuordnen zu können. Bei den Messpunkten der magnetfeldunabhängigen Zeemanlinie wurde der Fehler des Magnetfeldes weggelassen.

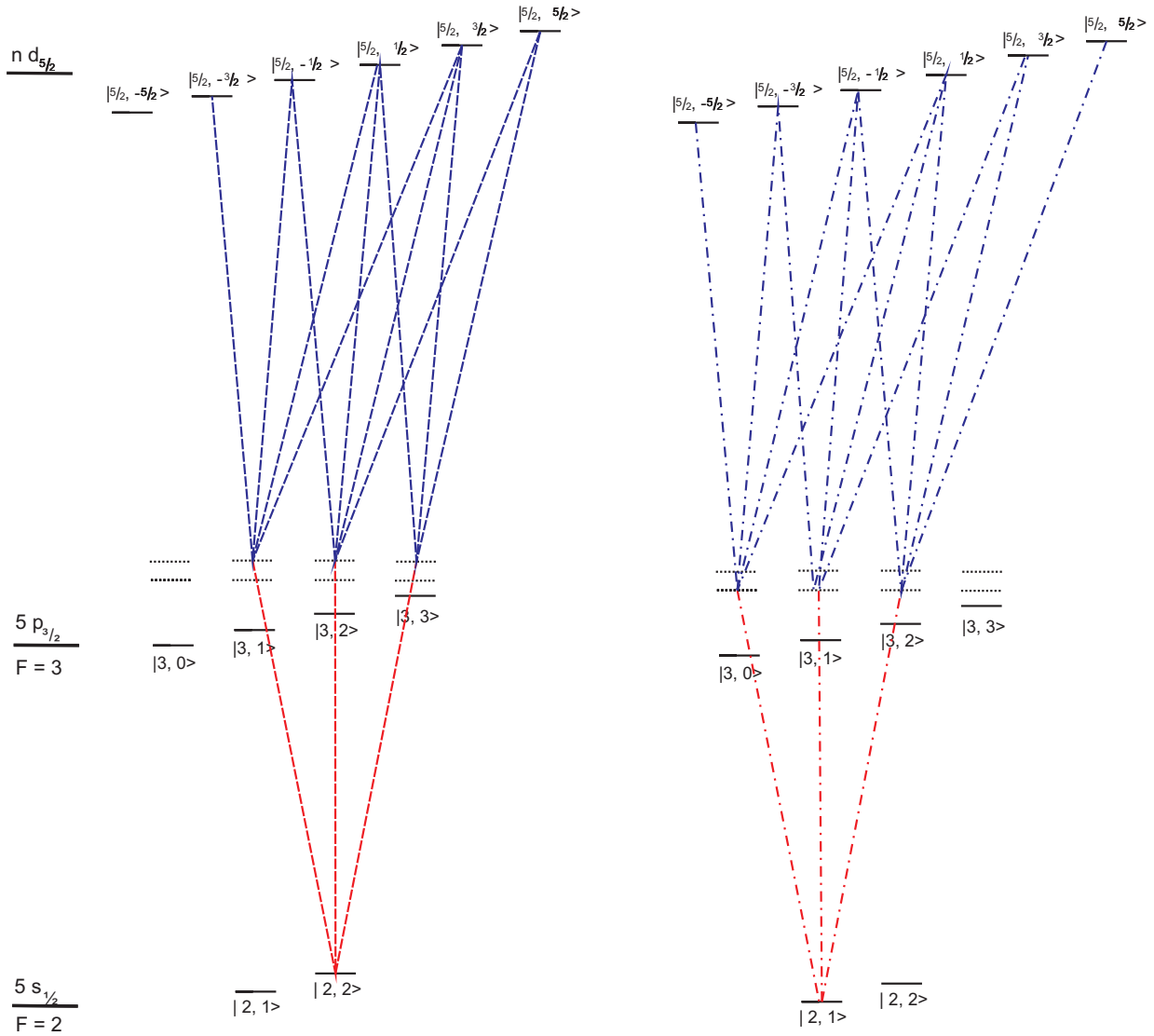

Abbildung 6.5: Mögliche Übergänge aus dem Zustand $|2,2\rangle$ (*links*) und dem Zustand $|2,1\rangle$ (*rechts*) in den Zustand n $\mathrm{D}_{\frac{5}{2}}$. $--$ kennzeichnet die Übergänge aus dem Zustand $|2,2\rangle$ und $-\cdot$ kennzeichnet die aus dem Zustand $|2,1\rangle$. Die gestrichelten Linien im Bereich des Zwischenniveaus geben die Verstimmung δ bezüglich von diesem an, wobei die untere Linie die Verstimmung δ des Zustandes $|2,1\rangle$ und die obere Linie die des $|2,2\rangle$ angibt.

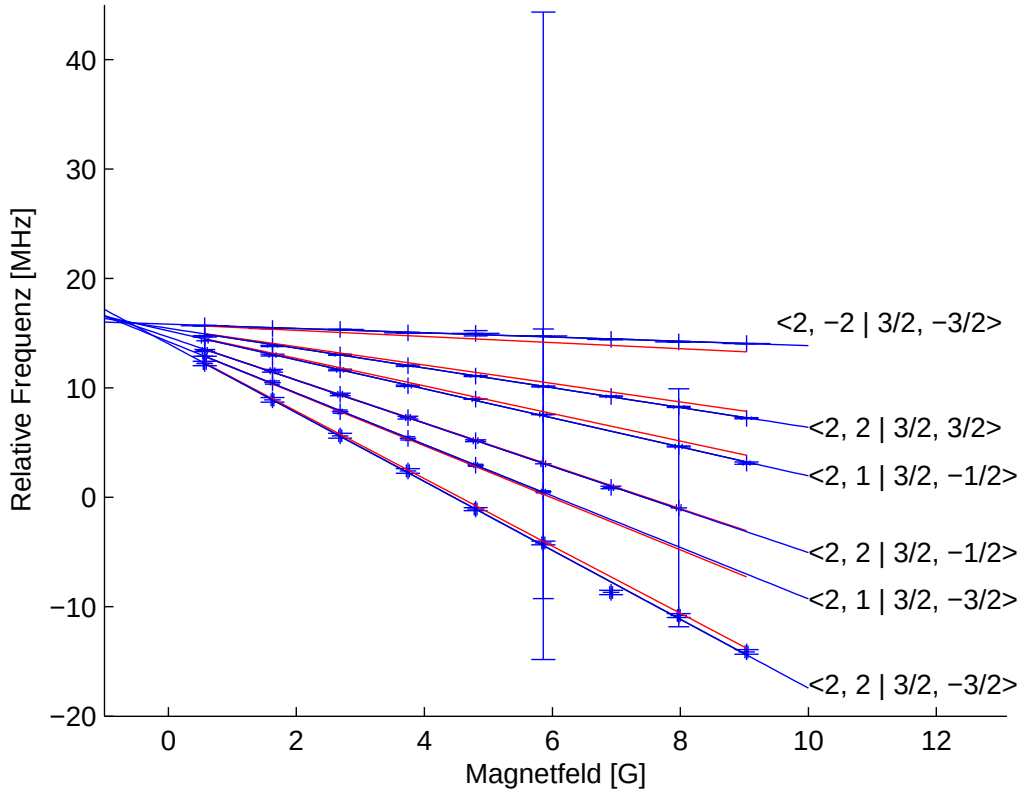

Abbildung 6.6: Zeemanaufspaltung des 46 $D_{\frac{3}{2}}$ Zustandes.
Die *blauen* Kurven sind die angepassten Kurven und die *roten* Kurven sind die theoretischen Werte. An manchen Spektrallinien hat die Gauß-Anpassung nicht funktioniert, weil das Signal zu schwach war. Deshalb wurden sie in diesem Schaubild weggelassen.

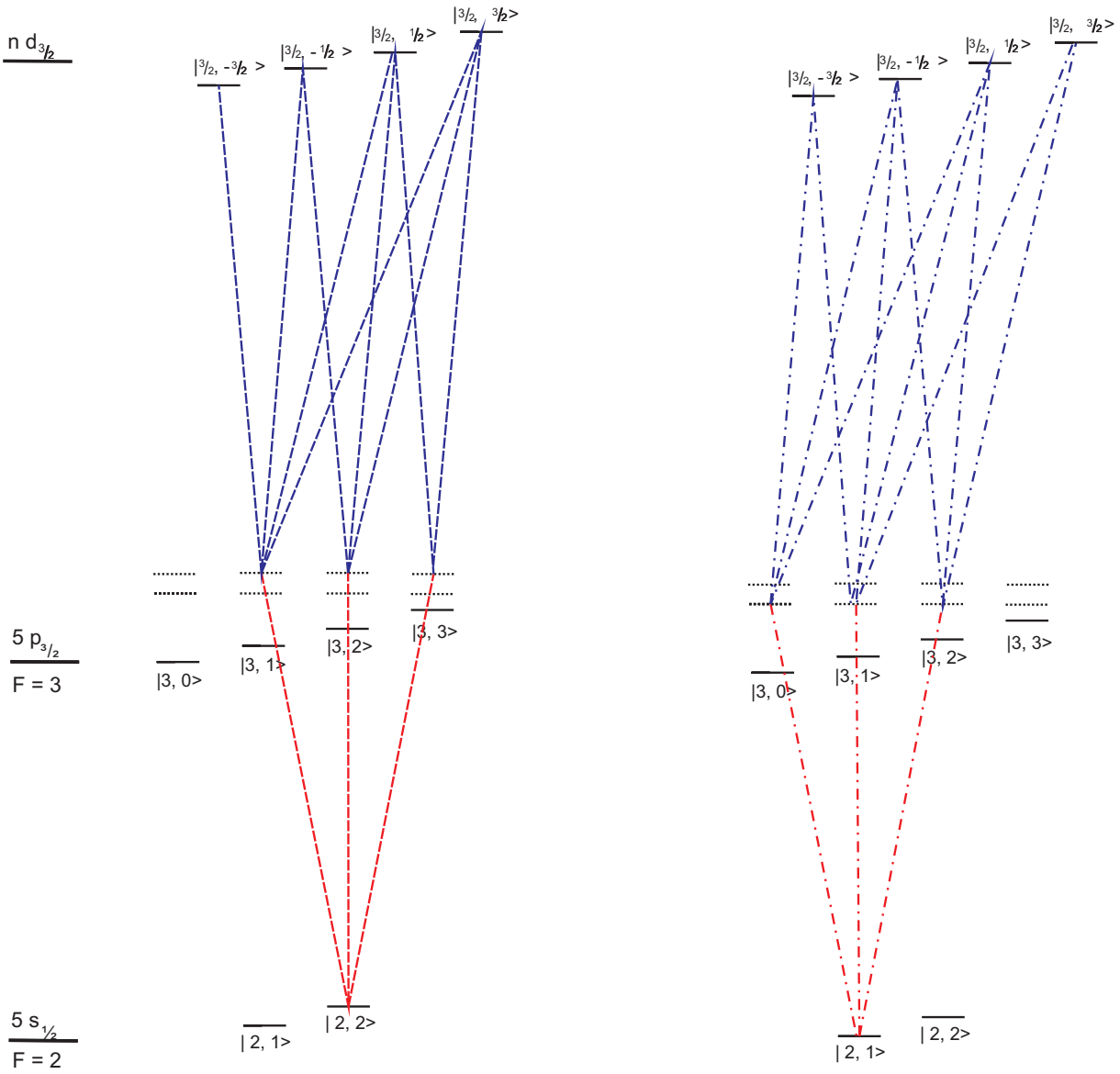

Abbildung 6.7: Mögliche Übergänge aus dem Zustand $|2,2\rangle$ (*links*) und dem Zustand $|2,1\rangle$ (*rechts*) in den Zustand n $\mathrm{D}_{\frac{3}{2}}$. $--$ kennzeichnet die Übergänge aus dem Zustand $|2,2\rangle$ und $-\cdot$ kennzeichnet die aus dem Zustand $|2,1\rangle$. Die gestrichelten Linien im Bereich des Zwischenniveaus geben die Verstimmung δ bezüglich von diesem an, wobei die untere Linie die Verstimmung δ des Zustandes $|2,1\rangle$ und die obere Linie die des $|2,2\rangle$ angibt.

Als relativer Fehler für die Frequenz ν in den $\nu(B)$-Schaubildern wurde ungefähr 100 kHz angenommen. Das entspricht der Größenordnung der Dopplerbreite und der Breite des Lasers. Dieser Fehler wurde durch die Fehlerfortpflanzung berücksichtigt und es wurde dazu noch die Standardabweichung der ermittelten Frequenz ν addiert. Die Standardabweichung wurde bei der Anpassung der Gauß-Kurven an die Messwerte mit dem MATLAB-Programm berechnet. Wie bereits erwähnt wurde, wird das Magnetfeld durch das Anlegen von Strom an die Offsetspulen erzeugt. Dabei kann es zu Spannungsschwankungen und damit Stromschwankungen kommen, die sich direkt auf das Magnetfeld auswirken. Das wurde mit einem Fehler von 0,05 G berücksichtigt.
Die Grundzustandsatome befinden sich in dem Zustand $|2,1\rangle$ oder $|2,2\rangle$, weil der Grundzustand nicht vollständig spinpolarisiert ist. Das Valenzelektron befindet sich in dem Zustand 5 $S_{\frac{1}{2}}$. In dem Rydbergzustand spielt die Hyperfeinstruktur keine Rolle mehr, im Gegensatz zum Grundzustand, da das magnetische Moment des Kerns aufgrund des räumlichen Abstands nicht an das Magnetfeld des Elektrons koppelt. Deshalb wird der Rydberzustand in der J-Basis behandelt und der Grundzustand und der Zwischenzustand in der F-Basis. Mit Gl.(1.2.20) ergibt sich

$$\Delta\nu = \frac{m_J g_J B\mu_B - m_F g_F B\mu_B}{h}. \tag{6.1.3}$$

$$\Rightarrow \quad \frac{\Delta\nu}{\Delta B} = (m_J g_J - m_F g_F)\,\frac{\mu_B}{h} \tag{6.1.4}$$

Man erkennt ein lineares Verhalten der Spektrallinien im Magnetfeld und dass es eine vollständige Entartung der magnetischen Unterzustände bei einem nicht vorhandenen Magnetfeld gibt. Da dies nicht der Fall war, muss es ein Offset-Magnetfeld in der Falle geben. Mit der Berücksichtigung eines Offset-Magnetfeldes B_O wird aus Gl.(6.1.4)

$$\Delta\nu = \frac{m_J g_J \mu_B - m_F g_F \mu_B}{h} \cdot \sqrt{(B + B_O^{\parallel})^2 + (B_O^{\perp})^2}. \tag{6.1.5}$$

Das Offset-Magnetfeld wurde in zwei Komponenten aufgeteilt. In eine die senkrecht ($B_O^{\perp}$) und eine die parallel ($B_O^{\parallel}$) zum angelegten Magnetfeld steht. Die Messdaten wurden an die Formel (6.1.5) durch lineare Regression angepasst. Dabei wurden $B_O^{\parallel}$, $B_O^{\perp}$ und die Steigung nicht an jede einzelne Kurve einer Messreihe angepasst. Denn das hätte zur Folge, dass man für jede Kurve jeweils ein spezifisches $B_O^{\parallel}$ und $B_O^{\perp}$ erhält. Aus diesen Werten hätte man dann den Mittelwert bilden müssen. Stattdessen wurde bei der Anpassung der Messreihen die Minimierung des quadratischen Fehlers so durchgeführt, dass $B_O^{\parallel}$ und $B_O^{\perp}$ bei allen Messreihen gleich ist. So dass man für alle Messreihen ein gemeinsames Offset-Magnetfeld erhält.
Im Folgenden wird die Steigung

$$(m_J g_J - m_F g_F)\frac{\mu_B}{h} \tag{6.1.6}$$

ohne den konstanten Term $\frac{\mu_B}{h}$ bestimmt. Diese ist unabhängig vom Verhalten des Zwischenzustandes. Sie hängt nur von den Landé-Faktoren und den magnetischen Zahlen des Grundzustandes und des Rydbergzustandes ab. Denn nur diese beiden Größen bestimmen das Verhalten eines Zustandes im Magnetfeld. Mit der Gl.(1.2.19) werden die Landé-Faktoren für Zustände berechnet, deren Eigenbasis die J-Basis ist, also die Rydbergzustände. Die berechneten Werte stehen in der Tabelle 6.1.
Die Landé-Faktoren in der F-Basis werden mit

Zustand	Landé-Faktor
$S_{1/2}$	2
$D_{5/2}$	$\frac{6}{5}$
$D_{3/2}$	$\frac{4}{5}$

Tabelle 6.1: Landé-Faktoren der Rydbergzustände

$$g_F = g_J \frac{F(F+1) - I(I+1) + J(J+1)}{2F(F+1)} \tag{6.1.7}$$

[37] berechnet. Für den Grundzustand mit $F = 2$ ergibt sich für den Landé-Faktor der Wert $g_F = \frac{1}{2}$.
In der Tabelle 6.2 stehen die Theoriewerte aller möglichen Steigungen, wobei in der ersten Spalte die Steigungen der Übergänge des Zustandes $|2,2\rangle$ und in der zweiten Spalte die Steigungen der Übergänge des Zustandes $|2,1\rangle$ stehen. In der Tabelle 6.3 wurden

	$m_J g_J - m_F g_F$	
m_J	$m_F = 2$	$m_F = 1$
1/2	0	0,5
-1/2	-2	-1,5
3/2	0,2	0,7
1/2	-0,6	-0,1
-1/2	-1,4	-0,9
-3/2	-2,2	-1,7
5/2	2	2,5
3/2	0,8	1,3
1/2	-0,4	0,1
-1/2	-1,6	-1,1
-3/2	-2,8	-2,3
-5/2	-4	-3,5

Tabelle 6.2: Theoretische Werte für das Verhalten der Spektrallinien im Magnetfeld. m_J ist die magnetische Quantenzahl des Endzustandes und g_J deren Landé-Faktor, der aus der Tabelle 1.2.19 entnommen werden kann. m_F ist die magnetische Quantenzahl des Anfangszustandes und der Wert des Landé-Faktors g_F beträgt $\frac{1}{2}$.

die theoretischen Steigungen mit den gemessenen verglichen. Die theoretischen Werte stimmen mit den gemessenen gut überein. Das sieht man am besten in den $\nu(B)$-Schaubildern (Abb.(6.2) oben und unten, Abb.(6.4) und Abb.(6.6)).
Wie bereits erwähnt, wurde das Offset-Magnetfeld B_O bestimmt. Dessen Komponenten in Richtung des angelegten Magnetfeldes B und senkrecht dazu stehen in Tabelle 6.4. Das Offset-Magnetfeld B_O ist tagesabhängig und liegt etwa bei 1 G.

Die Messungen stimmen mit den Theoriewerten sehr gut überein. Es wurde auch keine Abweichung des linearen Verhaltens bei den Rydbergatomen gemessen. Leider ist das Offset-Magnetfeld, das während den Messungen auftritt, relativ groß. Da es tagesab-

Rydberg-zustand	magnetische QZ des Anfangszustands m_F	magnetische QZ des Endzustands m_J	Messung	Theorie
35 $S_{\frac{1}{2}}$	2	-$\frac{1}{2}$	-1,94 $^{+0,04}_{-0,12}$	-2
	1	-$\frac{1}{2}$	-1,52 $^{+0,02}_{-0,09}$	-1,5
	2	$\frac{1}{2}$	-0,04 $\pm 0,01$	0
	1	$\frac{1}{2}$	0,38$^{+0,02}_{-0,04}$	0,5
43 $S_{\frac{1}{2}}$	1	-$\frac{1}{2}$	-1,53 $\pm 0,05$	-1,5
	1	$\frac{1}{2}$	0,48 $\pm 0,01$	0,5
	2	$\frac{1}{2}$	0 $\pm 0,00$	0
			0 $\pm 0,00$	
46 $D_{\frac{5}{2}}$	2	-$\frac{3}{2}$	-2,66 $^{+0,01}_{-0,00}$	-2,8
	2	-$\frac{1}{2}$	-1,51$^{+0,00}_{-0,01}$	-1,6
	2	$\frac{1}{2}$	-0,29 $\pm 0,02$	-0,4
	1	$\frac{1}{2}$	0,21 $^{+0,00}_{-0,02}$	0,1
	2	$\frac{3}{2}$	0,83 $\pm 0,00$	0,8
	2	$\frac{5}{2}$	2,15 $^{+0,01}_{-0,00}$	2
46 $D_{\frac{3}{2}}$	2	$-\frac{3}{2}$	-2,25 $\pm 0,00$	-2,2
	1	$-\frac{3}{2}$	-1,68 $^{+0,00}_{-0,11}$	-1,7
	1	$-\frac{1}{2}$	-1,41 $\pm 0,00$	-1,4
	1	$-\frac{1}{2}$	-0,95 $\pm 0,00$	-0,9
	2	$\frac{1}{2}$	-0,65 $\pm 0,00$	-0,6
	-2	$-\frac{3}{2}$	-0,14 $\pm 0,05$	-0,2

Tabelle 6.3: Vergleich von der gemessenen und der theoretischen Steigung in Atomeinheiten der Zeemanlinien. Bei dem Zustand 43 $S_{\frac{1}{2}}$ gehört der vierte Eintrag zu einer Moleküllinie. Dieser wurde in die Tabelle nur der Vollständigkeit halber aufgenommen.

Zustand	$B_O^{\perp}$/G	$B_O^{\parallel}$/G
35 $S_{\frac{1}{2}}$	$0{,}17^{+0{,}21}_{-0{,}41}$	$1{,}28^{+0{,}05}_{-0{,}11}$
43 $S_{\frac{1}{2}}$	$0{,}63^{+0{,}07}_{-0{,}00}$	$0{,}66^{+0{,}51}_{-0{,}14}$
46 $D_{\frac{3}{2}}$	0	0
46 $D_{\frac{5}{2}}$	$0{,}35^{+0{,}05}_{-0{,}38}$	$0{,}39^{+0{,}02}_{-0{,}08}$

Tabelle 6.4: Die ermittelten Offset-Magnetfelder der einzelnen Messreihen.

hängig schwankt, kann es nicht durch das Anlegen eines entsprechenden Magnetfeldes kompensiert werden.

6.2 Rydberg-Moleküle im Magnetfeld

Die Messungen und die Auswertung der Magnetfeldabhängigkeit der Moleküle im Zustand $^3\Sigma_1$(35s - 5s) wurde genauso durchgeführt, wie die zur Magnetfeldabhängigkeit der Atome (s. Kapitel 6.1). Die aufgenommenen Spektren der Moleküle sind die vier letzten Spektren im Anhang A.
Die theoretische Behandlung erfolgt wie im Kap.6.1 mit dem Unterschied, dass sich der Anfangszustand bei den Molekülen aus zwei Atomen zusammensetzt. Die Summe der magnetischen Quantenzahlen $m_F^{\text{Atom 1}}$ und $m_F^{\text{Atom 2}}$ der beiden Atome wird als m_{Ges} bezeichnet. Das Rydberg-Molekül besteht aus einem Grundzustandsatom, das einen Kernspin $\underline{I}^{\text{GZ}}$ und einen Elektronenspin $\underline{S}^{\text{GZ}}$ besitzt, und einem Rydbergatom, dessen Valenzelektron den Spin $\underline{S}^{\text{R}}$ besitzt. Der Kernspin des Rydbergatoms wird außer Acht gelassen, weil dieser am Ort der Valenzelektronen vernachlässigbar klein ist. Wie in Kap.5.3 erwähnt, koppeln die beiden Spins der Valenzelektronen und der Kernspin des Grundzustandsatoms zum Gesamtspin $\underline{\Xi}$ des Moleküls. Dessen magnetische Quantenzahl lautet m_Ξ. Die Zeemanlinien der Rydberg-Moleküle zeigen dasselbe Verhalten wie die Zeemanlinien der Atome:

$$\Delta\nu = \frac{m_\Xi g_\Xi \mu_B - m_{\text{Ges}}\, g_F \mu_B}{h} \cdot \sqrt{(B + B_O^{\parallel})^2 + (B_O^{\perp})^2}. \tag{6.2.1}$$

Für den Landé-Faktor des Grundzustandsatoms gilt $g_F = \frac{1}{2}$, wie sich aus den Messwerten ergebenden $\nu(B)$-Schaubilder zeigt Abb.(6.8). Im Folgenden werden die Ergebnisse aus dem oberen Teil der Abb.(6.8) als „grob“ bezeichnet und die Ergebnisse aus dem unteren Teil der Abb.(6.8) als „fein“. Das Energietermschema der Übergänge ist in der Abb.(6.9) dargestellt.
Wie in Kap.5.2 erwähnt, hängt es von der Streulänge a_0 ab, ob Rydberg-Moleküle gebildet werden. Nur wenn die Spins der Valenzelektronen ein Triplett bilden, ergibt sich eine Streulänge a_0, bei der sich Rydberg-Moleküle bilden können. Das legt den Schluß nahe, dass die Spins der Valenzelektronen zu einem Gesamtspin koppeln. Dieser koppelt dann an den Kernspin des Grundzustandsatoms. Die andere Möglichkeit, wie die Drehimpulse koppeln können, wäre, dass der Gesamtdrehimpuls F des Grundzustandsatoms an den Spin des Valenzelektrons des Rydbergatoms koppelt.
Der Gesamtspin Ω beträgt 1 und der Kernspin I des Grundzustandsatoms beträgt $\frac{3}{2}$. Die beiden Spins können zu $\Xi = \frac{5}{2}, \frac{3}{2}, \frac{1}{2}$ koppeln. Wobei diese Zustände nicht entartet sind.
Im folgenden Abschnitt wird die Größe der Hyperfeinaufspaltung beim Rydberg-Molekül abgeschätzt. Das Valenzelektron des Grundzustandes befindet sich im S-Zustand, deshalb ist seine Aufenthaltswahrscheinlichkeit in Kernnähe relativ groß. Wenn sich das Rydbergelektron in der Nähe des Grundzustandsatoms befindet, dann ist sein Aufenthaltswahrscheinlichkeit in der Nähe des Kernes auch nicht vernachlässigbar klein. Aber da es sich nicht nur in der Nähe des Grundzustandsatoms befindet, wird die Wechselwirkung zwischen dem Rydbergelektron und dem Magnetfeld des Kernspins abgeschwächt. Aber trotz dieser Abschwächung wechselwirkt das Rydbergelektron relativ stark mit dem Magnetfeld, das durch den Kernspin des Grundzustandsatoms verursacht wird.

Die Hyperfeinaufspaltung beim Rydberg-Molekül ist wahrscheinlich etwas kleiner als die beim Rydbergatom. Die Hyperfeinaufspaltung beim ^{87}Rb im 5 $^2S_{\frac{1}{2}}$-Zustand beträgt 6,8 GHz [37]. Deshalb müsste die Hyperfeinaufspaltung beim Rydberg-Molekül zwischen einigen hundert MHz und wenigen GHz liegen.
Nur bei einem Gesamtdrehimpuls von $\Xi = \frac{5}{2}$ erhält man alle drei Steigungen, die auch gemessen wurden. Der Landé-Faktor des Moleküls wurde mit

$$g_\Xi = g_\Omega \frac{\Xi(\Xi+1) - I(I+1) + \Omega(\Omega+1)}{2\Xi(\Xi+1)} \tag{6.2.2}$$

aus [37] berechnet. Der Landé-Faktor des Gesamtspins g_Ω wurde mit der Gl.(1.2.19) berechnet. Da nur der Spin einen Betrag zum Gesamtdrehimpuls Ω liefert, muss $g_\Omega = 2$ sein. Mit diesem Wert ergibt sich für den Landé-Faktor des Gesamtdrehimpulses des Moleküls $g_\Xi = \frac{4}{5}$. In der Tabelle 6.5 sind alle theoretisch möglichen Werte der Steigungen der Zeemanlinien angegeben. Die gemessenen und die entsprechenden theoretischen Steigungen sind in der Tabelle 6.6 aufgeführt. In beiden Tabellen wurde der konstante Faktor $\frac{\mu_B}{h}$ weggelassen. Wie man in Abb.(6.8) sieht, stimmen die gemessenen und die theoretischen Steigungen relativ gut überein.

	$m_\Xi = \frac{5}{2}$	$m_\Xi = \frac{3}{2}$	$m_\Xi = \frac{1}{2}$	$m_\Xi = -\frac{1}{2}$	$m_\Xi = -\frac{3}{2}$	$m_\Xi = -\frac{5}{2}$
$m_F^{\text{Atom 1}} = 2, m_F^{\text{Atom 2}} = 2$	0	$-0,8$	$-1,6$	$-2,4$	$-3,2$	-4
$m_F^{\text{Atom 1}} = 2, m_F^{\text{Atom 2}} = 1$	0,5	$-0,3$	$-1,1$	$-1,9$	$-2,7$	$-3,5$
$m_F^{\text{Atom 1}} = 1, m_F^{\text{Atom 2}} = 1$	1	$0,2$	$-0,6$	$-1,4$	$-2,2$	-3

Tabelle 6.5: Die Steigungen der Zeemanlinien des Moleküls im Magnetfeld in Atomeinheiten. Die Steigungen, die gemessen wurden, sind *rot* gekennzeichnet.

Anfangszustand	Endzustand	Messung (grob)	Messung (fein)	Theorie
$\lvert 2,1\rangle \lvert 2,1\rangle$	$\lvert \frac{5}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	$-0,7 \pm 0,01$	$-0,64^{+0,05}_{-0,08}$	$-0,6$
$\lvert 2,2\rangle \lvert 2,2\rangle$	$\lvert \frac{5}{2}, \frac{5}{2}\rangle$	$0,00^{+0,09}_{-0,07}$	$0,00 \pm 0,00$	0
$\lvert 2,2\rangle \lvert 2,1\rangle$	$\lvert \frac{5}{2}, \frac{5}{2}\rangle$	$0,57^{+0,02}_{-0,07}$	–	$0,5$

Tabelle 6.6: Vergleich der gemessenen und der theoretischen Steigung der Zeemanlinien beim Molekül.

	$B_O^\perp$/G	$B_O^\parallel$/G
grob	$0,89^{+0,21}_{-0,41}$	$0,85^{+0,05}_{-0,11}$
fein	$0,54^{+0,07}_{-0,00}$	$0,44^{+0,51}_{-0,14}$

Tabelle 6.7: Die ermittelten Offset-Magnetfelder der einzelnen Messreihen.

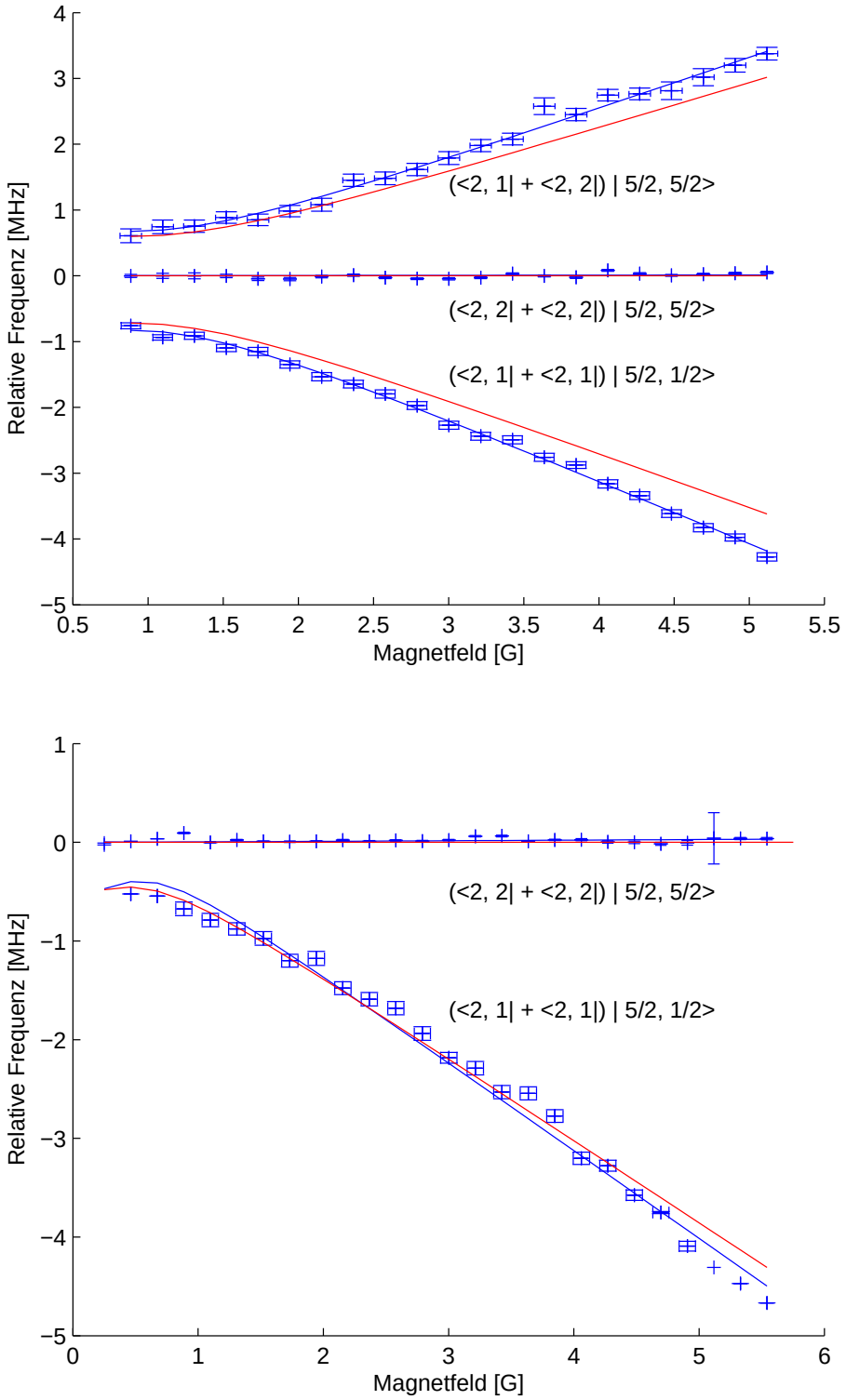

Abbildung 6.8: Zeemanaufspaltung des $^3\Sigma_1$(35s - 5s) Zustandes.
Die *untere* Messreihe wurde bei einem geringeren Magnetfeld am Anfang und mit höherer Auflösung aufgenommen als die *obere* Messreihe. Bei den Messpunkten der magnetfeldunabhängigen Zeemanlinie wurde der Fehler des Magnetfeldes weggelassen, weil der Fehler des Magnetfeldes antiproportional zur Steigung ist und damit unendlich groß wird.

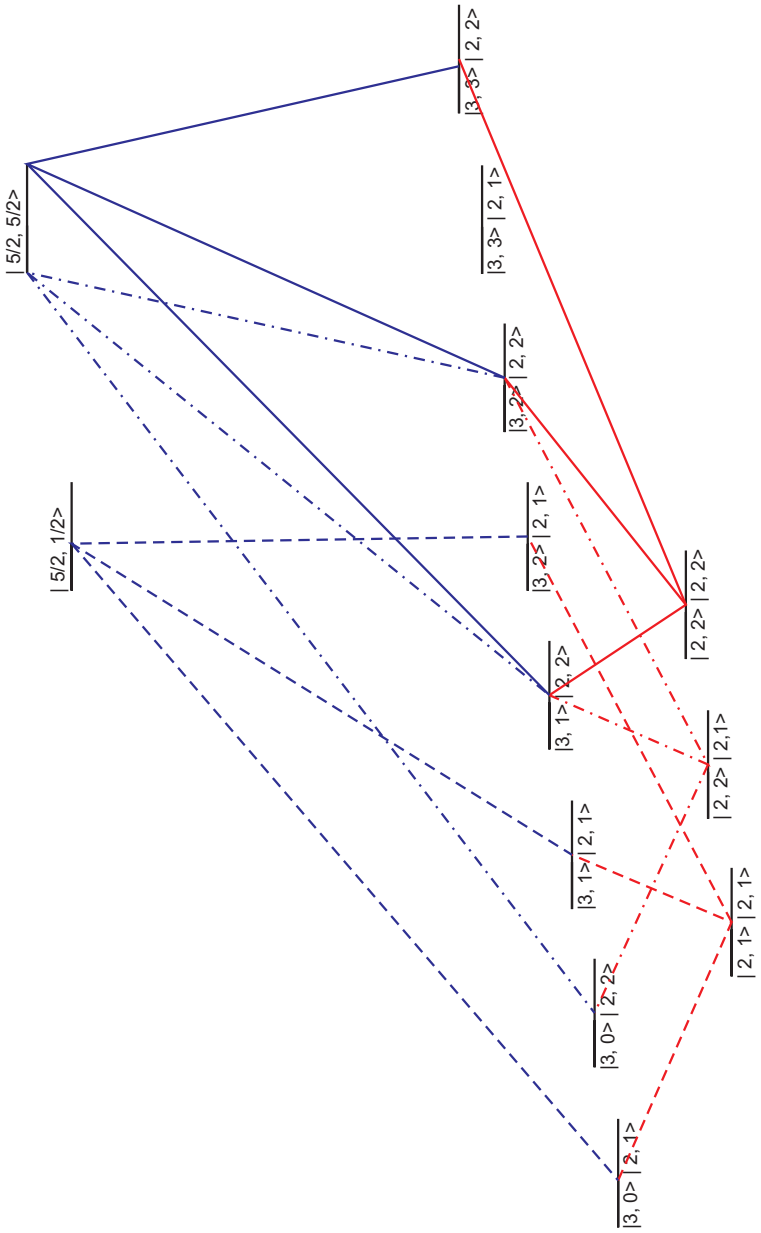

Abbildung 6.9: Mögliche Übergänge für $\langle 2,2|\langle 2,2|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\rangle$, $\langle 2,2|\langle 2,1|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\rangle$ und $\langle 2,1|\langle 2,1|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\rangle$. Es wurde davon ausgegangen, dass bei der Anregung der Kernspin I sich nicht geändert hat. Der Übersichtlichkeit halber wurde die Verstimmung außer Acht gelassen und im Endzustand wurden nur die Zustände abgebildet, in die auch angeregt wurde.

Bei den Messungen an den Molekülen erkennt man das nichtlineare Verhalten viel deutlicher als bei den Messungen an den Atomen. Das liegt daran, dass bei den Molekülen in dem Bereich, in dem die Krümmung der Zeemanlinie am stärksten ist, mit einer viel größeren Auflösung gemessen wurde als bei den Atomen. In der Tabelle 6.7 steht das ermittelte Offset-Magnetfeld. Es bewegt sich in demselben Bereich wie bei den Messungen an den Atomen (vgl. Tab. 6.4).
Als nächstes wird darauf eingegangen, wieso die Anregung in die Zustände $\left|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\right\rangle$ und $\left|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$ und nicht z.B. in den Zustand $\left|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\right\rangle$ erfolgt. Dazu wird das Verhalten des Winkelanteils der Dipolmatrixelemente betrachtet, weil nur dieser bestimmt, ob es einen Übergang gibt oder nicht. Die Wechselwirkung W zwischen den Atomen und dem Anregungslicht lautet

$$W = \cos\theta + (e^{i\varphi} + e^{-i\varphi})\sin\theta, \tag{6.2.3}$$

wobei nur der Teil der Wechselwirkung angegeben wurde, der auf den Winkelanteil des Dipolmatrixelements wirkt. Dieser umfasst π-, σ^+- und σ^--Licht und wirkt nur auf das Atom, das in den Rydbergzustand angeregt wird.
Im Folgendem wird angenommen, dass die Anregung mithilfe des Zwischenzustandes $|3,2\rangle$ erfolgt. Für die anderen Zwischenniveaus erfolgt die Rechnung analog. Der Übersichtlichkeit halber und des Verständnis wegen werden die beteiligten Zustände zuerst in der LS-Basis dargestellt, wobei die Clebsch-Gordon-Koeffizienten weggelassen wurden. Denn sie haben keinen Einfluss darauf, ob ein Übergang überhaupt möglich ist.

$$|2,1\rangle = \underbrace{\left|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle}_{\text{Kernspin}} \underbrace{\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle}_{\text{Bahndrehimpuls, Spin}} + \underbrace{\left|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle}_{\text{Kernspin}} \underbrace{\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle}_{\text{Bahndrehimpuls, Spin}} \tag{6.2.4}$$

$$|2,2\rangle = \left|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle \left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle \tag{6.2.5}$$

$$|3,2\rangle = \left|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle \left|1,1,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle + \left|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle \left|1,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle + \left|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle \left|1,1,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle \tag{6.2.6}$$

$$\left|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\right\rangle = \underbrace{\left|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle \left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle}_{\text{Grundzustandsatom}} \underbrace{\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle}_{\text{Rydbergatom}} \tag{6.2.7}$$

In Gl.(6.2.7) wurde der Kernspin des Rydbergatoms weggelassen, weil dieser am Ort des Grundzustandsatoms vernachlässigbar klein ist.
Im Folgenden stehen die Kets und Brakets des Kernspins vor denen des Bahndrehimpulses und des Elektronenspins. Die Kets und Brakets des Atoms, das im Molekül im Grundzustand bleibt, stehen vor denen des Atoms, das in den Rydbergzustand angeregt wird.

$$
\begin{aligned}
\langle 2,2|\,\langle 2,2|\,W\left|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\right\rangle &= \langle 2,2|\,\langle 2,2|\,W\,|3,2\rangle\,\langle 3,2|\,W\left|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\right\rangle \\
&= \Bigg[\left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right|W\left(\left|1,1,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle+\left|1,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\right) \\
&\quad+\cancel{\left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right|W\left|1,1,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle}\Bigg] \text{ wegen Kernspinflip} \\
&\quad\cdot\left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right|\cdot\rangle \\
&\quad\cdot\left[\left\langle 1,1,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right|+\left\langle 1,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right|\right]W\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle. \qquad (6.2.8)
\end{aligned}
$$

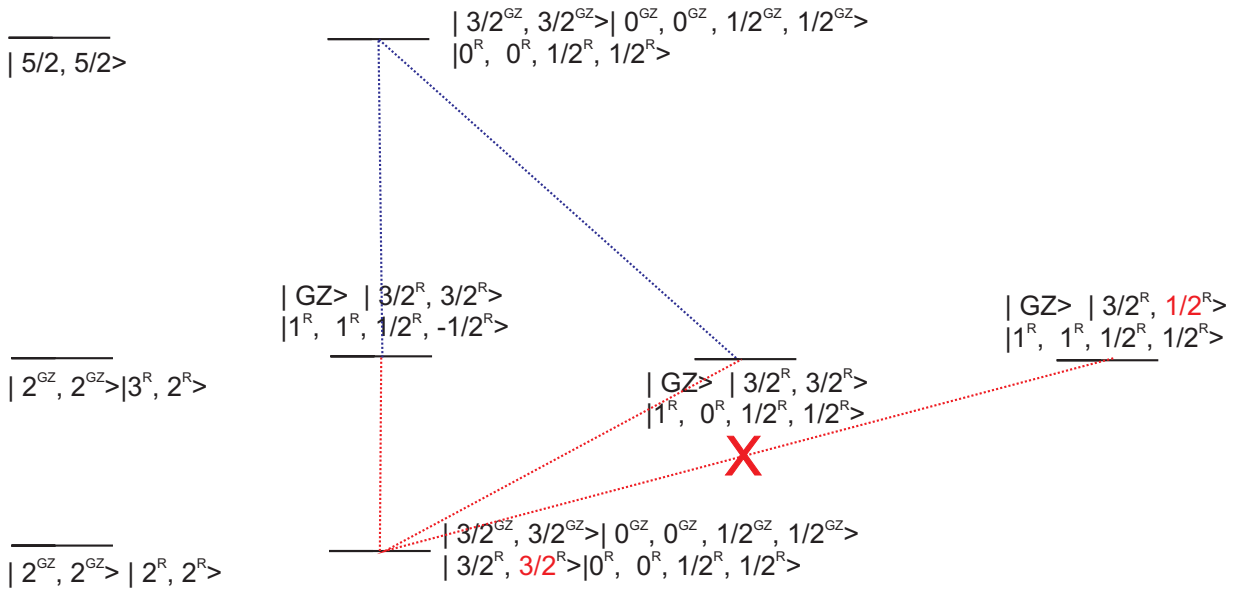

Abbildung 6.10: Schema zum Übergang $\langle 2,2|\,\langle 2,2|\,W\,|3,2\rangle\,\langle 3,2|\,W\left|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\right\rangle$, der in der Rechnung (6.2.8) berechnet wurde. GZ kennzeichnen die Zustände des Grundzustandsatoms und R die des Rydbergatoms im Rydberg-Molekül. *Links:* Beteiligte Energieniveaus in der F-Basis. *Rechts:* Beteiligte Energieniveaus in der LS-Basis. Im Zwischenniveau wurde der Zustand des Grundzustandsatoms der Übersichtlichkeit halber als $|\mathrm{GZ}\rangle$ abgekürzt. Es ist *rot* gekennzeichnet, weshalb der Übergang $\left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right|W\left|1,1,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$ verboten ist (Näheres s. Gl.(6.2.8)).

Anhand der oberen Rechnung und dem dazugehörigen Übergangsschema in Abb.(6.10) erkennt man, dass der Übergang $\langle 2,2|\,\langle 2,2|\,W\left|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\right\rangle$ beim Molekül dem Übergang $\langle 2,2|\,W\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$ beim Atom entspricht. Das ist auch nicht weiter verwunderlich, weil

der Zustand $\left|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\right\rangle$ gestreckt ist und somit nur ein einziger Zustand von den Zuständen, die das Rydbergatom in der LS-Basis annehmen kann, einen Betrag zu diesem Zustand liefert.
Wie man in der dritten Zeile der Gl.(6.2.8) erkennen kann, muss das Grundzustandsatom den Zustand $|2,2\rangle$ haben, damit eine Anregung in den Zustand $\left|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\right\rangle$ des Moleküls erfolgen kann. Das wird auch in der nächsten Rechnung gezeigt (s. dazu auch Abb.(6.11)). In dieser und den folgenden Rechnungen fließt die Annahme ein, dass das Atom, das im Grundzustand bleibt, seinen Zustand während der Anregung nicht wechselt. Das Verhalten des Rydbergatoms während der Anregung wurde außer Acht gelassen, genauso wie in allen folgenden Rechnungen.

$$\begin{aligned}\left\langle 2,1\middle|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\right\rangle &= \left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle\cancel{\left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle}\ \text{wegen Spinflip}\\ &+\cancel{\left\langle\frac{3}{2},\frac{1}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle}\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\ \text{wegen Kernspinflip} \quad = 0. \qquad (6.2.9)\end{aligned}$$

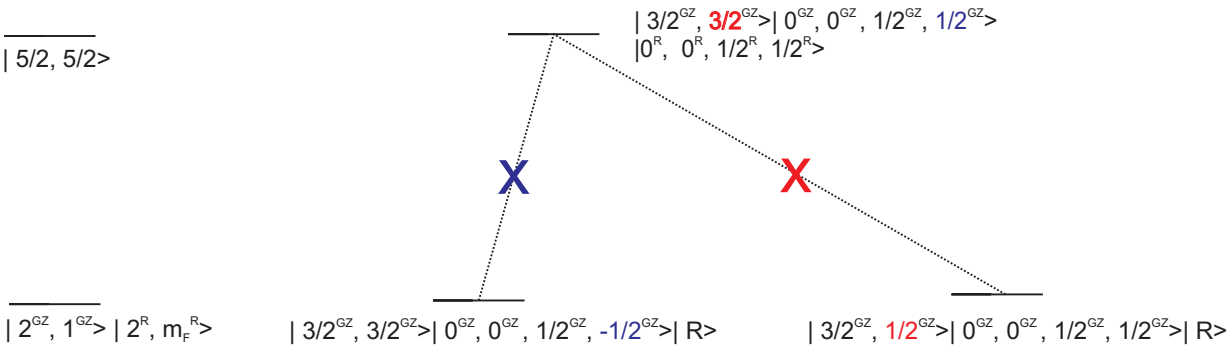

Abbildung 6.11: Schema zum Übergang $\langle 2,1|\langle 2,2|3,2\rangle\left\langle 3,2\middle|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\right\rangle$, der in der Rechnung (6.2.9) berechnet wurde. *Links:* Beiteiligte Energieniveaus in der F-Basis. *Rechts:* Beteiligte Energieniveaus in der LS-Basis. Das Zwischenniveau wurde weggelassen, weil es hier nicht von Bedeutung ist. Der Zustand des Atoms, das in den Rydbergzustand übergeht, wurde der Übersichtlichkeit halber im Anfangszustand mit $|\mathrm{R}\rangle$ abgekürzt. Es ist jeweils farblich hervorgehoben, weshalb die einzelnen Übergänge verboten sind (Näheres s. Gl.(6.2.9)).

Auch der Übergang $\langle 2,2|\langle 2,1|W\left|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\right\rangle$ beim Molekül entspricht dem Übergang $\langle 2,1|W\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$ beim Atom. Der Unterschied zwischen dem Zustand $\langle 2,2|\langle 2,2|W\left|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\right\rangle$, dem Zustand $\langle 2,2|\langle 2,1|W\left|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\right\rangle$ und den entsprechenden atomaren Zuständen ist, dass die molekularen Zustände mit der Wahrscheinlichkeit gewichtet sind, dass sich ein Grundzustandsatom im Zustand $|2,2\rangle$ im richtigen Abstand für eine Bindung befindet. Wenn die Messungen an den Atomen und Molekülen genau unter den gleichen Bediengungen

durchgeführt werden würden[3], dann wären die Spektren der Atome immer höher als die der Moleküle.
Nun wird der Übergang $\langle 2,2|\langle 2,2|W\left|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\right\rangle$ betrachtet:

$$\begin{aligned}\left|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\right\rangle &= \left|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle\left[\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle+\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\right]\\ &+\left|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle. \qquad (6.2.10)\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\left\langle 2,2\middle|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\right\rangle &= \left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle\left[\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle+\cancel{\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle}\right]\\ &+\cancel{\left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle}\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\\ &= \left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle=1 \qquad (6.2.11)\end{aligned}$$

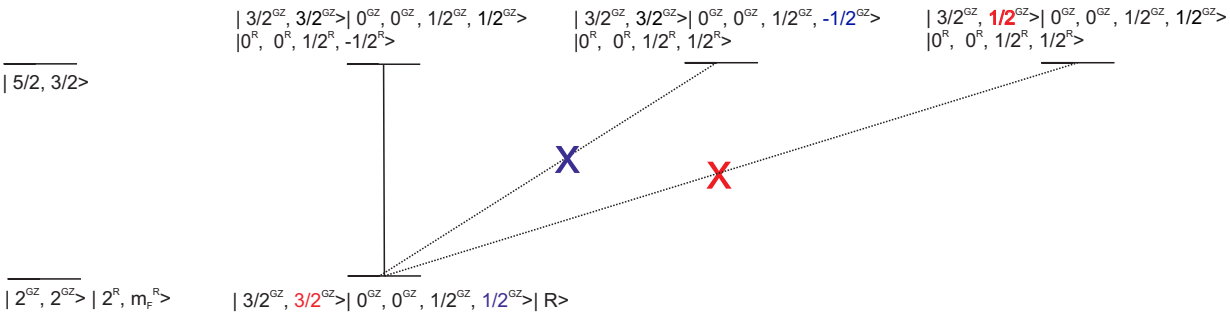

Abbildung 6.12: Schema zum Übergang $\langle 2,2|\langle 2,m_F|W\left|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\right\rangle$, der in der Rechnung (6.2.11) berechnet wurde. Die beiteiligten Energieniveaus sind *links* in der F-Basis und *rechts* in der LS-Basis dargestellt. Es ist jeweils farblich hervorgehoben, weshalb die einzelnen Übergänge verboten sind (Näheres s. Gl.(6.2.11)).

Die Rechnung (6.2.11) ist in der Abb.(6.12) veranschaulicht. Aus der Gl.(6.2.11) folgt, dass nur der Zustand, den der erste Summand in der Gl.(6.2.10) angibt, bei dem molekularen Übergang $\langle 2,2|\langle 2,2|W\left|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\right\rangle$ eine Rolle spielt. D.h., dass dieser molekulare Übergang dem Übergang $\langle 2,2|W\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle$ beim Atom entspricht. Bei den Messungen an den atomaren Zuständen 35 $S_{\frac{1}{2}}$ und 43 $S_{\frac{1}{2}}$ im Magnetfeld war dieser Übergang nur relativ schwach im Vergleich zum Übergang $\langle 2,2|W\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$ (s. Abb.(A.1) und

[3]Das ist im Experiment nicht der Fall, weil die Intensität von den beiden verwendeten Laserlichtern tagesabhängig ist.

Abb.(A.2)). Bei den Messungen an den Molekülen sind die Spektrallinien des Übergangs $\langle 2,2|\,\langle 2,2|\,W\,|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\rangle$ so klein, dass sie im Rauschen vollkommen untergehen.
Beim Übergang $\langle 2,2|\,\langle 2,1|\,W\,|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\rangle$ kann zum einen das Atom mit dem Zustand $|2,2\rangle$ im Grundzustand bleiben. In diesem Fall entspricht der Übergang dem Übergang $\langle 2,1|\,W\,|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\rangle$ beim Atom[4]. Zum anderen kann das Atom im Zustand $|2,1\rangle$ im Grundzustand bleiben (s. dazu Abb.(6.13)):

$$
\begin{aligned}
\left\langle 2,1\middle|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\right\rangle &= \left\langle \frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle \left[\cancel{\left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle} + \left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle\right] \\
&\quad + \cancel{\left\langle \frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle \left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle} \\
&\quad + \cancel{\left\langle \frac{3}{2},\frac{1}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle} \left[\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle + \cancel{\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle}\right] \\
&\quad + \left\langle \frac{3}{2},\frac{1}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle \left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle \\
&= \left\langle \frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle \left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle \\
&\quad + \left\langle \frac{3}{2},\frac{1}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle \left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle = 1.
\end{aligned}
\tag{6.2.12}
$$

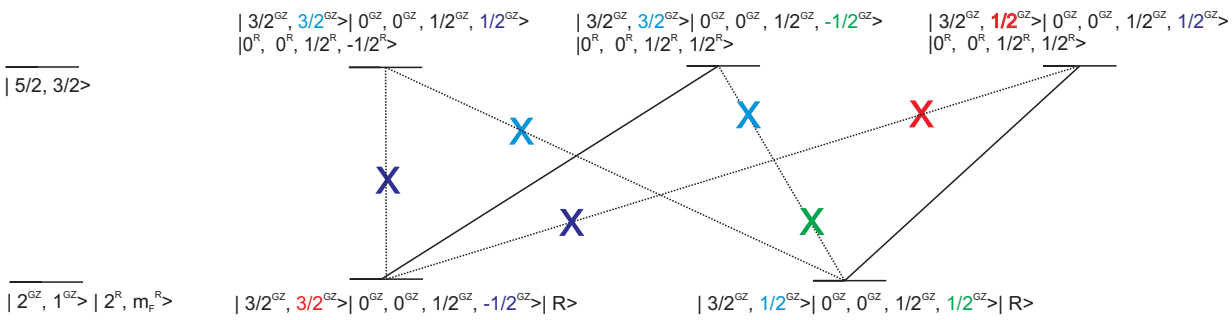

Abbildung 6.13: Schema zum Übergang $\langle 2,1|\,\langle 2,m_F|\,W\,|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\rangle$, der in der Rechnung (6.2.12) berechnet wurde. Die beiteiligten Energieniveaus sind *links* in der F-Basis und *rechts* in der LS-Basis dargestellt. Es ist jeweils farblich hervorgehoben, weshalb die einzelnen Übergänge verboten sind (Näheres s. Gl.(6.2.12)).

Mit den Ergebnissen von Gl.(6.2.12) folgt aus der Gl.(6.2.10), dass nur die Zustände, die der zweite und dritte Summand in Gl.(6.2.10) angeben, bei der Anregung des Moleküls eine Rolle spielen. Dieser Übergang entspricht dem Übergang $\langle 2,2|\,W\,|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\rangle$ beim

[4]Auf diesen Übergang wird beim molekularen Übergang $\langle 2,1|\,\langle 2,1|\,W\,|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\rangle$ näher eingegangen.

Atom. Auch beim molekularen Übergang $\langle 2,2|\,\langle 2,2|\,W\,|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\rangle$ entspricht die Anregung des Atoms in den Rydbergzustand demselben Übergang $\langle 2,2|\,W\,|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\rangle$. Der Unterschied liegt darin, dass beim Übergang $\langle 2,1|\,\langle 2,2|\,W\,|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\rangle$ die Übergangswahrscheinlichkeit mit der Wahrscheinlichkeit gewichtet ist, dass sich im richtigen Abstand ein Grundzustandsatom im Zustand $|2,1\rangle$ befindet. Der Übergang $\langle 2,2|\,\langle 2,2|\,W\,|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\rangle$ ist entsprechend mit der Wahrscheinlichkeit gewichtet, dass sich im richtigen Abstand ein Grundzustandsatom im Zustand $|2,2\rangle$ befindet. Die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von Atomen im Zustand $|2,2\rangle$ ist größer als für das Auftreten von Atomen im Zustand $|2,1\rangle$. Deshalb wird der molekulare Übergang $\langle 2,1|\,\langle 2,2|\,W\,|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\rangle$ nicht gemessen.
Mit denselben Überlegungen wie im vorherigen Abschnitt folgt für den molekularen Übergang $\langle 2,1|\,\langle 2,1|\,W\,|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\rangle$, dass die Anregung des Rydbergatoms dem Übergang $\langle 2,1|\,W\,|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\rangle$ entspricht. Das ist derselbe Rydbergübergang, der auch bei dem Molekülübergang $\langle 2,2|\,\langle 2,1|\,W\,|\frac{5}{2},\frac{5}{2}\rangle$ angeregt wird. Die beiden Übergänge unterscheiden sich im Grundzustandsatom, an dem das Valenzelektron des Rydbergatoms gestreut wird. Dass das Elektron an einem Atom im Zustand $|2,2\rangle$ gestreut wird, ist viel wahrscheinlicher als dass es an einem Atom im Zustand $|2,1\rangle$ gestreut wird.
Für den Zustand $|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\rangle$ gilt in der LS-Basis:

$$\begin{aligned}\left|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\right\rangle &= \left|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle \\ &\quad+\left|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\left[\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle+\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle\right] \\ &\quad+\left|\frac{3}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle. \end{aligned} \tag{6.2.13}$$

Der Übergang $\langle 2,2|\,\langle 2,2|\,W\,|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\rangle$ ist nicht möglich, wegen

$$\begin{aligned}\left\langle 2,2\middle|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\right\rangle &= \left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle\cancel{\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle} \\ &\quad+\cancel{\left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle}\left[\cancel{\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle}+\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\right] \\ &\quad+\cancel{\left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle}\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle=0. \end{aligned} \tag{6.2.14}$$

Für den Übergang $\langle 2,1|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\rangle$ folgt:

$$
\begin{aligned}
\left\langle 2,1\middle|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\right\rangle &= \left\langle \frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle \left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle \\
&\quad + \cancel{\left\langle \frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle} \left[\left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle + \cancel{\left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle}\right] \\
&\quad + \cancel{\left\langle \frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle \left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle} \\
&\quad + \cancel{\left\langle \frac{3}{2},\frac{1}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle \left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle} \\
&\quad + \left\langle \frac{3}{2},\frac{1}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle \left[\cancel{\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle} + \left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\right] \\
&\quad + \cancel{\left\langle \frac{3}{2},\frac{1}{2}\middle|\frac{3}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle} \left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle \\
&= \left\langle \frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{3}{2}\right\rangle \left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle \\
&\quad + \left\langle \frac{3}{2},\frac{1}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle \left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle = 1
\end{aligned}
\tag{6.2.15}
$$

Mit den Ergebnissen der Gl.(6.2.15), die in Abb.(6.14) unten veranschaulicht sind, folgt, dass nur die Zustände, die durch den ersten und dritten Summand in der Gl.(6.2.13) beschrieben werden, bei der Anregung in den molekularen Zustand eine Rolle spielen. Somit entspricht der molekulare Übergang $\langle 2,1|\langle 2,2|W\left|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$ dem atomaren Übergang $\langle 2,2|W\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle$. Wie bereits erwähnt, geht dieser Zustand im Rauschen unter.
Der molekulare Übergang $\langle 2,1|\langle 2,1|W\left|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$ entspricht dem atomaren Übergang $\langle 2,1|W\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle$. Wobei der atomare Übergang mit der Wahrscheinlichkeit gewichtet ist, dass sich bei der Anregung ein Grundzustandsatom im Zustand $|2,1\rangle$ im richtigen Abstand befindet, um ein Rydberg-Molekül zu bilden. Diese Wahrscheinlichkeit ist viel geringer als die Wahrscheinlichkeit, dass sich im richtigen Abstand ein Grundzustandsatom im Zustand $|2,2\rangle$ befindet. Deshalb müssten eigentlich die Spektren des molekularen Übergangs $\langle 2,2|\langle 2,1|W\left|\frac{5}{2},\frac{3}{2}\right\rangle$ viel stärker sein, als die des Übergangs $\langle 2,1|\langle 2,1|W\left|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$. Der Clebsch-Gordan-Koeffizient des Übergangs $\langle 2,1|\langle 2,1|W\left|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$ beträgt $\sqrt{0,4}$ [40], der des Übergangs $\langle 2,2|\langle 2,1|W\left|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$ beträgt $\sqrt{0,2}$ [40]. Die Stärke der Übergänge ist proportional zum Quadrat der Clebsch-Gordan-Koeffizienten. Da bei dem Übergang $\langle 2,1|\langle 2,1|W\left|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$ vor der Anregung beide Atome sich im selben Zustand befinden, handelt es sich um ununterscheidbare Teilchen. Deshalb wird der Übergang $\langle 2,1|\langle 2,1|W\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle$ noch mit dem Faktor $\sqrt{2}$ multipliziert. Diese beiden Effekte ergeben eine Verstärkung des Übergangs $\langle 2,1|\langle 2,1|W\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle$ um den Faktor $2\sqrt{2}$, verglichen mit dem Übergang $\langle 2,2|\langle 2,1|W\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle$. Dieser Faktor reicht jedoch nicht aus, um die Gewichtung durch die Grundzustandsatome zu kompensieren. Höchstwahrscheinlich wird der Übergang $\langle 2,1|\langle 2,1|W\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle$ durch Effekte verstärkt, die bisher nicht berücksichtigt wurden.

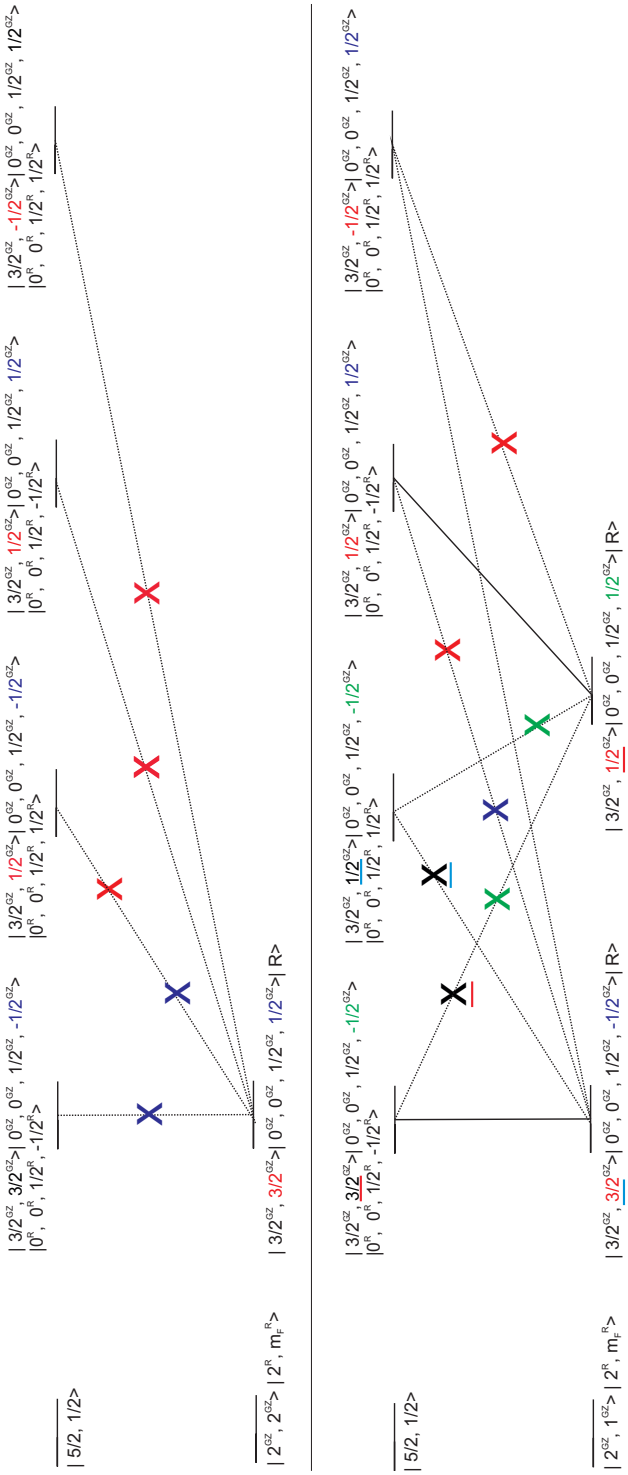

Abbildung 6.14: Schema zu den Übergängen $\langle 2,2|\,\langle 2,m_F|\,W\,|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\rangle$ und $\langle 2,1|\,\langle 2,m_F|\,W\,|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\rangle$, die in den Rechnungen (6.2.14) und (6.2.15) berechnet wurden. Die beiteiligten Energieniveaus sind *links* in der F-Basis und *rechts* in der LS-Basis dargestellt. Es ist jeweils farblich hervorgehoben, weshalb die einzelnen Übergänge verboten sind.

Der Übergang $\langle 2,1|\,\langle 2,1|\,W\,\left|\frac{5}{2},\frac{1}{2}\right\rangle$ entspricht dem atomaren Übergang $\langle 2,1|\,W\,\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle$. Der Zustand $\left|\frac{5}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle$ sieht in der LS-Basis folgendermaßen aus:

$$\begin{aligned}\left|\frac{5}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle &= \left|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle \\ &\quad+\left|\frac{3}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle\left[\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle+\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle\right] \\ &\quad+\left|\frac{3}{2},-\frac{3}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\left|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle. \end{aligned} \tag{6.2.16}$$

Der Übergang in diesen Zustand ist überhaupt nicht möglich, wegen

$$\begin{aligned}\left\langle 2,1\middle|\frac{5}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle &= \cancel{\left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle}\left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle \\ &\quad+\cancel{\left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle}\left[\left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle+\cancel{\left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle}\right] \\ &\quad+\cancel{\left\langle\frac{3}{2},\frac{3}{2}\middle|\frac{3}{2},-\frac{3}{2}\right\rangle}\cancel{\left\langle 0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle} \\ &\quad+\cancel{\left\langle\frac{3}{2},\frac{1}{2}\middle|\frac{3}{2},\frac{1}{2}\right\rangle}\cancel{\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle} \\ &\quad+\cancel{\left\langle\frac{3}{2},\frac{1}{2}\middle|\frac{3}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle}\left[\cancel{\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle}+\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle\right] \\ &\quad+\cancel{\left\langle\frac{3}{2},\frac{1}{2}\middle|\frac{3}{2},-\frac{3}{2}\right\rangle}\left\langle 0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\middle|0,0,\frac{1}{2},\frac{1}{2}\right\rangle=0. \end{aligned} \tag{6.2.17}$$

Damit sind auch Übergänge in molekulare Zustände, deren magnetische Quantenzahl m_Ξ kleiner als $-\frac{1}{2}$ ist, nicht möglich. Die Rechnung (6.2.17) ist in der Abb.(6.15) veranschaulicht.

Wie am Anfang dieses Kapitels erwähnt wurde, besteht die Möglichkeit, dass der Gesamtdrehimpuls F des Grundzustandsatoms an den Spin $\underline{S}^{\mathrm{R}}$ des Valenzelektrons des Rydbergatoms koppelt. Bei dieser Kopplung ergibt sich für den Landé-Faktor g_Ξ ebenfalls $\frac{4}{5}$. Das führt dazu, dass die Zeemanlinien dieselben Steigungen haben wie bei der Spin-Bahn-Kopplung. Außerdem lassen sich die Zeemanlinien auf dieselben Übergänge beim Rydbergatom zurückführen wie bei der Spin-Bahn-Kopplung. Der einzige Unterschied liegt darin, dass die Unterniveaus des Rydberg-Moleküls bei denen die Spins nicht in dieselbe Richtung ausgerichtet sind, durch eine Superposition aus dem Singlett- und dem Triplettzustand, mit $M_\Sigma = 0$, beschrieben werden müssen. Denn diese Zustände bilden die Eigenbasis der Elektronenspins. Die Superposition des Singlett- und des Triplettzustandes würde zu einer Erniedrigung der Bindungsenergie führen. D.h. die Triplettzustände mit $M_\Sigma = 0$ wären gegen die Triplettzustände mit $M_\Sigma = -1$ und $M_\Sigma = 1$ bei einem nicht vorhandenen Magnetfeld verschoben.

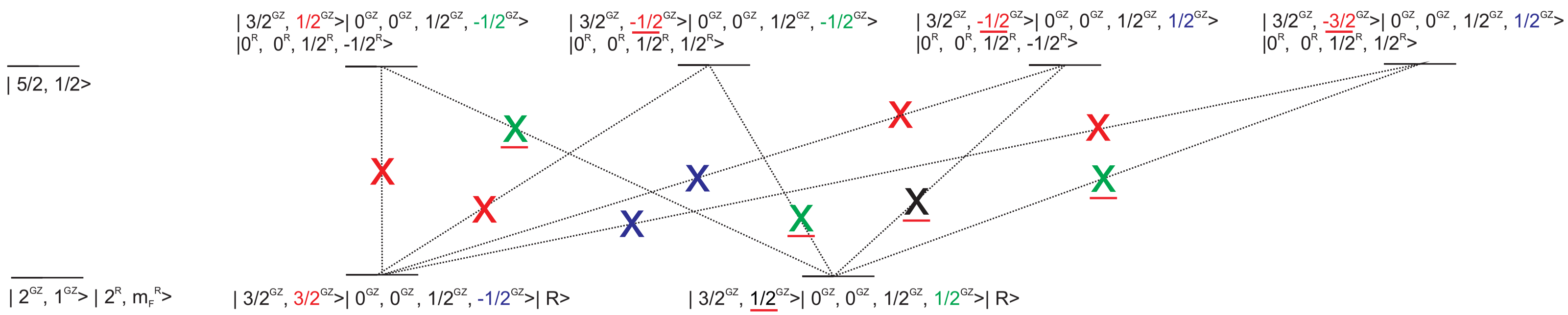

Abbildung 6.15: Schema zum Übergang $\langle 2,1|\,\langle 2,m_F|\,W\,\left|\frac{5}{2},-\frac{1}{2}\right\rangle$, der in der Rechnung (6.2.17) berechnet wurde. Die beiteiligten Energieniveaus sind *links* in der F-Basis und *rechts* in der LS-Basis dargestellt. Es ist jeweils farblich hervorgehoben, weshalb die einzelnen Übergänge verboten sind.

Bei den Rydberg-Molekülen wurden Schwankungen des Offset-Magnetfeldes B_O in derselben Größenordnung wie bei den Rydbergatomen gemessen. Das Verhalten der Zeemanlinien konnte durch die Berücksichtigung der Hyperfeinaufspaltung aufgrund des Kernspins des Grundzusandsatoms vorhergesagt werden. Indem die Rydberg-Molekül-Übergänge auf Übergänge des Rydbergatoms zurückgeführt wurden, konnte erklärt werden, wieso einige der Übergänge nicht beobachtet wurden. Lediglich das Auftreten der Zeemanlinien mit der Steigung $-0,6$ konnnte nicht erklärt werden.

Kapitel 7

Messungen am kohärenten System

In diesem Kapitel wird die Kohärenz der Rydberg-Moleküle im Zustand $^3\Sigma(5s_{\frac{1}{2}} - 35s_{\frac{1}{2}})$ gemessen. Die Kohärenz hängt zum einen von der Lebensdauer T_1 des angeregten Zustandes ab und zum anderen von der Phasenbeziehung zwischen den einzelnen Rydberg-Molekülen. Die Lebensdauer der Phasenbeziehung wird als Lebensdauer der Kohärenz T_2 bezeichnet. Es gibt zwei Methoden, die Ramseyspektroskopie und die Rotary-Echo-Spektroskopie, bei denen die beiden Größen gleichzeitig gemessen werden können.

7.1 Ramseyspektroskopie

Wie im Kap.2.5 bereits erwähnt wurde, werden bei den Ramseymessungen zwei Anregungspulse verwendet, die durch eine Wartezeit getrennt sind. Das ist in der Abb.(7.1) schematisch dargestellt. Während des ersten Pulses wird eine Superposition aus den

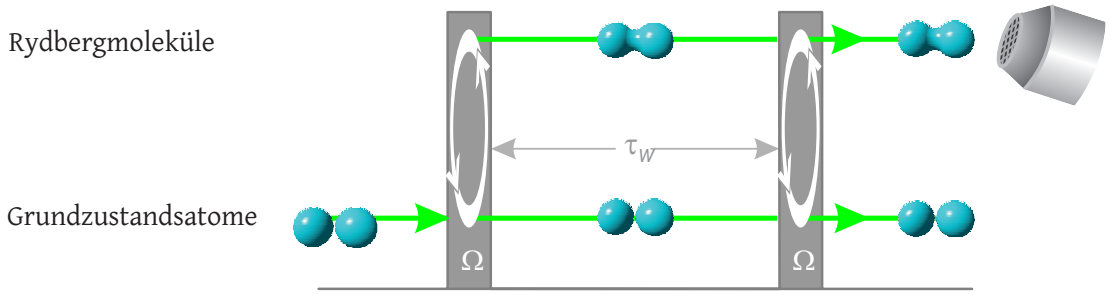

Abbildung 7.1: Schematische Darstellung der Ramseyspektroskopie. Während des ersten Pulses wird eine Superposition aus Grundzustandsatomen und den Rydberg-Molekülen in dem Zustand $^3\Sigma(5s - 35s)$ erzeugt. Dann kommt die Wartezeit τ_w und dann der zweite Puls [39].

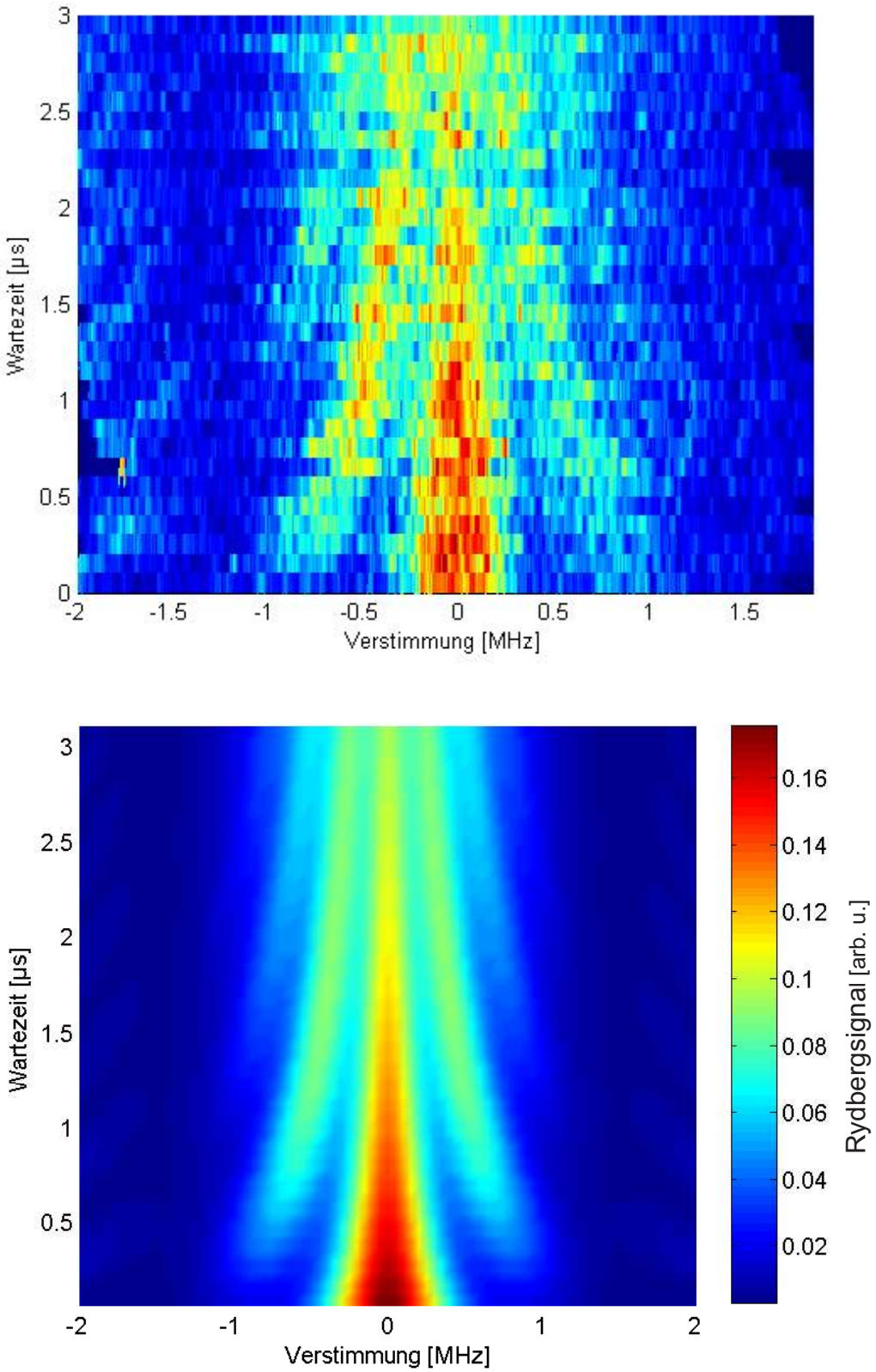

Abbildung 7.2: *Oben:* Aufgenommenes Ramseyspektrum an den molekularen $^3\Sigma(5s - 35s)$ Zustand. *Unten:* Das theoretisch berechnete Ramseyspektrum von diesem Zustand.

Grundzustandsatomen und den Rydbergmolekülen in dem Zustand $^3\Sigma(5s-35s)(\nu=0)$[1] durch einen Zweiphotonen-Übergang gebildet. Dabei beträgt die Leistung des Lasers mit der Wellenlänge von 780 nm 96 μW und die Leistung des Lasers mit der Wellenlänge von 480 nm beträgt 50 mW. Mit diesen Laserleistungen beträgt die Rabifrequenz Ω dann 100 kHz [39]. Da die beiden Pulse 0,75 μs lang waren, handelte es sich nicht um $\frac{\pi}{2}$-Pulse, sondern ungefähr um $\frac{\pi}{42}$-Pulse. Die Pulsfläche Π werden mit der Formel

$$\Pi = \Omega\tau \tag{7.1.1}$$

berechnet. Wegen dem Zusammenhang in Gl.(2.0.14) hängt die Anregungszeit von der Rabifrequenz ab. Wenn der Anregungspuls zu kurz gewählt wird bzgl. der Rabifrequenz, dann werden zu wenige Moleküle angeregt, um sie detektieren zu können. Aber der Anregungspuls muss kurz genug bezüglich der Lebensdauer des Zustandes und Lebensdauer der Kohärenzen sein, damit diese gemessen werden können.
Während der Wartezeit τ_w wird mit Hilfe des letzten AOM im Strahlengang das Laserlicht ausgeschaltet (s. dazu Kap.3.1). Die Wartezeit betrug zwischen 0 μs und 3,2 μs. Bei nicht resonanten Pulsen präzediert der Blochvektor $\underline{R}(t)$ frei, was dazu führt, dass sich seine Phase bezüglich des Laserfeldes ändert. Bei resonanten Pulsen findet keine Präzession des Blochvektors $\underline{R}(t)$ statt. Je nachdem wo sich der Blochvektor beim Einstrahlen des zweiten Pulses befindet, werden entweder weitere Moleküle angeregt oder sie relaxieren. Wann welches Verhalten auftritt ist in Kap.2.5 beschrieben.
Nach dem zweiten Puls werden die Moleküle detektiert. Dazu werden die Moleküle mit einem elektrischen Feld der Stärke 430 Vcm^{-1} ionisiert. In einer Atomwolke wurden Ramseymessungen mit gleicher Wartezeit in einem Frequenzbereich $\pm$2 MHz um die Resonanzfrequenz durchgeführt. Dabei wurden 400 Datenpunkte in der Wolke aufgenommen. In Abb.(7.2) erkennt man, dass der Teil des Spektrums mit positiver Verstimmung schwächer angeregt wird als der Teil mit der negativen Verstimmung. Das liegt daran, dass die Wolke sich während der Messungen aufheizt. Das hat zur Folge, dass die Anzahl der Atome, die im richtigen Abstand sind um ein Molekül zu bilden, sinkt. Aber diese Aufheizung hat in erster Näherung keinerlei Auswirkung auf die Kohärenz der Moleküle. Die Daten wurden für [38] und [41] ausgewertet. Dabei wurden die Blochgleichungen für $\Omega = 100$ kHz und der Verstimmungen δ, die im Experiment benutzt wurden, numerisch gelöst. Danach wurden die berechneten Ergebnisse mit der Methode der kleinsten Quadrate an die gemessenen angepasst, um die spontane Lebensdauer und die Lebensdauer der Kohärenz zu bestimmen. Die so ermittelte spontane Lebensdauer beträgt $T_1 = 7,1(9)\mu$s und die Lebensdauer der Kohärenz beträgt $T_2 = 1,3(3)\mu$s. In der Abb.(7.2) unten wurden die Blochgleichungen mit diesen Werten berechnet.

[1] $\nu = 0$ bedeutet, dass beim Molekül keine Vibrationen angeregt wurden.

7.2 Rotary-Echo-Spektroskopie

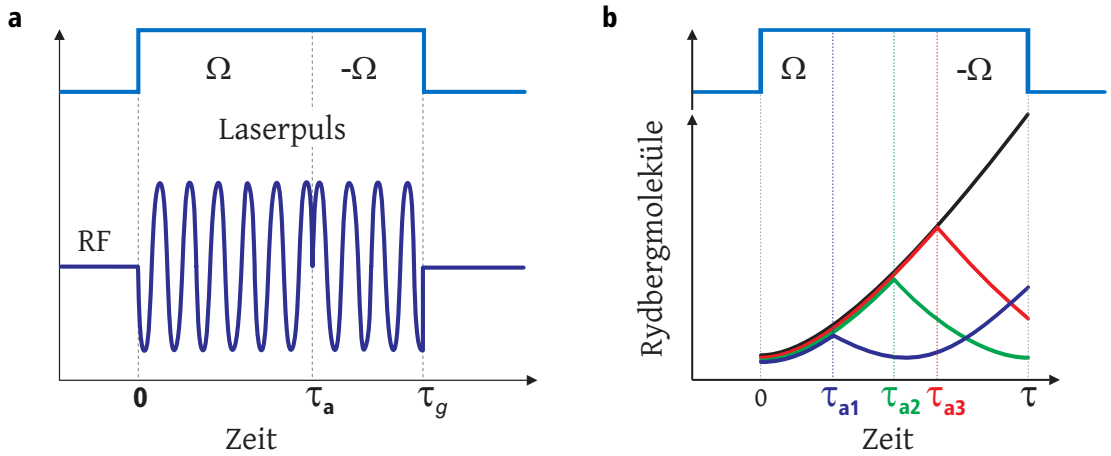

Abbildung 7.3: **a** Schematische Darstellung des Anregungspulses bei den Rotary-Echo-Messungen. Während der Messung wird die Phase des Anregungslaserlichtes um π geändert (*unten*). Das hat zur Folge, dass sich das Vorzeichen der Rabifrequenz Ω ändert (*oben*). **b** Verhalten der Gesamtanregung der Rydbergmoleküle in Abhängigkeit des Verhältnisses des Anregungspulses mit normaler Phase (Dauer von 0 bis τ_a) zu dem mit inverser Phase (Dauer von τ_a bis τ). Wenn der Anregungspuls kleiner ist als der mit inverser Phase, dann relaxiert das Ensemble komplett und wird danach wieder angeregt (*blaue* Kurve). Wenn die beiden Pulse gleich lang sind, dann relaxiert das Ensemble während des zweiten Pulses komplett (*grüne* Kurve). Wenn der erste Puls länger ist als der zweite, dann kann das Molekülensemble nicht vollständig relaxieren (*rote* Kurve). [39]

Bei den Rotary-Echo-Messungen wird die Phase des Anregungslichtes während der Anregung um π geändert (s. Abb.(7.3 **a**)) . Dazu wird die Phase der Radiofrequenz am akustooptischen Modulator[2] des Lasers mit der Wellenlänge von 480 nm um π geändert. Die Leistung von diesem Laser betrug 50 mW und die Leistung des Lasers mit der Wellenlänge von 780 nm betrug 6,5 μW. Damit beträgt die Rabifrequenz $\Omega = 48$ kHz [39]. Die Änderung der Phase um π hat zur Folge, dass die zeitliche Entwicklung an den Rydberg-Molekülen rückgängig gemacht wird. Darauf wurde in Kap.2.6 näher eingegangen und in der Abb.(7.3 **b**) sind die Fälle:

- Anfangspuls länger als zweiter Puls
- beide Pulse gleich lang
- erster Puls kürzer als zweiter

[2]Das ist der letzte AOM vor dem Experiment bei diesem Laser, siehe dazu Abb.(3.2)

schematisch dargestellt.
Die Rotary-Echo-Spektroskopie wurde auf Resonanz durchgeführt, wobei die Länge des ersten Pulses τ_a in einigen Schritten von 0 s auf τ_g erhöht wurde. Für τ_g gilt

$$\tau_g = \tau_a + \tau_\pi \tag{7.2.1}$$

τ_π ist der zweite Puls bei dem die Phase des Anregungslichts um π bezüglich des ersten Pulses verschoben ist. τ_g hatte folgende Längen: 0,8 μs, 1,6 μs, 2,4 μs, 3,2 μs, 4,0 μs, 4,8 μs, 5,6 μs und 6,4 μs. Die Daten wurden über fünf Messungen gemittelt. Die gemittelten Daten sind in den Abb.(7.4) und Abb.(7.5) abgebildet. An die Messdaten wurde die Lösung der Blochgleichungen mit T_1 = 6,4 μs und T_2 = 1,5 μs angelegt. Die spontane Lebensdauer und die Lebensdauer der Kohärenz wurde [39] entnommen. Diese wurden aus den Messdaten nach derselben Methode wie in Kap.7.1 berechnet. Die Messwerte

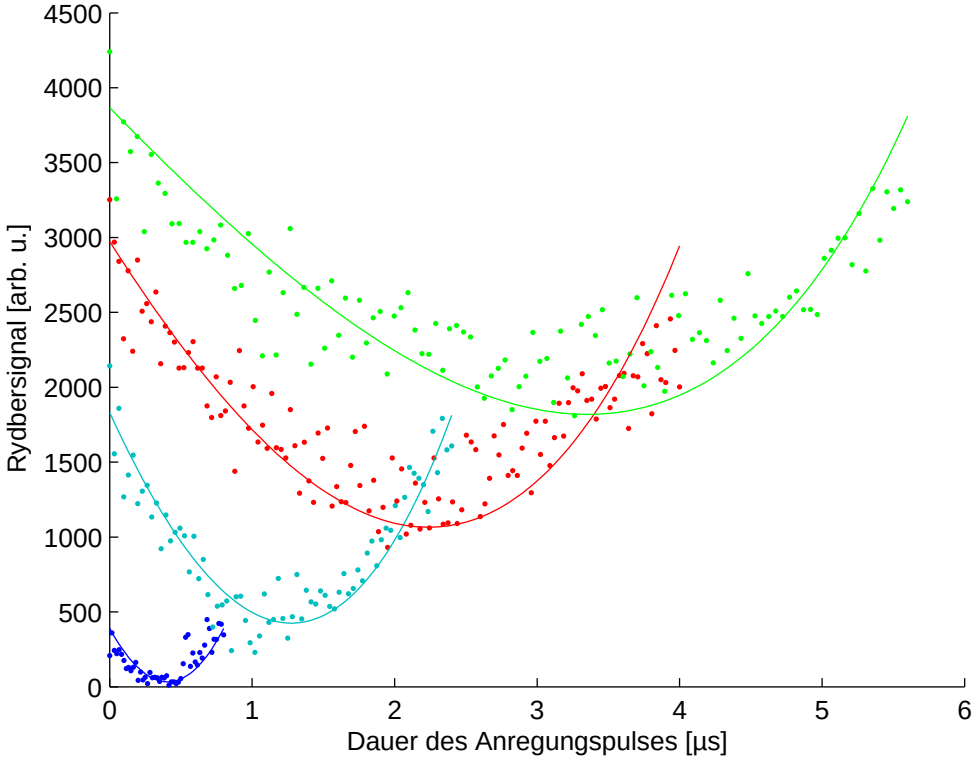

Abbildung 7.4: Rotary-Echo-Messungen an dem Molekülzustand $^3\Sigma(5s_{\frac{1}{2}}-35s_{\frac{1}{2}})$ auf Resonanz. Die Gesamtdauer der Anregungspulse betrug 0,8 μs (*blaue* Punkte), 2,4 μs (*türkise* Punkte), 4,0 μs (*rote* Punkte) und 5,6 μs (*grüne* Punkte). Die angelegten Kurven sind die theoretischen Kurven bei einer spontanen Lebensdauer T_1 von 6,4 μs und einer kohärenten Lebensdauer von 1,5 μs.

stimmen mit den theoretischen Kurven relativ gut überein.
Mithilfe der Sichtbarkeit

$$S = \frac{\max(R) - \min(R)}{\max(R) + \min(R)} \tag{7.2.2}$$

wurden die Kurven miteinander verglichen. R steht für das Rydbergsignal. Das Rauschen ist so stark, dass man aus den Messdaten kein Minimum und kein Maximum bestimmen kann. Deshalb wurden diese beiden Werte aus den theoretischen Kurven entnommen. Diese sind neben den Messpunkten in den Abb.7.4 und Abb.7.5 abgebildet. Die Sichtbarkeit nimmt mit steigender Dauer von τ_g ab, aufgrund von dekohärenter Effekte und der Lebensdauer des Zustandes.
Außerdem wurde bei festgehaltenen $\tau_g = 1,6$ μs die beiden Pulse τ_a und τ_π variiert. Dabei wurde die Verstimmung im Frequenzbereich $\pm$ 1,4 MHz um die Resonanzfrequenz

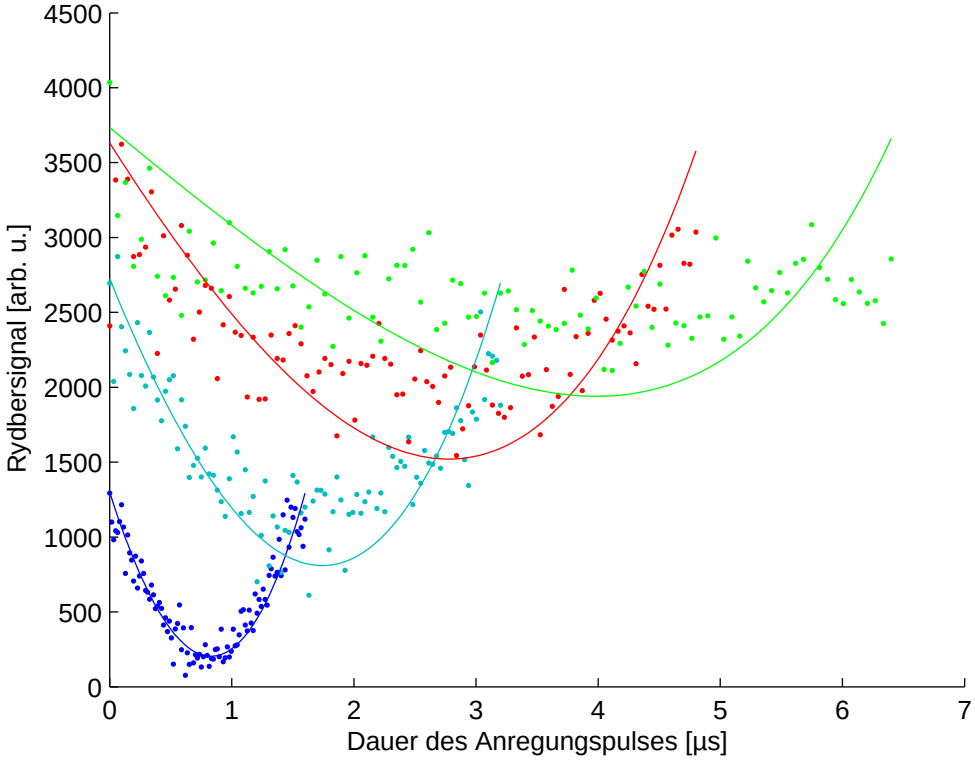

Abbildung 7.5: Rotary-Echo-Messungen an dem Molekülzustand $^3\Sigma(5s_{\frac{1}{2}} - 35s_{\frac{1}{2}})$ auf Resonanz. Die Gesamtdauer der Anregungspulse betrug 1,6 μs (*blaue* Punkte), 3,2 μs (*türkise* Punkte), 4,8 μs (*rote* Punkte) und 6,4 μs (*grüne* Punkte). Die angelegten Kurven sind die theoretischen Kurven bei einer spontanen Lebensdauer T_1 von 6,4 μs und einer kohärenten Lebensdauer von 1,5 μs.

variiert. In der Abb.(7.7) oben sind die Messdaten abgebildet. Wenn die Blochgleichungen mit den beiden Lebensdauern $T_1 = 6{,}4(9)$ μs, $T_2 = 1{,}5(2)$ μs und der Rabifrequenz $\Omega = 48$ kHz berechnet werden, dann stimmen sie mit den Messwerten gut überein. Die Simulation ist unten in Abb.(7.7) abgebildet. Wenn man die Ergebnisse aus den Ramseymessungen (s. Kap.7.1) mit den Ergebnissen aus den Rotary-Echo-Messungen vergleicht, dann stimmen die beiden Lebensdauern gut überein.
Beim Rydbergatom im Zustand $35S_{\frac{1}{2}}$ beträgt die Lebensdauer 24,5 μs (s. Abb.(1.9)). In der Berechnung wurde auch die Schwarzkörperstrahlung mit berücksichtigt. Die Zerfälle des Rydbergelektrons sind beim Atom und beim Molekül etwa gleich groß, weil die Bindungsenergie des Moleküls das Energieniveau des Rydbergelektrons nur um etwa 22,5 MHz verschiebt. Aber im Gegensatz zum Atom kann das Molekül auch zu Rb^+ und Rb^- bzw. zu Rb_2^+ und einem Elektron zerfallen. Deshalb erhöht sich die Anzahl der möglichen Zerfallsweg beim Molekül und damit erniedrigt sich seine Lebensdauer.

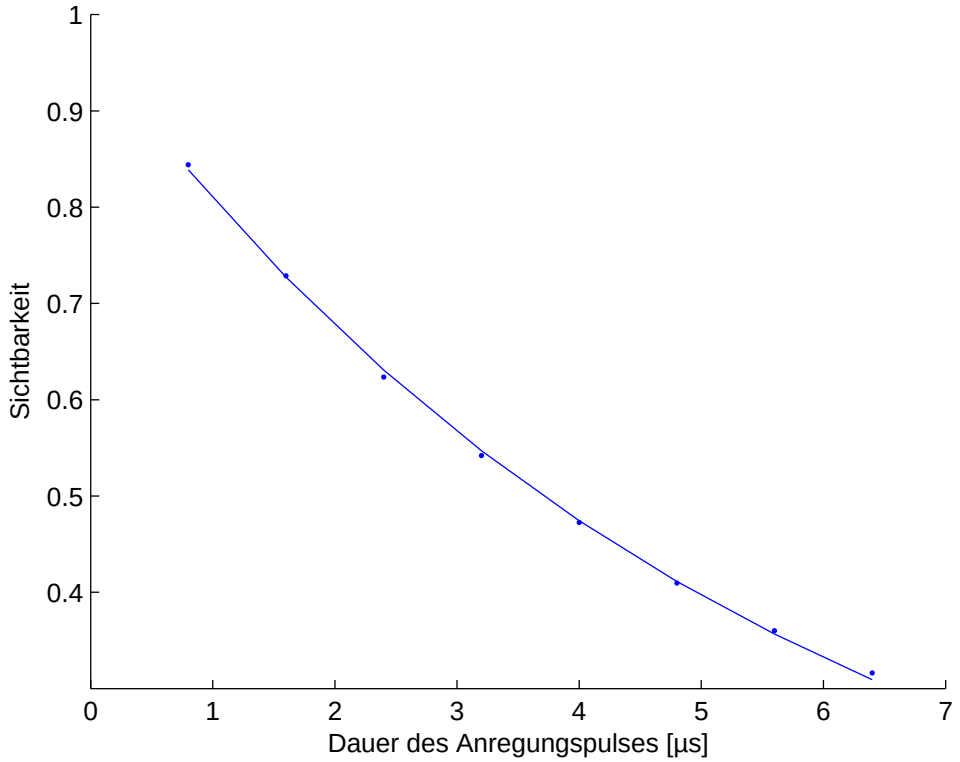

Abbildung 7.6: Sichtbarkeit der theoretischen Kurven in den Abb.(7.4) und Abb.(7.5).

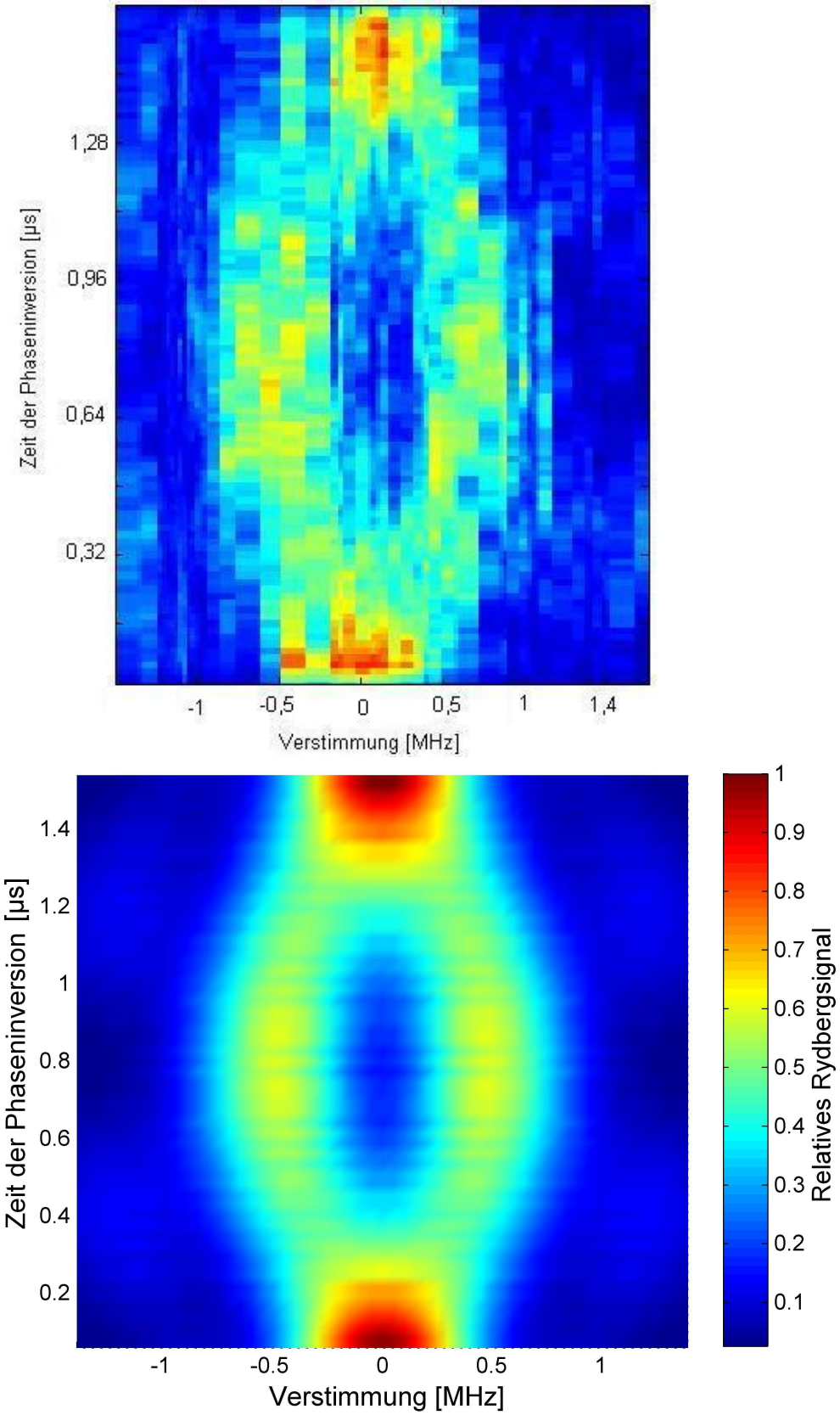

Abbildung 7.7: *Oben:* Aufgenommenes Rotary-Echo-Spektrum des molekularen $^3\Sigma(5s_{\frac{1}{2}} - 35s_{\frac{1}{2}})$-Zustands. *Unten:* Das theoretisch berechnete Rotary-Echo-Spektrum von diesem Zustand.

Kapitel 8

Zusammenfassung und Ausblick

8.1 Zusammenfassung

Die Messungen des Zeeman-Effekts wurden zuerst an den Rydbergatomen durchgeführt. Da das Verhalten der Zeemanlinien von Atomen bekannt ist, konnte so die Magnetfalle charakterisiert werden. Es wurde festgestellt, dass bei der Magnetfalle ein Offset-Magnetfeld existiert und dieses von Tag zu Tag relativ starken Schwankungen unterworfen ist. Dieses Offset-Magnetfeld führt zu einem nichtlinearen Verhalten der Zeemanlinien.
Das Verhalten der Rydberg-Moleküle konnte mit der Hyperfeinwechselwirkung des Rydbergelektrons mit dem Grundzustandsatom erklärt werden. Das Elektron des Atoms im Rydbergzustand hält sich nicht nur in der Nähe des Atoms im Grundzustand auf. Trotzdem konnte eine Hyperfeinaufspaltung der Zeemanlinien gemessen werden, die auf den Kernspin des Atoms im Grundzustand zurückgeführt werden konnte.
Des Weiteren wurde das kohärente Verhalten der Rydberg-Moleküle gemessen. Dazu wurden zwei Methoden verwendet, die Ramseyspektroskopie und die Rotary-Echo-Spektroskopie. Das kohärente Verhalten der Rydberg-Moleküle gibt Aufschluss über das zeitliche Verhalten der dynamischen Vorgänge in dem Molekül. Beide Methoden haben für die Lebensdauer und die Kohärenzzeit etwa dieselben Werte geliefert. Außerdem konnten die Ergebnisse der beiden Messungen mit dem Zwei-Niveau-Atom erklärt werden.

8.2 Ausblick

Die aufgestellte Theorie zur Magnetfeldabhängigkeit der Rydberg-Moleküle kann durch weitere Experimente nachgeprüft werden. Die Messungen am Zustand $^3\Sigma(5s_{\frac{1}{2}} - 35s_{\frac{1}{2}})$ könnten noch einmal mit einer Polarisation des Anregungslichtes, die die Linien mit den Steigungen $-0,3\frac{\mu_B}{h}$, $0,2\frac{\mu_B}{h}$ und $-1,1\frac{\mu_B}{h}$ anregen würde, durchgeführt werden. Man könnte die Messungen auch an einem Rydberg-Molekül durchführen, bei dem sich das eine Atom im p-Zustand und das andere Atom im d-Zustand befindet. So kann überprüft

werden, ob es zu einer LS-Kopplung kommt.

Die angeregten Rydbergatome können sich gegenseitig sehr leicht polarisieren. Dabei wird ein Dipolmoment induziert, das ein elektrisches Feld verursacht. Dieses Feld führt dazu, dass die Energieniveaus der umgebenden Atome verschoben werden. Wegen dieser Verschiebung ist das Anregungslicht für die Grundzustandsatome in der Nähe des Rydbergatoms nicht mehr resonant. Der Bereich in dem keine Atome angeregt werden, heißt Blockaderadius. Innerhalb des Blockaderadius wird nicht ein bestimmtes Atom in den Rydbergzustand angeregt, sondern alle Atome teilen sich die Anregung. Für die Rabifrequenz der Kollektivanregung gilt deshalb $\Omega_{\text{Koll}} = \sqrt{N}\Omega$. N ist die Teilchenzahl innerhalb des Blockaderadius und Ω ist die Rabifrequenz eines einzelnen Atoms. Beim Rydberg-Molekül wird die Kollektivanregung nur auf die Grundzustandsatompaare aufgeteilt, die sich im richtigen Abstand zur Bildung eines Moleküls befinden. Von denen gibt es ungefähr eine Größenordnung weniger als Grundzustandsatome [25].
Die Dichte der Atomwolke ist inhomogen und deshalb ist die kollektive Rabifrequenz in der Atomwolke ortsabhängig. Ein Rydbergatom, das mitten in der Wolke liegt, wo die Dichte am größten ist, hat viel mehr Nachbaratome mit denen es die Anregung teilen kann, als ein Rydbergatom am Rand der Atomwolke. Deshalb werden immer viele kollektive Rabifrequenzen angeregt. Da eine Überlagerung der Rabifrequenzen gemessen wird, sieht man die einzelnen Rabisozillationen nicht. Die Dichten, die niedrig genug wären, um beim Rydbergatom eine Anregung von einem oder nur einigen wenigen Atomen zu erreichen, könnnen mit dem jetzigen Aufbau nicht erreicht werden. Aber die Dichten, die bei den Rydberg-Molekül von nöten sind, können erreicht werden, da sie viel höher sind. So könnte man die Rabioszillation eines einzelnen Rydberg-Moleküls oder die kollektiven Rabioszillationen von wenigen Rydberg-Molekülen versuchen zu messen. Bei der Kollektivanregung müsste man zumindest am Anfang die Andeutung der verschiedenen Rabioszillationen sehen.

Bei Rydbergatomen deren Bahndrehimpuls $l > 3$ ist, sind die Unterniveaus für eine Hauptquantenzahl entartet, weil es für $l > 3$ keinen Quantendefekt gibt. Das führt dazu, dass das effektive Bindungspotential für die Rydberg-Moleküle ca. drei Größenordnungen [25] tiefer ist als bei kleineren Bahndrehimpulsen. Diese Rydberg-Moleküle, die sogenannten Trilobites, haben auch ein sehr großes Dipolmoment.
Es ist nicht möglich durch einen Zwei-Photonen-Prozess – mit dem bisher angeregt wurde – von einem S-Zustand in einen Zustand anzuregen, der einen größeren Bahndrehimpuls hat als $l = 1$. Für höhere Bahndrehimpulse müsste die Anregung entweder durch einen Mehr-Photonen-Prozess stattfinden. Dabei werden die Atome nicht nur durch die beiden Laser angeregt, sondern man strahlt bei der Anregung auch noch Mikrowellen mit der entsprechenden Wellenlänge ein. Eine andere Möglichkeit wäre, dass man dem S-Zustand, in den die Rydberg-Moleküle angeregt werden, noch Zustände mit höheren Bahndrehimpulsen beimischt. Das erreicht man durch das Anlegen von entsprechenden elektrischen Feldern.

Anhang

Anhang A

Spektren zum Zeeman-Effekt

Die Messungen zu den Spektren in den Kapiteln 6 und 6.2 sind hier abgebildet. Die gemessenen Spektren wurden zur besseren Sichtbarkeit vertikal versetzt.

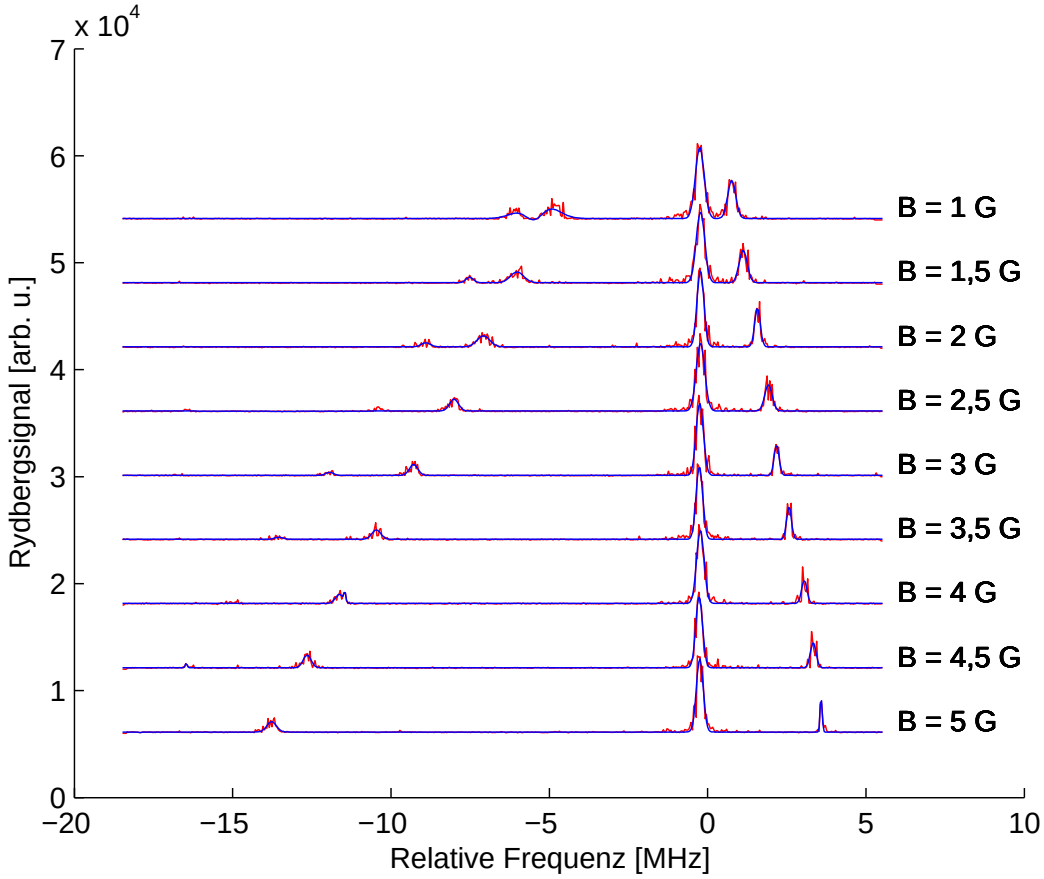

Abbildung A.1: Die Spektren zu dem Atomzustand 35 $S_{\frac{1}{2}}$ im Magnetfeld. Die Messung ist *rot* und die angepassten Gaußkurven sind *blau* abgebildet.

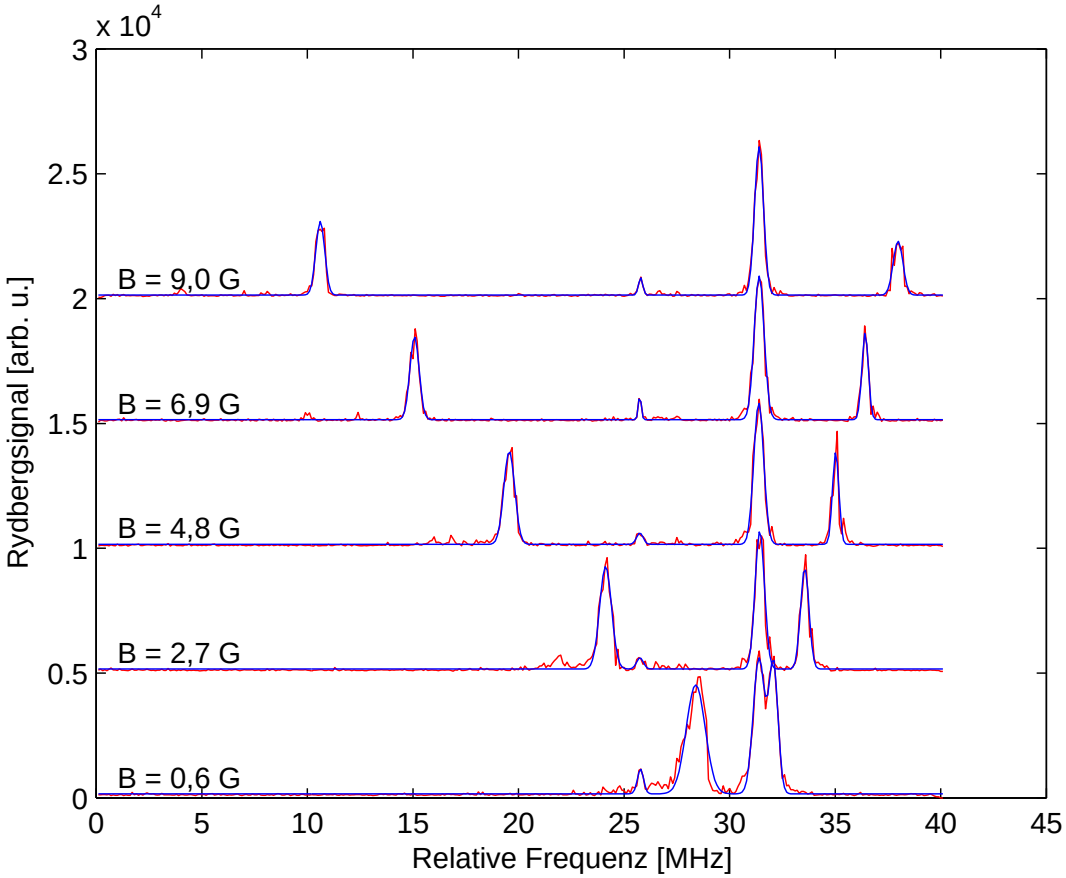

Abbildung A.2: Die Spektren zu dem Atomzustand 43 $S_{\frac{1}{2}}$ im Magnetfeld. Die Messung ist *rot* und die angepassten Gaußkurven sind *blau* abgebildet.

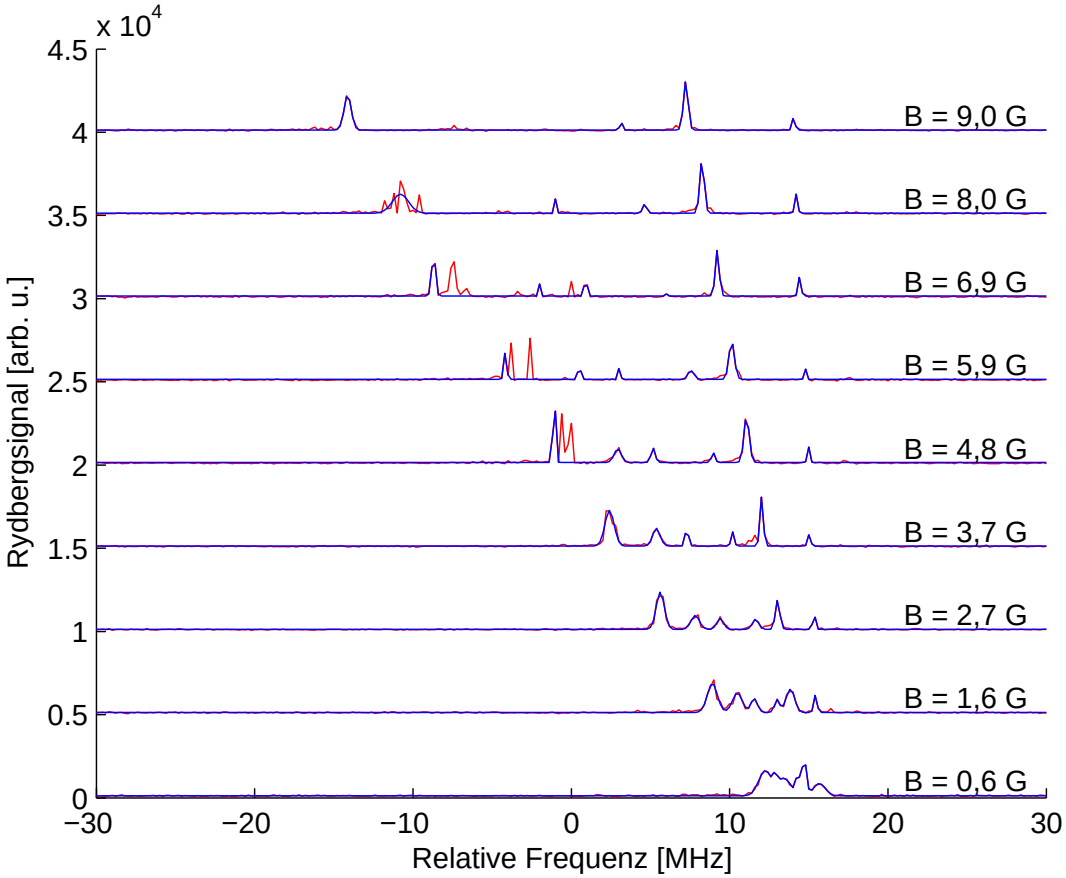

Abbildung A.3: Die Spektren zu dem Atomzustand 46 $D_{\frac{3}{2}}$ im Magnetfeld. Die Messung ist *rot* und die angepassten Gaußkurven sind *blau* abgebildet.

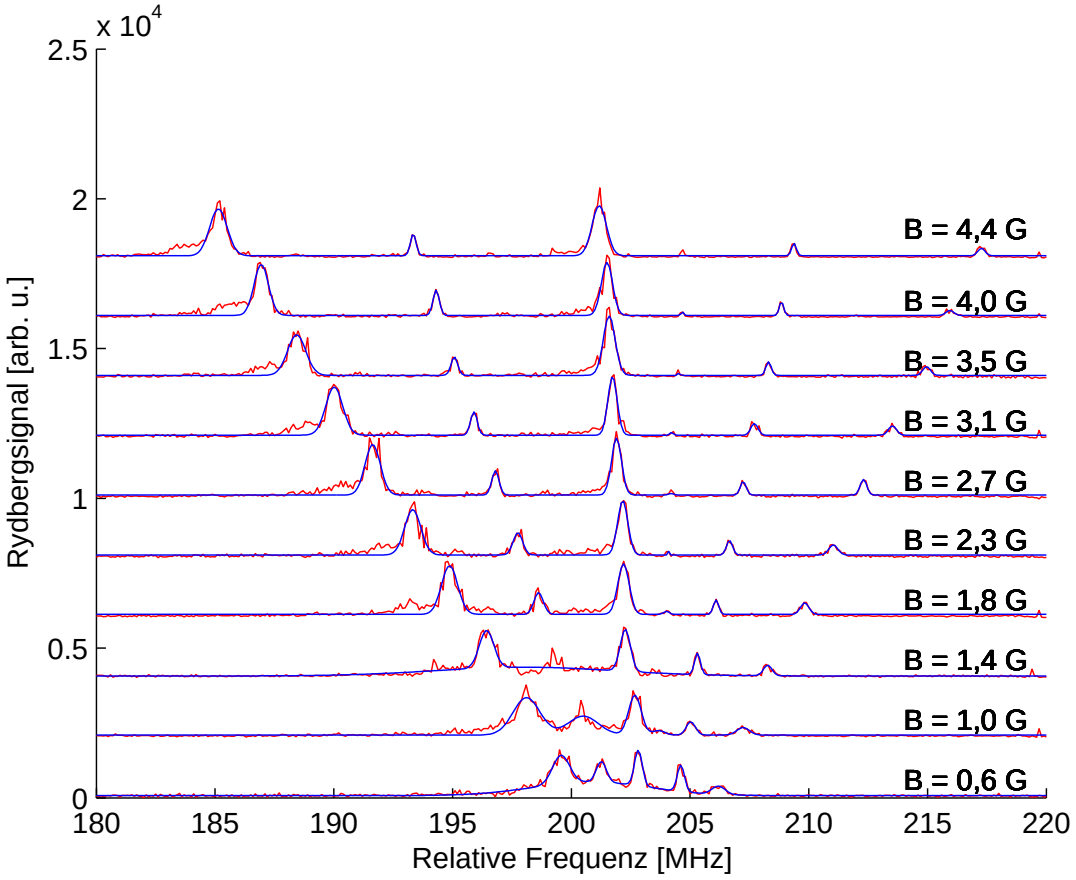

Abbildung A.4: Die Spektren zu dem Atomzustand 46 $D_{\frac{5}{2}}$ im Magnetfeld. Die Messung ist *rot* und die angepassten Gaußkurven sind *blau* abgebildet.

Bei den Molekülspektren sind nur die gemessenen Spektren abgebildet. An alle Spektren gleichzeitig konnte das MATLAB-Programm keine Gaußkurven anpassen. Deshalb wurde bei der Auswertung zuerst an die magnetfeldunabhängigen Spektrallinien die Gaußkurve angepasst. Diese wurde dann von den Messwerten abgezogen. An die übrige(n) Linie(n) wurde(n) dann wieder Gaußkurven angepasst.

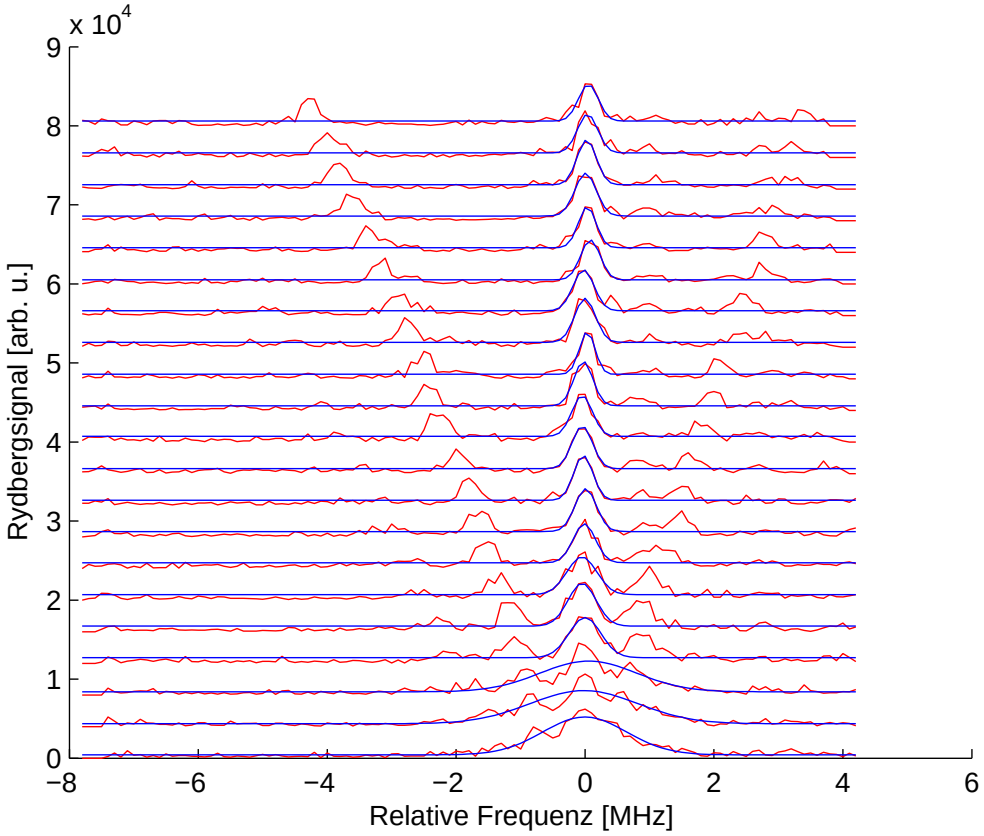

Abbildung A.5: Die Spektren zu dem Molekülzustand $^3\Sigma_1$(35s - 5s) im Magnetfeld. Die Messung ist *rot* und die angepassten Gaußkurven sind *blau* abgebildet.

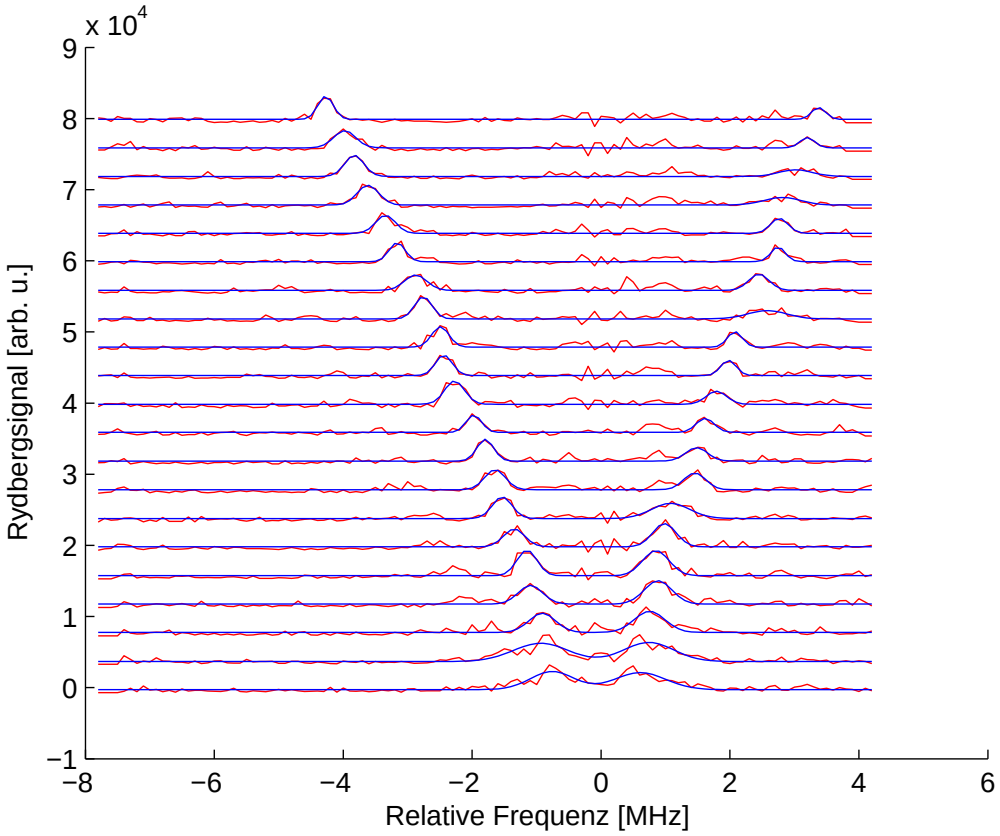

Abbildung A.6: Die Spektren zu dem Molekülzustand $^3\Sigma_1$(35s - 5s) im Magnetfeld nachdem das mittlere Spektrum von Abb.(A.5) abgezogen wurde. Die Messung ist *rot* und die angepassten Gaußkurven sind *blau* abgebildet.

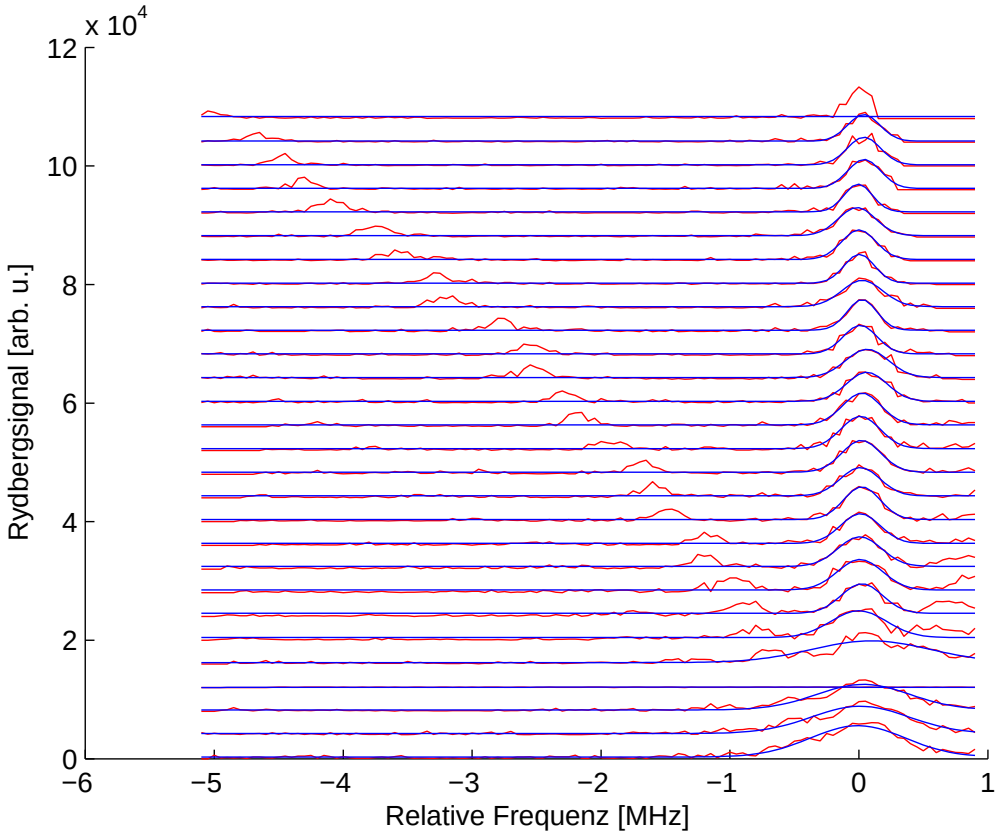

Abbildung A.7: Die Spektren zu dem Molekülzustand $^3\Sigma_1$(35s - 5s) im Magnetfeld. Das Spektrum wurde feiner aufgenommen als das Spektrum in Abb.(A.5). Die Messung ist *rot* und die angepassten Gaußkurven sind *blau* abgebildet.

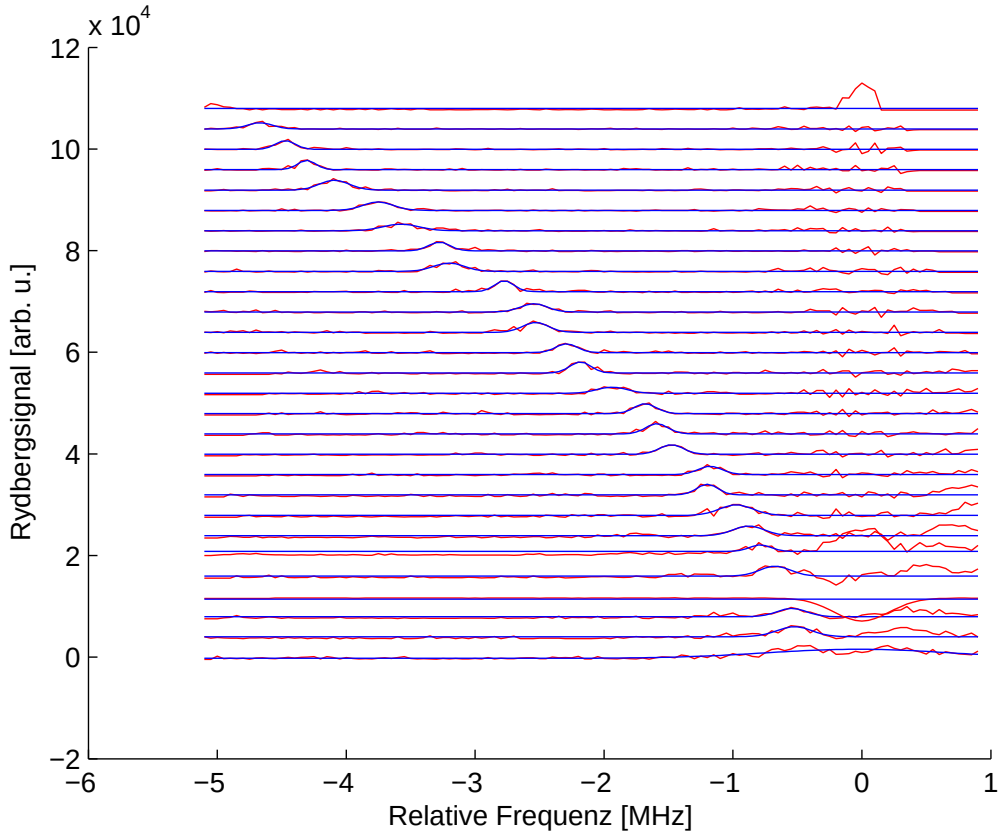

Abbildung A.8: Die Spektren zu dem Molekülzustand $^3\Sigma_1$(35s - 5s) im Magnetfeld nachdem das mittlere Spektrum in Abb.(A.7) abgezogen wurde. Die Messung ist *rot* und die angepassten Gaußkurven sind *blau* abgebildet.

Literatur

[1] G. KIRCHHOFF und R. BUNSEN. „Chemische Analyse durch Spectralbeobachtungen“. In: *Annalen der Physik* 186.6 (1860), S. 161–189.

[2] N BOHR. „On the Constitution of Atoms and Molecules“. In: *Phil Mag* 26.151 (1913), S. 1–25.

[3] N. F. RAMSEY. „A New Molecular Beam Resonance Method“. In: *Physical Review* 76.7 (1949), S. 996–996.

[4] I. SOLOMON. „Rotary Spin Echoes“. In: *Physical Review Letters* 2.7 (1959), S. 301–302.

[5] N. C. WONG, S. S. KANO und R. G. BREWER. „Optical rotary echoes“. In: *Physical Review A: General Physics* 21.1 (1980), S. 260–267.

[6] C. COHEN-TANNOUDJI, B. DIU und F. LALOË. *Quantenmechanik*. Bd. 2. 2. Walter de Gruyter, 1999.

[7] A. GRABOWSKI. „Aufbau einer Messapparatur zur Laserkühlung und hochauflösende Rydberg-Spektroskopie an ^{87}Rb-Atomen“. Doktorarbeit. Universität Stuttgart, 2006.

[8] L. H. THOMAS. „The Motion of the Spinning Electron“. In: *Nature* 117 (2945 1926), S. 514.

[9] W. DEMTRÖDER. *Experimentalphysik*. Bd. 3. 3. Springer, 2005.

[10] C.-J. LORENZEN und K. NIEMAX. „Quantum Defects of the $n^2P_{1/2,3/2}$ Levels in ^{39}K I and ^{85}Rb I“. In: *Physica Scripta* 27.4 (1983), S. 300.

[11] W. LI, I. MOURACHKO, M. W. NOEL und T. F. GALLAGHER. „Millimeter-wave spectroscopy of cold Rb Rydberg atoms in a magneto-optical trap: Quantum defects of the *ns* , *np* , and *nd* series“. In: *Physical Review A: General Physics* 67.5 (2003), S. 052502.

[12] S. A. LEE, J. HELMCKE, J. L. HALL und B. P. STOICHEFF. „Doppler-free two-photon transitions to Rydberg levels: convenient, useful, and precise reference wavelengths for dye lasers“. In: *Optics Letters* 3.4 (1978), S. 141–143.

[13] B. P. STOICHEFF und E. WEINBERGER. „Doppler-free two-photon absorption spectrum of rubidium“. In: *Canadian Journal of Physics* 57.12 (1979), S. 2143–2154.

[14] I. JOHANSSON. „Spectra of the Alkali Metals in the Lead-Sulphide Region“. In: *Arkiv för Fysik* 20 (1961), S. 135–146.

[15] A. EINSTEIN. „Zur Quantentheorie der Strahlung“. In: *Physikalische Zeitschrift* 18 (1917), S. 121.

[16] C. J. FOOT. *Atomic Physics*. Oxford University Press, 2005.

[17] T. F. GALLAGHER. *Rydberg Atoms*. Cambridge University Press, 1994.

[18] I. I. BETEROV, I. I. RYABTSEV, D. B. TRETYAKOV und V. M. ENTIN. „Quasiclassical calculations of blackbody-radiation-induced depopulation rates and effective lifetimes of Rydberg nS, nP, and nD alkali-metal atoms with $n \leq 80$“. In: *Phys. Rev. A* 79 (5 2009), S. 052504.

[19] H. HELM. *Dissipation in der Licht-Atom Wechselwirkung*. Vorlesungsskript. Universität Freiburg, 2006.

[20] I. BLOCH. *Licht-Atom Wechselwirkung im Zwei-Niveau System*. Vorlesungsskript. Johannes-Gutenberg-Universität, 2003.

[21] A. LENGWENUS. „Manipulation der internen und externen Freiheitsgrade neutraler Atome in optischen Mikropotentialen“. Doktorarbeit. TU Darmstadt, 2008.

[22] R. LÖW. „A versatile setup for experiments with Rubidium Bose-Einstein condensates: From optical lattices to Rydberg matter“. Doktorarbeit. Universität Stuttgart, 2006.

[23] R. HEIDEMANN. „Rydberg Excitation of Bose-Einstein Condensates: Coherent Collective Dynamics“. Doktorarbeit. Universität Stuttgart, 2008.

[24] R. DINTER. „Aufbau und Charakterisierung einer Magnetfalle zur simultanen Speicherung von ^{40}K und ^{87}Rb“. Diplomarbeit. Universität Hamburg, 2004.

[25] V. BENDKOWSKY. „Ultralong-range rydberg molecules: investigation of a novel binding“. Doktorarbeit. Universität Stuttgart, 2010.

[26] J. B. BALEWSKI. „Hochauflösende Photoassoziationsspektroskopie von Rydberg-Dimeren und Trimeren“. Diplomarbeit. Universität Stuttgart, 2009.

[27] G. C. BJORKLUND. „Frequency-modulation spectroscopy: a new method for measuring weak absorptions and dispersions“. In: *Optics Letters* 5.1 (1980), S. 15–17.

[28] R. W. MOLOF, H. L. SCHWARTZ, T. M. MILLER und B. BEDERSON. „Measurements of electric dipole polarizabilities of the alkali-metal atoms and the metastable noble-gas atoms“. In: *Physical Review A* 10.4 (1974), S. 1131–1140.

[29] W. NOLTING. *Grundkurs Theoretische Physik: Quantenmechanik*. Bd. 5. 2. Zimmermann-Neufang, 1993.

[30] J. M. BLATT und J. D. JACKSON. „On the Interpretation of Neutron-Proton Scattering Data by the Schwinger Variational Method“. In: *Physical Review* 76.1 (1949), S. 18–37.

[31] L. SPRUCH, T. F. O'MALLEY und L. ROSENBERG. „Modification of Effective-Range Theory in the Presence of a Long-Range Potential“. In: *Physical Review Letters* 5.8 (1960), S. 375–377.

[32] O. HINCKELMANN und L. SPRUCH. „Low-Energy Scattering by Long-Range Potentials“. In: *Physical Review A* 3.2 (1971), S. 642–648.

[33] A. OMONT. „On the theory of collisions of atoms in rydberg states with neutral particles“. In: *J. Phys. France* 38.11 (1977), S. 1343–1359.

[34] C. BAHRIM und U. THUMM. „Low-lying $^3P^o$ and $^3S^e$ states of $\mathrm{Rb}^-, \mathrm{Cs}^-$, and Fr^-“. In: *Phys. Rev. A* 61.2 (2000), S. 022722.

[35] I. I. FABRIKANT. „Interaction of Rydberg atoms and thermal electrons with K, Rb and Cs atoms“. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 19.10 (1986), S. 1527.

[36] C. BAHRIM, U. THUMM und I. I. FABRIKANT. „^{3}S^e and ^{1}S^e scattering lengths for e$^-$ + Rb, Cs and Fr collisions“. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 34.6 (2001), S. L195.

[37] D. A. STECK. *Rubidium 87 D Line Data*. Techn. Ber. Revision 1.6. Los Alamos National Laboratory, 2003.

[38] B. BUTCHER, J. NIPPER, J. B. BALEWSKI, L. KUKOTA, V. BENDKOWSKI, R. LÖW und T. PFAU. „Atom-molecule coherence for ultralong-range Rydberg dimers“. In: *Nature Physics* 6 (2010), S. 022722.

[39] B. BUTCHER. „A Rydberg Interferometer“. Doktorarbeit. Universität Stuttgart, 2011.

[40] C. COHEN-TANNOUDJI, B. DIU und F. LALOË. *Quantenmechanik*. Bd. 1. 3. Walter de Gruyter, 2007.

[41] B. BUTSCHER, V. BENDKOWSKY, J. NIPPER, J. B. BALEWSKI, L. KUKOTA, R. LÖW, T. PFAU, W. LI, T. POHL und J. M. ROST. „Lifetimes of ultralong-range Rydberg molecules in vibrational ground and excited states“. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 44.18 (2011), S. 184004.