



Doctoral Thesis

Multistage Zeeman deceleration of atoms and molecules

Author(s):

Wiederkehr, Alex William

Publication Date:

2012

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-007297214> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

DISS. ETH Nr. 20294

Multistage Zeeman deceleration of atoms and molecules

A dissertation submitted to

ETH ZURICH

for the degree of

Doctor of Sciences

presented by

Alex William Wiederkehr

Dipl. Phys. ETH Zürich

born 19th of January 1984

citizen of Zurich ZH, Switzerland

to be accepted on the recommendation of

Prof. Dr. F. Merkt, examiner

Prof. Dr. T. Esslinger, co-examiner

2012

Abstract

A modular multistage Zeeman decelerator consisting of an array of solenoids has been developed to control the velocity of cold, paramagnetic atoms and molecules in supersonic beams. The translational motion these atoms and molecules was manipulated with high precision by exploiting the interaction between their magnetic moments and time-dependent inhomogeneous magnetic fields. Deceleration was achieved by pulsing high currents (up to 300 A) through the solenoids of the decelerator with pulse sequences calculated to preserve the phase-space density of the atomic and molecular samples while removing a preset amount of kinetic energy. For the operation of the multistage Zeeman decelerator, solenoids and electronic units were developed to generate strong magnetic-field pulses (> 2 T) with rise and fall times of only a few microseconds. An accurate three-dimensional particle-trajectory simulation program has been developed to analyze the deceleration process and optimize its efficiency. This software was thoroughly tested by systematic comparison with experimental results and enabled, in combination with measurements, the complete characterization of the spatial and velocity distributions of the decelerated and trapped atoms for different sets of experimental conditions. The program was essential to achieve a complete interpretation of the dynamics of the deceleration process and to devise a strategy to efficiently load the decelerated atoms and molecules into magnetic quadrupole traps.

In a first experiment, hydrogen atoms seeded in a supersonic expansion of Kr have been decelerated from an initial velocity of 435 m/s to final velocities as low as 107 m/s in a 12-stage Zeeman decelerator. The operation of the decelerator has been analyzed by comparing the results of numerical particle-trajectory simulations with those of independent measurements of the velocity distribution by ion time-of-flight mass spectrometry following photoionization of the decelerated atoms. The velocity distribution of the decelerated atom cloud was found to have a half width at half maximum of 25 ± 12 m/s corresponding to a temperature of ~ 40 mK.

The phase stability of the multistage-Zeeman-deceleration process has been investigated by numerical particle-trajectory simulations and experimental measurements on deuterium atoms in a 24-stage Zeeman decelerator. A one-dimensional analytical model of the phase stability in a multistage Zeeman decelerator was adapted from a one-dimensional model of phase stability in a multistage Stark decelerator and compared with the results of one- and three-dimensional particle-trajectory simulations. The comparison, which included the analysis of the effects of finite switch-on and switch-off times of the deceleration pulses, revealed that transverse effects in the decelerator lead to a considerable reduction of the

phase-space acceptance at low values of the deceleration phase angle and an enhancement at high values. Optimal combinations of deceleration phase angles and currents, by which a preset amount of kinetic energy can be removed from deuterium atoms in a pulsed supersonic beam, was determined by simulations for a 24-stage decelerator. Quantitative analysis of the phase-space acceptance revealed that, for the decelerator developed in the realm of this dissertation, optimal deceleration conditions are achieved at values of the deceleration phase angle between 45° and 55° . This conclusion was examined and confirmed by measurements. Alternative approaches to generate optimal deceleration pulse sequences, such as the implementation of evolutionary algorithms or the use of higher-order modes of operation of the decelerator, were also investigated.

The extension of the multistage Zeeman decelerator to the deceleration of heavier atoms and molecules with a lower magnetic-moment-to-mass ratio has been investigated by the deceleration of metastable neon atoms in the 3P_2 state, from an initial velocity of 580 m/s to final velocities as low as 105 m/s, using a 91-stage decelerator. The lowest velocities have been obtained by a removal of more than 95% of the initial kinetic energy of the particles. The phase-space distribution of the cold, decelerated atoms was characterized by time-of-flight and imaging measurements, from which a temperature of 10 mK was determined in the moving frame of the decelerated sample. In combination with particle-trajectory simulations, these measurements allowed the determination of the phase-space acceptance of the decelerator. The degree of isotope separation that can be achieved by multistage Zeeman deceleration was also studied by performing experiments with pulse sequences generated for ^{20}Ne and ^{22}Ne . The experiments revealed that the separation of the lightest isotope by multistage Zeeman deceleration is possible using deceleration sequences optimized for its larger magnetic-moment-to-mass ratio.

The beam velocities reached by multistage Zeeman deceleration of hydrogen and deuterium atoms were slow enough that the decelerated samples could be loaded into magnetic traps. In two separate experiments, magnetic trapping of cold H and D atoms was achieved. In the first one, hydrogen atoms were slowed from 520 m/s to 100 m/s in a 12-stage Zeeman decelerator and loaded into a magnetic quadrupole trap by rapidly switching the fields of the trap solenoids. The magnetic trapping of the hydrogen samples represented the first reported experimental realization of magnetic trapping after multistage Zeeman deceleration. In the second experiment, deuterium atoms were slowed from an initial velocity of 475 m/s to zero velocity in the laboratory frame in a 24-stage Zeeman decelerator using an irregular sequence of phase angles. The trap loading was optimized by monitoring and suppressing the observed reflection of the atoms by the field gradient of the back solenoid of the trap.

The optimization of deceleration pulse sequences for the Zeeman shift of a particle in a single magnetic sublevel results in the quantum-state selectivity of the deceleration process. This intrinsic quantum-state selectivity of the multistage-Zeeman-deceleration

process has been employed to prepare cold samples of oxygen molecules with full orientation of the angular-momentum vector. Cold samples of oxygen molecules in supersonic beams have been decelerated from initial velocities of 390 m/s and 450 m/s to final velocities in the range between 150 m/s and 280 m/s using a 90-stage Zeeman decelerator. (2+1) resonance-enhanced-multiphoton-ionization (REMPI) spectra of the $3s\sigma_g \ ^3\Pi_g \ (C) \ (v' = 2) \leftarrow X \ ^3\Sigma_g^-(v'' = 0)$ two-photon transition of O_2 have been recorded to characterize the state selectivity of the deceleration process. The decelerated molecular sample was found to consist exclusively of molecules in the $J'' = 2$ spin-rotational component of the $X \ ^3\Sigma_g^-(v'' = 0, N'' = 1)$ ground state of O_2 . Measurements of the REMPI spectra using linearly polarized laser radiation with polarization vector parallel to the decelerator axis, and thus to the magnetic-field vector of the deceleration solenoids, further showed that only the $m''_J = 2$ magnetic sublevel of the $N'' = 1, J'' = 2$ spin-rotational level is populated in the decelerated sample, which therefore is characterized by a fully oriented total-angular-momentum vector. By maintaining a weak quantization magnetic field beyond the decelerator, the polarization of the sample could be maintained over the 5 cm distance separating the last deceleration solenoid and the detection region.

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Doktorarbeit wurde ein modularer, mehrstufiger Zeeman-Abbremsers zur Kontrolle der Geschwindigkeit kalter paramagnetischer Atome und Moleküle in Überschallstrahlen entwickelt. Zum Abbremsen der Teilchen wird die Wechselwirkung zwischen ihrem magnetischen Dipolmoment und zeitabhängigen, inhomogenen Magnetfeldern ausgenutzt. Dazu werden hohe Ströme mit einer angepassten zeitlichen Abfolge durch in einer Reihe angeordnete Spulen gepulst, wodurch die Bewegungsenergie der paramagnetischen Teilchen bei einer gleichzeitigen Erhaltung der Phasenraumdichte reduziert wird. Für den Betrieb des mehrstufigen Zeeman-Abbremsers wurden Spulen und Elektronikeinheiten entwickelt, die das Ein- und Ausschalten hoher Magnetfelder (> 2 T) auf Zeitskalen von wenigen Mikrosekunden ermöglichen. Zudem wurde ein Simulationsprogramm zur numerischen Analyse der Teilchentrajektorien entworfen und implementiert, welches tiefere Einblicke in den Abbremsprozess sowie eine Optimierung seiner Effizienz erlaubte. Durch den systematischen Vergleich mit experimentellen Resultaten, z.B. zeitaufgelöste Detektion der Teilchen nach Beendigung des Abbremsvorgangs oder Messungen ihrer Phasenraumverteilung, konnte das Simulationsprogramm detailliert überprüft werden. Dieses Programm war essentiell für die Interpretation der Dynamik des Abbremsprozesses und ermöglichte die Entwicklung einer effizienten Strategie, um abgebremste Atome und Moleküle in eine magnetische Quadrupolfalle zu laden. Des Weiteren konnte durch eine Kombination aus Simulationen und Messungen die Orts- wie auch die Geschwindigkeitsverteilung der gebremsten und eingefangenen Teilchen für verschiedene experimentelle Parameter rekonstruiert werden.

In einem ersten Experiment wurden Wasserstoffatome in einem Überschallstrahl des Trägergases Krypton mit Hilfe eines 12-stufigen Zeeman-Abbremsers von einer Anfangsgeschwindigkeit von 435 m/s auf eine Endgeschwindigkeit von 107 m/s abgebremst. Die Funktionsweise des Zeeman-Abbremsers konnte durch den Vergleich von numerischen Simulationen der Teilchentrajektorien mit davon unabhängigen Messungen der Geschwindigkeitsverteilung durch zeitaufgelöste Ionenmassenspektroskopie analysiert werden. Die Halbwertsbreite der Geschwindigkeitsverteilung der abgebremsten Atome betrug 25 ± 12 m/s, was einer Temperatur von ~ 40 mK entspricht.

Die Phasenstabilität des Abbremsprozesses wurde einerseits durch Simulationen von Teilchentrajektorien in mehrstufigen Zeeman-Abbremsern und andererseits durch Messungen mit Deuteriumatomen in einem 24-stufigen Zeeman-Abbremsers untersucht. Dazu wurde ein analytisches, eindimensionales Modell der Phasenstabilität in einem mehrstufigen Zeeman-Abbremsers entwickelt, welches auf einem eindimensionalen Modell der Phasenstabilität in

einem mehrstufigen Stark-Abbremsers basiert. Anschliessend wurde es mit Simulationen von ein- und dreidimensionalen Teilchentrajektorien verglichen. Dieser Vergleich, der auch eine Analyse der endlichen Ein- und Ausschaltzeiten der abbremsenden Magnetfelder beinhaltet, machte deutlich, dass die Einflüsse der radialen Magnetfeldverteilung während des Abbremsvorganges zu einer Reduktion der Phasenraumakzeptanz bei kleinen Phasenwinkeln sowie einer Erhöhung bei grossen Phasenwinkeln führen. Mit Hilfe von Simulationen wurde die optimale Kombination von Phasenwinkeln und Spulenströmen ermittelt, welche in einem 24-stufigen Zeeman-Abbremsers die kinetische Energie von Deuteriumatomen um einen zuvor definierten Betrag reduziert. Die quantitative Analyse der Phasenraumakzeptanz ergab, dass der im Rahmen dieser Dissertation entwickelte Zeeman-Abbremsers bei einem Phasenwinkel zwischen 45° und 55° optimal betrieben wird. Zusätzlich wurden alternative Ansätze zur Erzeugung optimaler Pulssequenzen für das Abbremsen von Teilchen untersucht, wie zum Beispiel der Einsatz evolutionärer Algorithmen oder die Verwendung höherer Moden des Zeeman-Abbremsers.

Die Erweiterung des Zeeman-Abbremsers auf schwerere Atome und Moleküle mit einem kleinerem Verhältnis von magnetischem Moment zur Masse wurde durch Abbremsen von metastabilen Neon Atomen im 3P_2 Zustand von einer Anfangsgeschwindigkeit von 580 m/s bis auf Endgeschwindigkeiten von 105 m/s in einem 91-stufigen Zeeman-Abbremsers untersucht. Die niedrigsten dabei erreichten Geschwindigkeiten entsprechen einer Reduktion der anfänglichen kinetischen Energie der Teilchen um 95 %. Durch zeit- und orts aufgelöste Messungen wurde die Phasenraumverteilung der kalten, abgebremsten Atome rekonstruiert und eine Temperatur von 10 mK im Referenzsystem der sich bewegenden Atomwolke ermittelt. Diese Messungen ermöglichten, in Kombination mit Simulationen der Teilchentrajektorien, eine Bestimmung der Phasenraumakzeptanz des verlängerten Zeeman-Abbremsers. Für die am häufigsten auftretenden Isotope ^{20}Ne und ^{22}Ne wurde untersucht, inwieweit sich mit einem mehrstufigen Zeeman-Abbremsers eine Isotopentrennung auf Grund der unterschiedlichen Verhältnisse von magnetischem Moment zu Masse erreichen lässt. Diese Experimente zeigten, dass es möglich ist, das leichteste Isotop zu separieren, indem die Pulssequenz für sein grösseres Verhältnis von magnetischem Moment zur Masse optimiert wird.

Die durch mehrstufiges Zeeman-Abbremsen erzielten Strahlgeschwindigkeiten von Wasserstoff und Deuterium Atomen waren hinreichend niedrig, um die abgebremsten Atome in eine magnetische Quadrupolfalle zu laden. Dies konnte in zwei unabhängigen Experimenten für kalte Wasserstoff- und Deuteriumatome gezeigt werden. Im ersten Experiment wurden Wasserstoffatome in einem 12-stufigen Zeeman-Abbremsers von einer Anfangsgeschwindigkeit von 520 m/s auf 100 m/s abgebremst und danach durch schnelles Schalten der Magnetfelder der Fallenspulen in eine magnetische Falle geladen. Dieses Einfangen von Wasserstoffatomen war das erste Experiment, welches erfolgreiches magnetisches Einfangen nach mehrstufigem Zeeman-Abbremsen demonstrierte. Im zweiten Experiment wurden Deuteriumatome mit Hilfe einer irregulären Pulssequenz in einem 24-stufigen Zeeman-

Abbremsen von 475 m/s zum Stillstand im Laborsystem gebracht. Das Laden der Magnetfalle wurde dabei durch die Unterdrückung der beobachtbaren Reflektion der Teilchen am Magnetfeldgradienten der hinteren Fallenspule optimiert.

Die Berechnung der Abbremssequenzen erfolgt für den Zeeman-Effekt eines ausgewählten magnetischen Subniveaus. Die daraus resultierende intrinsische Quantenzustandsselektivität des mehrstufigen Zeeman-Abbremsens wurde angewandt, um kalte Sauerstoff Moleküle mit vollständig orientiertem Drehimpulsvektor zu erzeugen. Dazu wurden die O₂ Moleküle mit Hilfe eines 90-stufigen Zeeman-Abbremsers von Anfangsgeschwindigkeiten zwischen 390 m/s und 450 m/s im Überschallstrahl auf Endgeschwindigkeiten zwischen 150 m/s und 280 m/s abgebremst. Die Zustandsselektivität des Abbremsprozesses wurde durch (2+1) resonanzverstärkte Mehrphotonenionisations-(REMPI)-Spektroskopie des $3s\sigma_g\ ^3\Pi_g\ (C)\ (v' = 2) \leftarrow X\ ^3\Sigma_g^-\ (v'' = 0)$ Zweiphotonenüberganges in O₂ untersucht. Die Messungen zeigten, dass die abgebremsten Moleküle nur die $J'' = 2$ Spinrotationskomponente des $X\ ^3\Sigma_g^-\ (v'' = 0, N'' = 1)$ Grundzustandes von O₂ besetzen. REMPI Spektren wurden mit linear polarisierter Laserstrahlung, deren Polarisationsachse parallel zur Achse des Zeeman-Abbremsers und folglich parallel zum Magnetfeldvektor der Abbremspulen zeigte, aufgenommen. Durch Analyse der Spektren konnte festgestellt werden, dass die abgebremsten Teilchen nur das magnetische Subniveau $m_J'' = 2$ des $N'' = 1, J'' = 2$ Spinrotationszustandes besetzten, und diese daher eine vollständige Orientierung des Gesamtdrehimpulsvektors aufweisen. Durch Aufrechterhalten eines schwachen Quantisierungsfeldes hinter dem Zeeman-Abbremsen war es möglich, die Polarisation der Teilchen über die 5 cm lange Flugstrecke von der letzten Abbremsstufe bis zur Detektionsregion zu erhalten.