

Kollektive Effekte und
stoßinduzierte Redistributionskühlung
in dichten atomaren Gasen

Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades (Dr. rer. nat.)

der

Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der

Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

vorgelegt von

Ulrich Vogl

aus Neukirchen b. Heiligen Blut

Bonn im April 2010

Angefertigt mit Genehmigung
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn.

1. Gutachter: Prof. Dr. Martin Weitz
2. Gutachter: Prof. Dr. Dieter Meschede

Tag der Promotion: 28.04.2010

Erscheinungsjahr: 2010

Diese Dissertation ist auf dem Hochschulschriftenserver der ULB Bonn <http://hss.ulb.uni-bonn.de/diss> online elektronisch publiziert.

Zusammenfassung

Manchmal lassen sich in der Physik auch aus alten Ideen neue Funken schlagen. Der großartige Gedanke, Materie mit Licht zu kühlen, wurde 1929 von Peter Pringsheim eher beiläufig in die Welt gesetzt. Während Dopplerkühlung ansetzte, Teile der Physik zu revolutionieren, wurde Pringsheims Idee in neuer Form ein zweites Mal 1978 von Paul Berman und Stig Stenholm formuliert. Ohne dies zunächst gewusst zu haben, wurde in dieser Arbeit das 'klassische' Gebiet der atomaren Druckverbreiterung neu untersucht, und Pringsheims ursprüngliche Idee konnte realisiert werden.

In dieser Arbeit werden Untersuchungen an dichten atomaren Gasgemischen, bestehend aus atomarem Rubidium und einigen hundert Bar eines Edelgases, beschrieben. Optische Übergänge werden unter diesen Bedingungen extrem stark verbreitert, wobei die typische erreichte Linienbreite in der Größenordnung der thermischen Energie in Frequenzeinheiten, d.h. $k_B T/h$, liegt. Zusätzlich können während der Stöße stattfindende optische Übergänge Energie zwischen den äußeren und inneren Freiheitsgraden der Atome umverteilen. Diese Eigenschaft wird hier in zwei Ansätzen betrachtet, mit theoretischen Modellen beschrieben und experimentell umgesetzt. Für die Untersuchungen bei extrem hohen Puffergasdrücken wurden Spektroskopiezellen entwickelt, mit denen man über einen weiten Bereich Temperatur, Puffergasdruck und Rubidium-Teilchenzahldichte variieren kann.

Im Rahmen der Arbeit wurde die Thermalisierung der inneren Freiheitsgrade der Rubidiumatome am thermischen Bad der Puffergasatome untersucht. In einem theoretischen Modell wird hierzu die Druckverbreiterung bei stark sättigender Laseranregung im Bild gekoppelter Atom-Licht-Zustände untersucht. Ein Kennzeichen der Thermalisierung der inneren Freiheitsgrade der Rubidiumatome am Puffergasbad, das sich aus diesem Modell ergibt, ist eine drastische Änderung der Linienform des angeregten Zustands. Während man weit ab vom thermischen Gleichgewicht ein Lorentz-förmiges Profil beobachtet, erwartet man bei vollständiger Thermalisierung eine Fermi-Dirac-Verteilung. Experimentell nachgewiesen werden konnte eine starke Asymmetrie der Linienform abhängig von der eingestrahlten Laserintensität. Im Rahmen des zugrundegelegten Modells wird dies als teilweise etabliertes thermisches Gleichgewicht gedeutet.

Um in zukünftigen Experimenten einen stärkeren räumlichen Einschluss und eine zusätzliche Leistungsüberhöhung des Lichts zu realisieren, wurden in weiteren Experimenten metallische Mikroröhrchen in die Hochdruckzelle integriert. Die verwendeten Mikroröhrchen sind eine relativ neue Entwicklung aus der Materialforschung und wurden bisher noch kaum in spektroskopischen Anwendungen genutzt. In dem

untersuchten Hochdrucksystem sind die metallischen Mikroröhrchen eine vielversprechende Alternative zu quarzbasierten Wellenleitern und Resonatoren, die schlecht mit dem heißen und chemisch aggressiven Rubidiumdampf verträglich sind. In ersten Versuchen konnte eine hohe thermische und chemische Stabilität der Mikroröhrchen in der heißen Hochdruckumgebung beobachtet werden. Weitere spektroskopische Untersuchungen zeigten eine Erhöhung der Atom-Licht-Wechselwirkung durch den Einsatz dieser Mikroröhrchen. Da sich diese Mikroröhrchen mit zahlreichen Materialien und mit einer großen Bandbreite in ihrer Form und Größe herstellen lassen, kann ihr Einsatz in Zukunft neue experimentelle Ansätze ermöglichen.

Im Rahmen dieser Arbeit gelangen weiter Experimente zur stoßinduzierten Redistributionskühlung im Hochdruck-Puffergassystem. Das demonstrierte Verfahren stellt einen neuartigen Laserkühlmechanismus dar. Der betrachtete Effekt beruht darauf, dass bei atomaren Stößen die Energieniveaus der Hüllenelektronen verändert werden. Durch einen geeigneten Absorptions-Emissionszyklus während eines Stoßes kann direkt kinetische Energie der Stoßpartner auf Fluoreszenzphotonen übertragen werden. Die Fluoreszenzphotonen können das Gas verlassen und die Temperatur des Gasgemisches wird abgesenkt.

In ersten Grundlagenmessungen, die in dieser Arbeit beschrieben werden, wurde eine relative Kühlung des Gases von 66 K erzielt. Der Nachweis erfolgte über die Vermessung der thermischen Linse, die durch die lokale Abkühlung erzeugt wurde. Zudem konnte die Kühlung durch thermografische Messungen an Saphirfenstern beobachtet werden, die in direkten thermischen Kontakt mit dem gekühlten Gas standen. In jüngster Zeit konnte mit dem beschriebenen Verfahren eine relative Temperaturabsenkung von 527 K erzeugt werden, was einer Absoluttemperatur des gekühlten Gases von 156 K entspricht. Die Kühleffizienz wurde zu etwa 4% der eingestrahnten optischen Leistung bestimmt, was vier Größenordnungen oberhalb der typischen Effizienz der Dopplerkühlung von atomaren Gasen liegt, und vergleichbar oder besser als die Effizienz optischer Kühlung in Festkörpern ist. Die vorgestellte Kühlmethode ermöglicht es erstmals, große Wärmemengen vollkommen berührungsfrei mittels Laserlicht aus dem gekühlten Gasvolumen zu entfernen.

Teile dieser Arbeit sind in folgenden Artikeln veröffentlicht worden:

1. U. Vogl und M. Weitz. Spectroscopy of atomic rubidium at 500 bar buffer gas pressure: Approaching the thermal equilibrium of dressed atom-light states. *Phys. Rev. A* **78**, 011401 (2008).
2. U. Vogl und M. Weitz. Laser cooling by collisional redistribution of radiation. *Nature* **461**, 70 (2009).

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	v
1 Einleitung	1
2 Grundlagen zur atomaren Druckverbreiterung	7
2.1 Impakt-Näherung	8
2.2 Statistische Näherung	10
2.3 Verallgemeinerte Theorie der Druckverbreiterung	12
2.4 Kollisionen in Anwesenheit von Laserstrahlung	13
2.5 Gekoppelte Atom-Licht-Zustände	18
2.6 Optische Kollisionen	22
2.7 Strahlungseinschluss	24
3 Experimenteller Aufbau	27
3.1 Hochdruckzellen	28
3.1.1 Selbstgebaute Zelle	28
3.1.2 Kommerzielle Zelle	29
3.1.3 Betriebsparameter der Zellen	30
3.2 Charakterisierung	32
3.2.1 Lasersystem und Detektion	32
3.2.2 Druckverbreiterung	32
3.2.3 Lebensdauerermessung	33
4 Thermalisierung gekoppelter Atom-Licht-Zustände	39
4.1 Stöße im Dressed-State Bild	39
4.2 Experimentelle Realisierung	41
4.3 Sättigungsverhalten und Thermalisierung	42
4.4 Metallische Wellenleiter und Resonatoren	45
4.5 Schlußbetrachtungen zur Thermalisierung	49
5 Stoßinduzierte Redistributionskühlung	51
5.1 Redistribution der Fluoreszenz	51
5.2 Nachweis von Kühlung mit einer Thermografiekamera	54
5.3 Temperaturmessung mittels thermischer Deflektionsspektroskopie	59
6 Ausblick	67

Inhaltsverzeichnis

A	Thermodynamik optischer Kühlung	71
B	Redistribution von Fluoreszenz in Wasserdampf	75
	Literaturverzeichnis	77
	Lebenslauf	87

1 Einleitung

Die Laserkühlung von dünnen atomaren Gasen, vorgeschlagen von Hänsch und Schawlow [1], hat sich in der Quantenoptik als sehr erfolgreiches Konzept erwiesen. Nach der Realisierung von optischen Molassen und Atomfallen [2, 3, 4, 5], konnten, nach weiterer Verdampfungskühlung, die extrem niedrigen Temperaturen im Nanokelvin-Bereich und nötigen Phasenraumdichten erreicht werden, die zur Bose-Einstein-Kondensation von verdünnten Alkali-Gasen erforderlich sind [6, 7]¹. Inzwischen hat sich diese Form der Laserkühlung fast schon zu einer Standardtechnik entwickelt und ist vielfach Voraussetzung für Präzisionsmessungen und Grundlagenexperimente.

Das Prinzip dieser Laserkühlung besteht darin, einen atomaren Übergang rotverstimmt innerhalb des Dopplerprofils anzuregen, wodurch bevorzugt eine 'schnelle' Geschwindigkeitsklasse in Richtung des Laserstrahls angeregt wird. Dabei wird ein Impuls von $\hbar k$ auf das Atom übertragen, bei der anschließenden spontanen Emission wird das Fluoreszenzphoton in eine zufällige Richtung abgestrahlt, so dass im Mittel die zuvor angeregte Geschwindigkeitsklasse von Atomen gekühlt wird. Durch Überlagerung von sechs gekreuzten Laserstrahlen in den drei Raumrichtungen lassen sich im Kreuzungsvolumen Temperaturen von einigen Mikrokelvin erreichen. Bei der Dopplerkühlung wird zunächst nur Impuls von den Laserphotonen auf Atome übertragen, in der Summe wird schließlich den Atomen kinetische Energie entzogen, das Ensemble wird gekühlt.

Der Grundgedanke, Materie mit Licht zu kühlen, wurde erstmals 1929 von Peter Pringsheim vorgestellt [10]. In der Veröffentlichung 'Zwei Bemerkungen über den Unterschied von Lumineszenz- und Temperaturstrahlung' wird die Idee anhand von Natriumdampf erläutert (Abb. 1.1): Mittels einer schmalbandigen Lichtquelle (Laser waren noch nicht angedacht, die induzierte Emission wurde erst 1928 nachgewiesen), sollte der D1-Übergang von Natrium angeregt werden. Durch Stöße mit Puffergasatomen wird ein Teil der angeregten Atome auf das energetisch höher gelegene D2-Niveau gehoben (genau genommen befinden sich die Feinstruktur-niveaus im detailliertem Gleichgewicht), so dass ein Teil der Atome spontan aus dem D2-Niveau in den Grundzustand relaxiert. Die emittierten Photonen können die zusätzliche Energie aus dem System wegtragen, so dass das Gas netto gekühlt wird.

Die Idee wurde kontrovers diskutiert, es wurde argumentiert, der Ansatz verletze die ersten beiden Hauptsätze [11]. Die Vereinbarkeit mit dem ersten Hauptsatz der Thermodynamik ist schnell ersichtlich, da das gekühlte Gas kein geschlossenes

¹Vor kurzem konnte mit der sogenannten Puffergas-Kühlung [8] ein Bose-Einstein-Kondensat ohne optische Kühlung realisiert werden [9]. Trotz der begrifflichen Nähe hat diese Kühlmethode mit der hier vorgestellten stoßinduzierten Redistributionskühlung wenig zu tun.

1 Einleitung

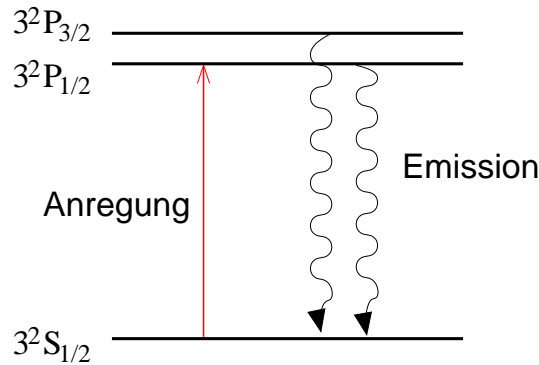


Abbildung 1.1: Gedankenexperiment zur Kühlung von Pringsheim [10]. Gezeigt sind die relevanten Energieniveaus von Natrium. Zunächst wird der D1-Linie angeregt. Die oberen P-Niveaus thermalisieren durch Stöße, so dass sie entsprechend der Boltzmannverteilung bevölkert sind. Die Emission erfolgt aus beiden P-Niveaus, im Mittel ist die Wellenlänge der Fluoreszenzphotonen kürzer als die des zuvor eingestrahelten Lichts.

System bildet; Pumplicht wird in den Kühlkreislauf gespeist, und die Fluoreszenzphotonen werden schließlich außerhalb des Gases absorbiert und heizen die Umgebung auf.

Bezüglich des zweiten Hauptsatzes wurde argumentiert, dass das ausgesendete Licht mehr Energie enthält, als das eingeschickte, womit sich zusätzliche Arbeit verrichten ließe [12]. Landau charakterisierte in direktem Zusammenhang mit dieser Kontroverse die Entropie von Strahlungsfeldern [13]. Betrachtet man den Entropiefloss im Kühlprozess, zeigt sich, dass hier keine Arbeit zum Betrieb eines Perpetuum mobiles aus dem System gewonnen werden kann. Das schmalbandige Pumplicht mit wenig Entropie (im Idealfall bei einem Laser mit Entropie Null) wird in breitbandige isotrope Fluoreszenz umgesetzt [14], der Prozess ist irreversibel.

Ein weiteres Gegenargument zu einer möglichen Kühlung war eher praktischer Natur, und besagte, dass die nötige Quanteneffizienz (das Verhältnis von Fluoreszenzphotonen zu Pumpphotonen) zur Kühlung nicht realisiert werden kann, da der Prozess, der die angeregten Atome auf ein höheres Niveau hebt (in diesem Fall die Puffergasstöße) intrinsisch auch einen nichtradiativen Konkurrenzeffekt bedingt (d.h. Quenching), und somit heizende Konkurrenzeffekte zu groß sind und kein Netto-Kühleffekt zu erwarten ist [11]. Dies entsprach dem damaligen Stand der experimentellen Beobachtungen, konnte allerdings nicht fundamental begründet werden. Ganz im Gegenteil war bereits damals klar, dass zumindest theoretisch eine Quanteneffizienz ≥ 1 möglich ist, was spätestens mit der erfolgreich nachgewiesenen Anti-Stokes Kühlung in Kohlendioxid [15, 16] experimentell bestätigt wurde.

Untersucht wurden in diesen Experimenten Vibrationsübergänge von Kohlendioxid bei 10.6 bzw. $4.3 \mu\text{m}$. In diesem System ist die Quanteneffizienz knapp an der Grenze zu möglicher Kühlung, daher musste bei kleinem Druck gearbeitet werden, um strahlungslose Abregung zu vermeiden. Selbst mit hohen Pumpleistungen konnten nur sehr kleine Abkühlung und insgesamt niedrige Kühleffizienzen von $\sim 10^{-4}$ er-

reicht werden, d.h. nur ein kleiner Bruchteil der eingestrahnten Lichtleistung trägt hier zur Kühlung bei. Ähnlich ineffizient ist bisher Anti-Stokes-Kühlung in Flüssigkeitslösungen mit Farbstoffen [17].²

Wesentlich erfolgreicher ließ sich Anti-Stokes-Kühlung in Festkörpern realisieren. Nach frühen Ansätzen zur Laserkühlung von Festkörpern [18, 19, 20], wurde Mitte der 1990er Jahre Laserkühlung in Erbium-dotierten Gläsern entdeckt [21, 22]. Konzeptionell schließt diese Laserkühlmethode sehr nah an das von Pringsheim entworfene Schema an. Die dotierten Erbiumatome in der Glasmatrix bieten Übergänge, die effizient mit Licht anregbar sind. Die anregbaren Zustände sind dabei durch Energien in der Größenordnung der thermischen Energie bei Raumtemperatur, etwa 25 meV, von darüberliegenden Energieniveaus getrennt. Um Kühlung zu erreichen wird nun der energetisch niedrigste angeregte Zustand bevölkert. Durch Absorption von Phononen, diskreten Gitterschwingungen des Glases, wird ein Teil davon in höhere Zustände gehoben. Durch anschließende spontane Abregung wird im Mittel von den Fluoreszenzphotonen Energie aus dem System entfernt, die zuvor als thermische Energie in den Gitterschwingungen gespeichert war [23, 24]. Inzwischen wurden mehrere mit Seltenen Erden dotierte Gläser und Kristalle geschaffen, die geeignet zur Laserkühlung sind; auch Halbleiter mit direkter Bandlücke konnten bereits gekühlt werden [25, 26]. Die niedrigste erreichte Temperatur bei dieser Form der Laserkühlung liegt aktuell bei 120 K unter Raumtemperatur nach 90 Minuten Kühlung [27]. Bei dieser Kühlmethode wurden Kühleffizienzen von bis zu 3% erreicht [28], die Kühleffizienz nimmt dabei kontinuierlich mit der verfügbaren thermischen Energie $k_B T$ im Glassubstrat ab.

Stoßinduzierte Redistributionskühlung im Zweiniveausystem

Gemeinsam ist den Ansätzen zur Anti-Stokes Laserkühlung, dass sie auf Materialien mit geeigneten Niveauschemata bei gleichzeitig hoher Quanteneffizienz beschränkt sind. Ein Vorschlag zur Laserkühlung von Berman und Stenholm aus dem Jahr 1978 [29] macht weit weniger starke Einschränkungen zu den Kühlübergängen. Das beschriebene Kühlsystem ist nahezu identisch mit dem von Pringsheim vorgeschlagenen, ein mit Puffergas versetztes atomares Gas, mit einer schmalbandigen Lichtquelle bestrahlt. Allerdings hatte man inzwischen ein genaueres Verständnis über Atom-Puffergas-Stöße in Anwesenheit von resonanten Lichtfeldern, und der Effekt auf die Temperatur des Gases wurde genauer betrachtet [30, 31, 32, 33, 34]. Während bei Pringsheims Vorschlag das Atom zunächst angeregt wird und anschließend durch Puffergasstöße ein detailliertes Gleichgewicht mit energetisch darüberliegenden Zuständen hergestellt wird, wird hier nun die Anregung während eines Atom-Puffergasstoßes betrachtet. Relevant wird dies bei Stößen, bei denen die statistische Näherung der Stoßverbreiterung zutrifft. Das anregende Lichtfeld ist dabei weit rot

²Die Kühleffizienz beim Dopplerkühlen ist nochmals um Größenordnungen kleiner, das reicht aber, um typischerweise einige Milliarden Atome sehr schnell sehr tief zu kühlen.

1 Einleitung

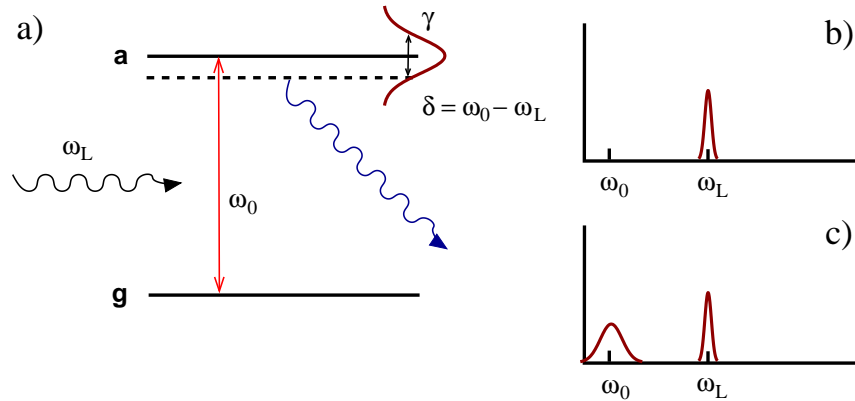


Abbildung 1.2: Külschema nach Berman und Stenholm. Wird ein Atom rot verstimmt angeregt, und erfährt weiter keine Störung, muss es wegen der Energieerhaltung bei derselben Frequenz reemittieren (b). Tritt ein Stoßpartner hinzu, kann dieser einen Teil seiner kinetischen Energie übertragen. Das Atom emittiert anschließend ein energiereicheres Photon (c).

von der Resonanz verstimmt (die Verstimmung δ ist deutlich größer als die Dopplerverbreiterung), bei großer Intensität des anregenden Feldes kann dennoch ein nennenswerter Anteil der Atome angeregt werden. Ohne weiteren Einfluss werden die Atome sich dopplerverbreitert um die Frequenz des anregenden Lichts über Fluoreszenz abregen (Abb. 1.2b). Durch Puffergasstöße mit der typischen Dauer $\tau_c > 1/\delta$ tritt im Fluoreszenzspektrum eine Komponente um die Resonanzfrequenz ω_0 auf (Abb. 1.2c), die auch so interpretiert werden kann, dass beim Stoß kinetische Energie ausgetauscht wird. Bei negativer Verstimmung kann somit über die abgestrahlte Fluoreszenz Energie aus dem System geschafft werden, worauf dieses gekühlt wird, bei positiver Verstimmung tritt Erwärmung auf.

Berman und Stenholm machten bereits konkrete Abschätzungen zur Größe des Effekts, so dass man bei experimentell sinnvollen Laserleistungen (einige W/cm^2), allerdings ohne Berücksichtigung von Konkurrenzeffekten, in der Größenordnung 1 s die kinetische Energie des Gases vollständig entziehen oder verdoppeln könnte. Dies wurde bereits damals von den Autoren als optimistisch gekennzeichnet, deutete aber an, dass der Kühlprozess prinzipiell sehr effizient sein kann.

Experimentell konnte bei moderaten Drücken von einigen Torr für blaue Verstimmung eindeutig eine erhöhte Dopplerverbreiterung des Ensembles, also eine Erwärmung, festgestellt werden, es konnte jedoch experimentell keine Kühlung des Gases nachgewiesen werden [35, 36].

Experimenteller Ansatz mit sehr hohen Puffergasdrücken

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit Untersuchungen zum thermischen Gleichgewicht und zur Laserkühlung in sehr dichten atomaren Gasgemischen, bestehend aus Rubidiumatomen und einem Puffergas von einigen hundert Bar Druck. Die opti-

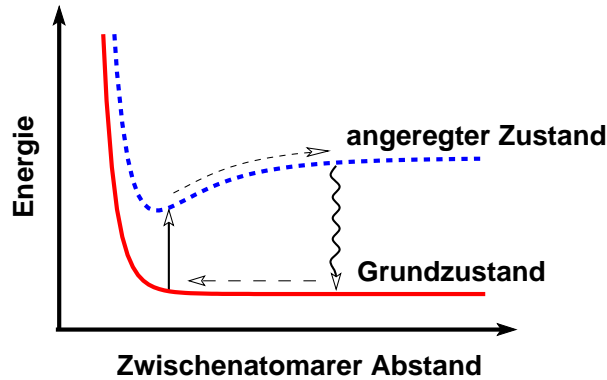


Abbildung 1.3: Schema der stoßinduzierten Redistributionskühlung.

schen Übergänge werden unter diesen Bedingungen stark verbreitert, und die häufigen Rubidium-Puffergas-Stöße verursachen eine Umverteilung zwischen den äußeren und inneren Freiheitsgraden der Atome. Es wird gezeigt, dass in dem Hochdruck-Puffergas-System sich ein thermisches Gleichgewicht von gekoppelten Atom-Licht-Zuständen erreichen lässt. Dies ist eine zentrale Voraussetzung für die zukünftige Realisierung eines Bose-Einstein Kondensates von Polaritonen (Atom-Licht Mischzuständen) an einem quantenoptischen System. Verwandte Experimente wurden bislang mit Quasiteilchen in Mikroresonatoren realisiert [37, 38, 39, 40]. Bisher ist in diesen Systemen die Lebensdauer der Anregungen zu kurz, so dass bisher keine vollständige Thermalisierung erzeugt werden konnte [41]. In dem hier untersuchten System sind die relevanten Zeitkonstanten, die Lebensdauer der angeregten Zustände und die Thermalisierungszeit um Größenordnungen getrennt, so dass dieses System die Erzeugung von Polariton-Kondensaten im vollen thermischen Gleichgewicht ermöglichen kann [42, 43].

Auch gelang an diesem Hochdruck-Puffergas-System die erstmalige erfolgreiche Demonstration einer stoßinduzierten Laserkühlung.

Die Situation ist in Abb. 1.3 dargestellt. Zur Kühlung wird hier stark rotverstimmt Laserlicht auf Atome gestrahlt, d.h. die Energie der Photonen alleine reicht nicht aus, um ein ungestörtes Atom anzuregen. Während Stößen mit benachbarten Atomen können die Energieniveaus der Hüllenelektronen so verschoben werden, dass die rotverstimmt Photonen vorübergehend resonant werden, und Atome angeregt werden können. Die Abregung in den Grundzustand findet im Mittel erst statt, wenn sich die Atome deutlich voneinander entfernt haben. Das emittierte Fluoreszenzphoton ist gegenüber dem eingestrahlt Licht blauverschoben, und kann somit Energie aus dem System entfernen, auf Kosten der kinetischen Energie der Stoßpartner. Der Energieübertrag pro Absorptions-Emissions-Zyklus liegt dabei in der Größenordnung der thermischen Energie der Atome $k_B T$.

In dieser Arbeit wurde diese Kühlmethode erstmals erfolgreich realisiert. Untersucht wurde dazu ein Gemisch aus Rubidiumatomen, die optisch angeregt wurden, eingebettet in einige hundert Bar Argon-Puffergas. Die intensive Wechselwirkung der

1 Einleitung

Stoßpartner bewirkt in diesem System eine vollständige Redistribution der Fluoreszenz, d.h. unabhängig von der anregenden Laserfrequenz bleibt die spektrale Verteilung der Fluoreszenz gleich. Eine wichtige Besonderheit von Alkali-Edelgas-Stößen ist hierbei ihre hohe Elastizität, wodurch die Lebensdauer der angeregten Rubidiumatome weitgehend ihrer natürlichen Lebensdauer entspricht [44], obwohl sie in dieser Zeitspanne viele tausend Mal mit Argonatomen stoßen. Der optische Kühlung durch stoßunterstützte Umverteilung der Fluoreszenz ist vergleichsweise schnell. Die charakteristische Zeit, in der experimentell die jeweilige Tiefsttemperatur des gekühlten Gases erreicht wird, liegt gegenwärtig bei einigen Zehntelsekunden. Bei der optischen Kühlung von Festkörpern dauert dies in der Regel Minuten, die tiefsten Temperaturen wurden nach Stunden ununterbrochener Kühlung erreicht [27, 45].

In dieser Arbeit werden die Methode und erste Grundlagenmessungen zu stoßinduzierten Redistributionskühlung behandelt. In noch unpublizierten Messungen konnten mit dieser Kühlmethode eine relative Kühlung des Gases um bis zu 527 K bestimmt werden, was einer Absoluttemperatur von 156 K entspricht. Die erreichte Abkühlung ist dabei bisher hauptsächlich durch die Wärmeleitfähigkeit des Gases beschränkt. Die Charakterisierung des Systems bei diesen extremen Temperaturgradienten ist Gegenstand gegenwärtiger Untersuchungen. Die zuletzt erreichten Tiefsttemperaturen liegen in der Nähe der kritischen Temperatur des Argon-Puffergases. Bei weiterer Kühlung könnten sich hier eine interessante Möglichkeit ergeben, homogene Keimbildung und neuartige Phasen in unterkühltem Argon zu untersuchen.

2 Grundlagen zur atomaren Druckverbreiterung

Die Verbreiterung atomarer Spektrallinien wurde bereits im 19. Jahrhundert beschrieben und untersucht. Zur Beschreibung bediente man sich den damals bekannten Werkzeugen, der klassischen Mechanik und Elektrodynamik. Das angeregte Atom wurde als schwingender Oszillator beschrieben, der verschiedenen äußeren Einflüssen unterworfen ist [46]. Michelson fasste bereits 1889 die wichtigsten Beobachtungen und die daraus resultierenden Schlussfolgerungen zusammen [47]:

- Alle beobachteten Spektrallinien haben stets eine minimale endliche Breite, die man heute als natürliche Linienbreite bezeichnet.
- Die beobachtete Verbreiterung der Linien ist temperaturabhängig auf Grund des Dopplereffekts.
- Eine Ursache der Verbreiterung ist die Störung der atomaren Schwingungen durch Stöße.
- Die Veränderung der Schwingungsperiode oszillierender Atome auf Grund der direkten Nachbarschaft anderer Atome wurde postuliert.
- Ebenso wurde der Einfluss von Vorgängen diskutiert, welche die Linienform verändern, aber nicht spektroskopisch beobachtbar sind, also nichtstrahlende Vorgänge.

Der ersten beiden Punkte, die natürliche Linienbreite und die Dopplerverbreiterte Linienform müssen hier nicht näher verfolgt werden.

Die anderen drei Punkte beschreiben die wichtigsten Grenzfälle unter denen sich atomare Stöße analytisch beschreiben lassen, und die hier wichtig für das Verständnis des untersuchten Systems sind. Dies sind die sogenannte Impakt-Näherung, die den Stoß als kurze Phasenänderung beschreibt, bei denen das stoßende Atom nur kurz in den Einflussbereich des gestörten Atoms gerät. Komplementär dazu betrachtet die statistische (oder auch statische) Theorie das Atom als eingebettet in ein Ensemble von Störatomen, und wendet das Franck-Condon Prinzip auf die so deformierten Energieniveaus an. Unabhängig davon können Stöße komplett oder teilweise inelastisch sein, also z.B. Molekülbildung verursachen oder allgemein zu nichtstrahlender Abregung führen.

Die Impakt-Näherung ist für kleine Gasdichten und bei kleinen Verstimmungen um die Resonanzfrequenz gut erfüllt. Die statistische Theorie wird hingegen relevant für hohe Gasdichten und im Bereich der Linienflanken.

Im Folgenden werden diese beiden Näherungen getrennt vorgestellt, da sie beide

2 Grundlagen zur atomaren Druckverbreiterung

ein intuitiv gut zugängliches Bild der Druckverbreiterung bieten, und im Anschluss daran wird eine geschlossene Lösung angegeben. Die beiden Näherungen beschreiben in ihren jeweiligen Geltungsbereichen die beobachteten Phänomene sehr gut, und man ist dort in der Regel nicht gezwungen, die deutlich aufwändigere allgemeine Lösung auszuwerten.

Vorbereitend auf Kapitel 4 wird die Stoßverbreiterung anschließend in den Rahmen des Dichtematrixformalismus eingefügt, um u.a. optische Sättigungseffekte beschreiben zu können. Die Dynamik der internen Zustände wird separat in Kapitel 4 genauer abgehandelt.

In dieser Arbeit wird in der Hauptsache der Rubidium D-Übergang untersucht, als Stoßpartner dienen atomare Edelgase. Im Folgenden wird entsprechend von der Allgemeinheit abgewichen, indem optische Übergänge für ein Zweiniveausystem betrachtet werden, und die Stoßpartner atomar und nicht von derselben Sorte sind.

2.1 Impakt-Näherung

Ein klassisches Modell zur Druckverbreiterung wurde von Lorentz [46] gefunden, mit dem der grundsätzliche Vorgang anschaulich beschrieben ist. Bei dem von Lorentz entworfenen Ansatz wird ein Atom angeregt, indem ein Elektron durch Licht aus seinem Gleichgewichtszustand ausgelenkt wird. Anschließend vollführt es harmonische Schwingungen um den Atomrumpf.

Der Schwingungsfrequenz $\omega_0/2\pi$ wird die beobachtete Wellenlänge des emittierten Lichts $\lambda = 2\pi c/\omega$ zugeordnet.

Die Abregung des Atoms wird durch abrupte Phasenänderungen erklärt. Der Spontanzerfall muss in diesem Modell ohne Begründung eingefügt werden, die Druckverbreiterung kann durch Stöße erklärt werden, die die Phase des Wellenzugs unterbrechen. Zwischen zwei Stößen, also während der mittleren freien Flugzeit T_c , bleibt der Wellenzug ungestört.

Der beobachtete Zerfall des angeregten Zustands wird durch einen Dämpfungsterm beschrieben, der direkt experimentell zugänglich ist, und aus dem beobachtbaren exponentiellen Abfall der Fluoreszenz (mit der Zeitkonstante τ') eines Ensembles von angeregten Atomen bestimmt werden kann:

$$I(t) = I_0 \cdot \exp(-t/\tau'). \quad (2.1)$$

Die Amplitude der emittierten Lichtwelle ist damit

$$E(t) = E_0 \cdot \exp(-t/2\tau') \exp(-i\omega_0 t) + c.c., \quad (2.2)$$

wobei $\hbar\omega_0$ die Energiedifferenz zwischen dem angeregten und dem Grundzustand bezeichnet. Diese gedämpfte Oszillation kann als Superposition monochromatischer Wellen dargestellt werden.

$$E(t) = 1/2\sqrt{2\pi} \int_0^\infty A(\omega) e^{i\omega t} d\omega \quad (2.3)$$

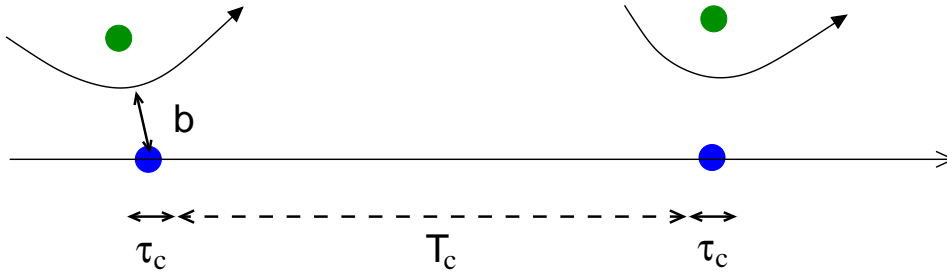


Abbildung 2.1: Darstellung für Stöße verschiedenartiger Atome. Die Annäherung der Puffergasatome wird mit dem Stoßparameter b beschrieben. Die Zeit zwischen zwei Stößen ist durch die freie Weglänge gegeben. In der Impakt-Näherung wird die Stoßdauer τ_c vernachlässigt.

Über eine Fouriertransformation erhält man die Amplitude

$$A(\omega) = E_0/\sqrt{8\pi}(1/i(\omega - \omega_0 + \gamma'/2) + 1/i(\omega - \omega_0) + \gamma'/2). \quad (2.4)$$

mit $\gamma' = 1/\tau'$. Unter Vernachlässigung des schnell oszillierenden Terms erhält man die Intensitätsverteilung

$$I(\omega - \omega_0) = I_0 \frac{\gamma'/2\pi}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma'/2)^2}. \quad (2.5)$$

γ bezeichnet hier die Linienbreite. Das Lorentzmodell gibt zwar keine Begründung für den Spontanzerfall, beschreibt aber die Verbreiterung durch Stöße insofern schlüssig, als in das Modell über die freie Weglänge $l = vT_c$ (v ist die mittlere Geschwindigkeit der Atome) die Dichte des Gases linear eingeht, so wie es experimentell beobachtet wird [48]. Die Stoßverbreiterung lässt sich als separater Dämpfungsterm γ_c einführen, der sich als inverse (mittlere) Zeit zwischen zwei Stößen T_c interpretieren lässt.

$$\frac{1}{\tau'} = \frac{1}{\tau} + \frac{1}{T_c}, \quad (2.6)$$

wobei τ die natürliche Lebensdauer ist. Das Lorentzmodell liefert eine symmetrische Verteilung um die Resonanzfrequenz. Die in der Regel beobachtete Verschiebung des Linienmaximums und die Asymmetrie der Linie [49, 50] können damit nicht erklärt werden. Dazu muss das Lorentzmodell erweitert werden, indem man phasenändernde Stöße allgemeiner innerhalb des Impakt-Modells behandelt. Beim Lorentzmodell erfolgt die Verbreiterung der Linie durch quasi instantane Stöße $\tau_c \ll 1/\omega_0$, wobei zwei Stöße zeitlich vollkommen unabhängig voneinander stattfinden $T_c \gg \tau_c$. Weiter werden im Lorentzmodell nur Stöße betrachtet, die eine große Phasenänderung verursachen [51].

Der Wellenzug sammelt während der Stoßdauer τ_c eine Phasenverschiebung $\Delta\Theta$ auf. Für $\Delta\Theta \ll 1/\tau_c$ ist der Frequenzschub nahezu instantan, daher spricht man von Impakt-Näherung. Der Phasenfaktor $\exp(i\Delta\Theta(b, v))$ wird gemittelt über die auftretenden Geschwindigkeiten v und den Stoßparameter b und man erhält insgesamt eine

2 Grundlagen zur atomaren Druckverbreiterung

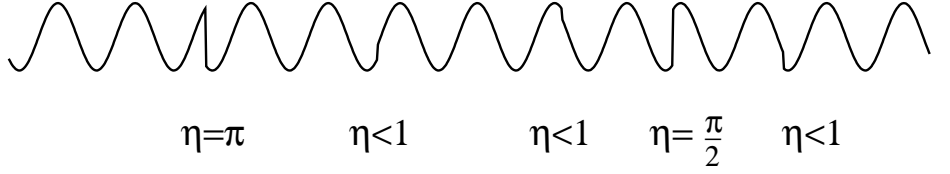


Abbildung 2.2: Illustration der Phasenverschiebung durch Kollisionen. Durch starke Kollisionen ($\eta > 1$) wird hauptsächlich eine Verbreiterung des Linienprofils bewirkt. Schwache Stöße ($\eta < 1$) führen zu einer Druckverschiebung.

Phasenverschiebung

$$\Phi(t) = (\gamma_c - i\eta_c)t, \quad (2.7)$$

wobei

$$\gamma_c = \int_0^\infty n(v)dv \int_0^\infty 2\pi b [1 - \cos \Delta\Theta(b, v)] db \quad (2.8)$$

$$\eta_c = \int_0^\infty n(v)dv \int_0^\infty 2\pi b \sin \Delta\Theta(b, v) db \quad (2.9)$$

γ_c beschreibt die Druckverbreiterung, η_c beschreibt die Druckverschiebung, die als Verschiebung der Oszillatorfrequenz interpretiert wird. Aus dieser Näherung ergibt sich wieder eine Lorentzverteilung [52]

$$I(\omega) = \frac{\Gamma/2 + \gamma_c}{\pi[(\Gamma/2 + \gamma_c)^2 + (\Delta\omega - \eta_c)^2]}. \quad (2.10)$$

In dieser Beschreibung wird die Veränderung der Linie auf verschiedene Phasenstörungen zurückgeführt (Abb. 2.2). Starke Kollisionen $\eta \simeq 1$ sorgen für die prinzipielle Lorentzform um die Resonanz. Schwache Kollisionen $\eta < 1$ kumulieren sich zwischen zwei starken Stößen und bewirken eine effektive Frequenzänderung des Wellenzugs, was zur Verschiebung des Linienmaximums führt [53, 54, 55, 56, 57, 58, 59].

2.2 Statistische Näherung

Bei der eben behandelten Impakt-Näherung wird der eigentliche Verbreiterungsprozess als quasi instantan angenommen, das stoßende Atom kommt nur für kurze Zeit in den Einflussbereich des gestoßenen Atoms. In der statistischen Näherung wird die gegenteilige Annahme gemacht. Ein Atom befindet sich ständig im Einflussbereich eines statistisch angeordneten Ensembles von Störatomen. Die Energieniveaus werden dementsprechend abhängig vom Kernabstand gestört, was in der Summe eine spektrale Verbreiterung des Übergangs bewirkt [60, 61, 62, 63]. Dementsprechend ist die statistische Näherung auch als Quasimolekül-Ansatz geläufig, das gestörte Atom befindet sich vorübergehend quasistationär in einem Molekül mit seinem nächsten Stoßpartner [53, 55, 64, 65, 66, 67]. Somit ist hier die Voraussetzung für das Franck-

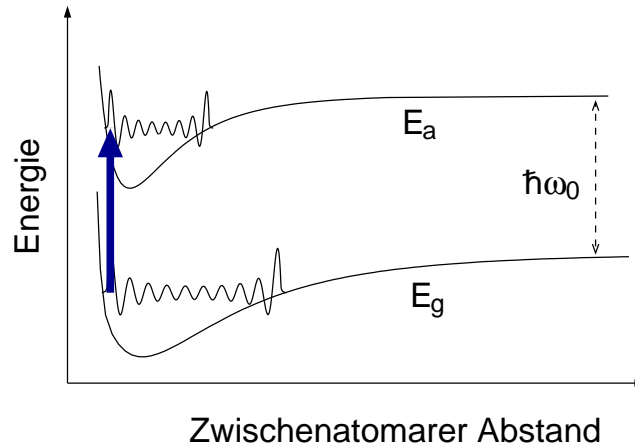


Abbildung 2.3: In der statistischen Näherung befindet sich das Atom in einem als quasistatisch angenommenen Ensemble von Störatomen. Abhängig vom jeweiligen zwischenatomaren Abstand bilden sich molekülähnliche Energieniveaus aus. Übergänge zwischen diesen Niveaus erfolgen nach dem Franck-Condon-Prinzip, also in dieser Darstellung senkrecht. Aus der genauen Form der Potentiale ergibt sich die resultierende Linienform [68, 69, 70].

Condon Prinzip erfüllt, wonach während des Übergangs des Elektrons vom einen in den anderen Zustand der zwischenatomare Abstand und die Relativgeschwindigkeit der Atome konstant bleiben, wie in Abb. 2.3 schematisch dargestellt. Man betrachtet einen atomaren Übergang mit Energie $\hbar\omega_0 = E_a - E_g$ zwischen dem angeregten Zustand E_a und dem Grundzustand E_g . Die elektronischen Zustände a und g haben die Form $V_q = V - q + l(l+1)/R^2$, wobei q der Grundzustand g oder der angeregte Zustand a ist und l die Bahndrehimpulsquantenzahl ist, die Potentiale sind allgemein vom Van-der-Waals-Typ. Die Übergangsfrequenz beim zwischenatomaren Abstand R ist

$$\omega_c(R) = [V_a(R) - V_g(R)] / \hbar. \quad (2.11)$$

Für kleine Relativgeschwindigkeiten reduziert sich die Linienintensität $I(\omega)$ zu der Wahrscheinlichkeit, das Atom bei geeignetem $R(\omega = \omega_c)$ anzutreffen.

$$R + dR = n_p 4\pi R^2 \exp[-V_i(R)/k_B T] dR, \quad (2.12)$$

soweit die Atome im thermischen Gleichgewicht sind. Allgemein erhält man das Intensitätsprofil

$$I(\omega) = \left(\frac{4\mu^2 \omega^4}{3c^3} \right) \left| \int dt \exp \left[i \int^t \omega_c(t') dt' - i\omega t \right] \right|^2. \quad (2.13)$$

Das Ergebnis bedeutet eine Mittelung über die Geschwindigkeitsverteilung und die Stoßparameter, gewichtet mit ihren Wahrscheinlichkeiten.

Daraus ergibt sich das quasistatische Spektrum

$$I(\omega) = Nn_p\Gamma 4\pi R(\omega)^2 \exp[-V_i(\omega)/k_B T]/[d\omega(R)/R], \quad (2.14)$$

Die statistische Näherung kann die Asymmetrie der Linien bei höheren Drücken sehr gut beschreiben. Auch Satelliten-Resonanzen an den Linienflanken und die Auswirkung von Mehrkörperstößen lassen sich gut nachvollziehen [53, 68, 71, 72, 73]. Ausgehend davon kann man mit erweiterten Modellen genauer beschreiben, wie sich Absorption und Emission während des Stoßprozesses verhalten, insbesondere wenn der Stoß diese erst energetisch ermöglicht [74, 75, 76, 77, 78, 79, 80].

2.3 Verallgemeinerte Theorie der Druckverbreiterung

Nachdem die beiden wichtigsten Näherungen für die Druckverbreiterung vorgestellt wurden, soll nun noch eine vereinheitlichte Beschreibung folgen. Die ersten brauchbaren Modelle hierzu lieferte [63], um die langreichweitige Van-der-Waals-Wechselwirkung und die starken Phasenänderungen durch extrem nahe Annäherungen einzubeziehen. Beim Problem der Druckverbreiterung von Spektrallinien handelt es sich grundsätzlich um ein zeitabhängiges Vielkörperproblem, das nicht exakt gelöst werden kann. Rechnergestützte Ansätze konnten bisher bereits die Druckverbreiterung in dichten Plasmen mit Monte Carlo-Simulationen gut nachvollziehen [81], eventuell können diese Methoden in Zukunft auch auf das hier untersuchte System angewendet werden, um das verwendete System genauer zu verstehen.

Nachdem Impakt-Näherung und statistische Theorie in ihren Bereichen sehr gute Näherungen sind, muss eine vereinheitlichte Theorie diese als Grenzfälle enthalten. Insbesondere von [66, 82] wurden zahlreiche Messungen im Bereich $t_c \sim T_c$ durchgeführt, in einem Parameterbereich, in dem beide Näherungen nicht mehr gut erfüllt sind. Verschiedene Varianten verallgemeinerter Theorien konnten in diesem Bereich auf Übereinstimmung mit den gemessenen Werten getestet werden.

Einschränkend muss hinzugefügt werden, dass hier eingehende Parameter wie der Impakt-Parameter und das langreichweitige Potential experimentell am besten in getrennten Experimenten bestimmt werden können, die sich jeweils möglichst eindeutig dem Impakt-Limit oder der statistischen Theorie zuordnen lassen.

Die Herleitung des hier betrachteten Ansatzes kann in [52, 53, 80] nachvollzogen werden, neuere Ansätze finden sich in [83, 84]. Es ergibt sich folgendes Resultat für das Linienprofil:

$$I(\nu) = I_0 + I_\infty, \quad (2.15)$$

mit

$$I_0 = \int_0^1 e^{-l[0.389y^{4/3} + 0.591y\sqrt{y}]} \cos[ky + l(0.231y^{4/3} + 0.591\sqrt{y})] dy, \quad (2.16)$$

$$I_\infty = e^{-0.960l} \int_1^\infty 0.795l \cos[y(k + 0.577l) + 0.227l] dy, \quad (2.17)$$

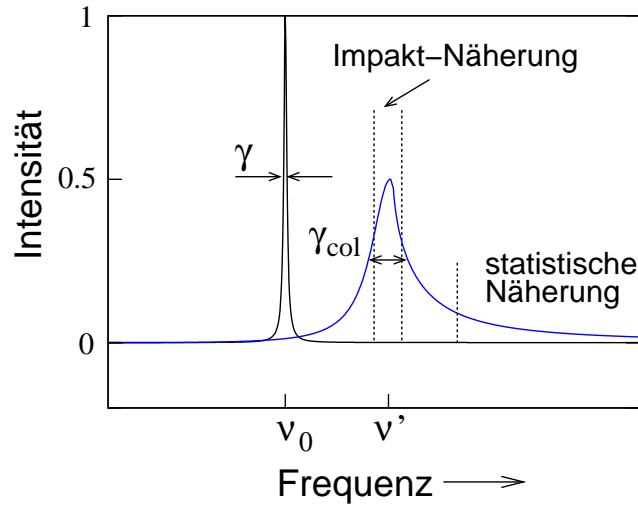


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der allgemeinen Druckverbreiterung nach Gl. 2.15. Das ungestörte Lorentzprofil mit der natürlichen Linienbreite γ bei der Resonanzfrequenz ν_0 . Stoßverbreiterung verschiebt den beobachteten Schwerpunkt der Fluoreszenz, das Profil ist um das Zentrum lorentzförmig verbreitert, die Linienflanken sind asymmetrisch.

$$l = N4\pi\kappa \left[\frac{3\pi^2 b}{8\langle v \rangle} \right]^{3/5}, \quad k = (\nu - \nu_0) \left[\frac{3\pi^2 b}{8\langle v \rangle} \right]^{1/5}, \quad (2.18)$$

wobei κ ein gewählter cut-off für die minimale Annäherung ist, um Divergenzen bei der Berechnung zu vermeiden, N ist die Teilchendichte, b der Impakt-Parameter und v die Geschwindigkeit der Atome. Für geringe Gasdichten N zeigt eine Reihenentwicklung, dass das Ergebnis der Impakt-Näherung abgeleitet werden kann [52], relevant für diese Arbeit ist der andere Grenzfall. Für sehr hohe Gasdichten N wird l sehr groß, so dass man I_∞ vernachlässigen kann, und man erhält den einfacheren Ausdruck

$$I(\nu) = \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{0.591l}{(-k)^{3/2}} \exp \left[-\frac{(0.591l)^2}{-2k} \right] = c_1 N \langle v \rangle^{6/5} (\nu - \nu_0)^{-3/2} e^{-N^2 C_2 / (\nu - \nu_0)}. \quad (2.19)$$

In Abb. 2.4 wurde der Ausdruck für Parameter aus [53] ausgewertet. Qualitativ sind die Druckverschiebung und die Druckverbreiterung zu erkennen.

Neben dem gezeigten Ausdruck existieren zahlreiche weitere Ansätze [71, 85, 86, 87, 88, 89], die auf den Arbeiten von Weisskopf und Wigner [51, 90, 91] sowie Fano [57] aufbauen.

2.4 Kollisionen in Anwesenheit von Laserstrahlung

Hier sollen nun Kollisionen in Anwesenheit eines starken Laserfeldes genauer betrachtet werden [92, 93]. Man betrachtet ein Zweiniveausystem mit Grundzustand

2 Grundlagen zur atomaren Druckverbreiterung

$|a\rangle$ sowie einem angeregten Zustand $|b\rangle$, wobei $\hbar\omega_0$ der energetische Abstand zwischen Grund- und angeregten Zustand bezeichnet. Der Hamiltonoperator für die Dipolwechselwirkung mit dem Lichtfeld lautet:

$$\hat{H} = \hat{H}_A - \vec{d} \cdot \vec{E}(\vec{0}, t). \quad (2.20)$$

Der Hamiltonian des Atoms und der Dipoloperator sind dabei:

$$\hat{H}_A = 0 \cdot |a\rangle\langle a| + \omega_0 \hbar \cdot |b\rangle\langle b| \quad (2.21)$$

$$\vec{d} = \vec{d}_{ab} \cdot (|b\rangle\langle a| + |a\rangle\langle b|). \quad (2.22)$$

Das Lichtfeld der Frequenz ω_L wird als monochromatische ebene Welle in Dipolnäherung angesetzt:

$$\vec{E}(0, t) = \vec{E}_0 \cos(\omega_L t). \quad (2.23)$$

Um ein Ensemble von mehreren Atomen zu beschreiben, ohne viele neue Freiheitsgrade einführen zu müssen, geht man zum Dichtematrixformalismus über, der es auch gestattet inkohärente Mischungen von Zuständen zu behandeln:

$$\hat{\rho} = \sum_i p_i |\alpha_i\rangle\langle\alpha_i|, \quad (2.24)$$

mit

$$|\alpha_i\rangle = \sum_k c_k |k\rangle. \quad (2.25)$$

Hierbei ist p_i die Wahrscheinlichkeit, dass das Atom im Zustand α_i ist; $|\alpha_i\rangle$ ist eine Superposition aus den die Eigenzuständen $|k\rangle$ von H_A . Die Matrixelemente erhält man über:

$$\rho_{ij} = \langle i | \hat{\rho} | j \rangle. \quad (2.26)$$

Die Von-Neumann-Gleichung beschreibt die Zeitentwicklung der Dichtematrix:

$$i\hbar \frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = [\hat{H}_A - \vec{d} \cdot \vec{E}(0, t), \hat{\rho}]. \quad (2.27)$$

Für die Zeitentwicklung der einzelnen Matrixelemente erhält man ein System gekoppelter Differentialgleichungen:

$$\dot{\rho}_{aa} = -i\Omega \cos(\omega_L t)(\rho_{ba} - \rho_{ab}) \quad (2.28)$$

$$\dot{\rho}_{bb} = i\Omega \cos(\omega_L t)(\rho_{ba} - \rho_{ab}) \quad (2.29)$$

$$\dot{\rho}_{ab} = i\omega_0 \rho_{ab} - i\Omega \cos(\omega_L t)(\rho_{bb} - \rho_{aa}) \quad (2.30)$$

$$\dot{\rho}_{ba} = -i\omega_0 \rho_{ab} + i\Omega \cos(\omega_L t)(\rho_{bb} - \rho_{aa}). \quad (2.31)$$

Mit der Rabifrequenz $\Omega = -\frac{1}{\hbar} \vec{d}_{ab} \cdot \vec{E}_0$ als Maß für die Kopplung des Lichtfelds an das Atom.

2.4 Kollisionen in Anwesenheit von Laserstrahlung

Mit den Bedingungen $\rho_{aa} + \rho_{bb} = 1$, $\rho_{ab} = \rho_{ba}^*$, der Vernachlässigung schnell oszillierender Terme ($\omega_L \approx \omega_0$), Drehwellennäherung) und Abseparation der expliziten Zeitabhängigkeit ergeben sich über

$$\tilde{\rho}_{aa} = \rho_{aa} \quad (2.32)$$

$$\tilde{\rho}_{bb} = \rho_{bb} \quad (2.33)$$

$$\tilde{\rho}_{ab} = \rho_{ab} e^{-i\omega_L t} \quad (2.34)$$

$$\tilde{\rho}_{ba} = \rho_{ba} e^{i\omega_L t} \quad (2.35)$$

die Bewegungsgleichungen

$$\frac{d}{dt} \tilde{\rho}_{bb} = i \frac{\Omega}{2} (\tilde{\rho}_{ab} - \tilde{\rho}_{ab}^*) \quad (2.36)$$

$$\frac{d}{dt} \tilde{\rho}_{ab} = -i \frac{\Omega}{2} (2\tilde{\rho}_{bb} - 1) - i\delta_L \tilde{\rho}_{ab}. \quad (2.37)$$

Nun können den Bewegungsgleichungen zusätzliche Terme hinzugefügt werden, die den spontanen Zerfall und weitere Relaxationsprozesse wie etwa Stöße beschreiben:

$$\dot{\tilde{\rho}} = \frac{1}{i\hbar} [H, \tilde{\rho}] + \dot{\tilde{\rho}}_{\text{relax}} \quad (2.38)$$

mit z.B.

$$\dot{\tilde{\rho}}_{\text{relax}} = \begin{pmatrix} -\Gamma_{\parallel} \tilde{\rho}_{bb} & -\Gamma_{\perp} \tilde{\rho}_{ba} \\ -\Gamma_{\perp} \tilde{\rho}_{ab} & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.39)$$

Hierbei ist Γ_{\parallel} die inverse longitudinale Relaxationszeit des angeregten Zustands $|b\rangle$, also die spontane Zerfallszeit. Γ_{\perp} ist die inverse transversale Relaxationszeit, die Zerfallszeit der Kohärenz. Findet die Abregung des Systems nur über den spontanen Zerfall statt, gelten folgende Beziehungen:

$$\Gamma_{\perp} = \frac{\Gamma_{\parallel}}{2} \quad (2.40)$$

$$\frac{d}{dt} \tilde{\rho}_{bb} = i \frac{\Omega}{2} (\tilde{\rho}_{ab} - \tilde{\rho}_{ab}^*) - \Gamma \tilde{\rho}_{bb} \quad (2.41)$$

$$\frac{d}{dt} \tilde{\rho}_{ab} = -i \frac{\Omega}{2} (2\tilde{\rho}_{bb} - 1) - i\delta_L \tilde{\rho}_{ab} - \frac{\Gamma}{2} \tilde{\rho}_{ab}. \quad (2.42)$$

Im Allgemeinen und insbesondere im Fall elastischer Stöße gilt für die Relaxationsraten:

$$\Gamma_{\perp} \geq \frac{\Gamma_{\parallel}}{2}. \quad (2.43)$$

Gleichgewichtslösungen erhält man für den Fall, dass die zeitlichen Ableitungen verschwinden. Mit der Inversion w :

$$w = \tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{bb}, \quad (2.44)$$

2 Grundlagen zur atomaren Druckverbreiterung

lassen sich die Gleichgewichtsbedingungen wie folgt formulieren:

$$\frac{d}{dt}\tilde{\rho}_{ab} = 0 \quad \text{und} \quad \frac{d}{dt}w = 0. \quad (2.45)$$

Man erhält somit für den stationären Fall das Ergebnis:

$$w = \frac{-\Omega_0^2}{\frac{\Gamma_{ab}^2}{2} + 2\delta^2} - 1 = \left(1 + \frac{\Omega_0^2}{\frac{\Gamma_{ab}^2}{2} + 2\delta^2}\right)^{-1} = \frac{-1}{1+S} \quad (2.46)$$

$$\tilde{\rho}_{ab} = -\frac{S\delta}{\Omega_0(1+S)} + i\frac{S\frac{\Gamma_{ab}}{2}}{\Omega_0(1+S)} = \frac{-\delta + i\frac{\Gamma_{ab}}{2}}{\Omega_0} \frac{S}{S+1}. \quad (2.47)$$

Mit dem Sättigungsparameter S und dem resonanten Sättigungsparameter S_0 :

$$S = S_0 \frac{\Gamma_{ab}^2}{\Gamma_{ab}^2 + 4\delta^2}, \quad (2.48)$$

$$S_0 = \frac{2\Omega_0^2}{\Gamma_{ab}^2}. \quad (2.49)$$

Die Besetzung des angeregten Zustands erhält man über:

$$\tilde{\rho}_{bb} = w + \tilde{\rho}_{aa} = w + (1 - \tilde{\rho}_{bb}), \quad (2.50)$$

$$\tilde{\rho}_{bb} = \frac{1}{2}(1+w) = \frac{S}{2(S+1)} = \frac{S_0/2}{1+S_0+4\delta^2/\Gamma^2}. \quad (2.51)$$

Oder anders ausgedrückt:

$$\tilde{\rho}_{bb} = \frac{\Omega^2}{4} \frac{1}{\frac{\Omega^2}{2} - \delta_L^2 - (\frac{\Gamma}{2})^2}. \quad (2.52)$$

Damit ergibt sich für die Photonenstreureate R_S :

$$R_S = \Gamma\tilde{\rho}_{bb} = \frac{\Omega^2}{4} \frac{\Gamma}{\frac{\Omega^2}{2} - \delta_L^2 - (\frac{\Gamma}{2})^2} = \frac{\Gamma}{2} \frac{S_0}{1+S_0+4\delta^2/\Gamma^2}. \quad (2.53)$$

Für große Lichtintensität sättigt der Übergang, und die Streureate strebt gegen den Grenzwert:

$$R_S^\infty = \frac{\Gamma}{2}. \quad (2.54)$$

Mit $\Gamma' = \Gamma\sqrt{S_0+1}$ erhält die Streureate die Form

$$R_S = \left(\frac{S_0}{S_0+1}\right) \left(\frac{\Gamma'/2}{1+4\delta^2/\Gamma'^2}\right). \quad (2.55)$$

2.4 Kollisionen in Anwesenheit von Laserstrahlung

Der Sättigungsparameter lässt sich mit der eingestrahnten Lichtintensität ausdrücken:

$$S_0 = \frac{I}{I_{\text{sat}}}. \quad (2.56)$$

$I_{\text{sat}} = \frac{\pi h c}{3 \lambda^3 \tau}$ bezeichnet man als Sättigungsintensität. Das gesättigte Linienprofil ist somit verbreitert proportional zur Photonenstreurate Γ_{ph} :

$$\Gamma_{ph} = \frac{\Gamma S_0}{2(1 + S_0 + 4\delta^2/\Gamma^2)}. \quad (2.57)$$

Die Streurrate ist durch die Zerfallsrate des angeregten Zustands begrenzt $\Gamma_{ph}^{max} = \Gamma/2$, bei großen Verstimmungen kann eine höhere Laserintensität die Streurrate deutlich erhöhen, so dass insgesamt die Linie verbreitert wird.

Sichtbar wird die Sättigung auf Resonanz zum Beispiel durch Abweichungen vom Lambert-Beerschen Absorptionsgesetz. Beschrieben wird damit die Abschwächung eines Lichtstrahls, wenn er durch ein Gas mit der Teilchendichte n durchquert:

$$I(z) = I(0)e^{-\alpha z}. \quad (2.58)$$

Dabei ist α die Absorptivität, αz wird die optische Dichte genannt. Die Absorptivität setzt sich zusammen aus der Teilchendichte n und dem Wirkungsquerschnitt σ_{21} , mit $\sigma_{21} = \frac{3}{2\pi}\lambda^2$.

Für Sättigungsparameter $S \geq 1$ gilt diese Näherung nicht mehr, und man beobachtet das sogenannte Ausbleichen bei hohen Lichtintensitäten, da der Übergang teilweise gesättigt ist.

Während es bei schwachen optischen Übergängen oder bei Druckverbreiterung schwer ist, den Übergang zu sättigen, ist es bei der Mikrowellenspektroskopie oft der Normalfall [64, 94], dass sich bei Raumtemperatur bereits ein großer Teil der Atome im angeregten Zustand befindet. Die Populationen n_0 und n_1 erfüllen im thermischen Gleichgewicht das detaillierte Gleichgewicht:

$$n_1 = n_0 e^{-h\nu/k_B T}, \quad (2.59)$$

und die Photonenstreurate ist in diesem Fall

$$R_S = \frac{8\pi^2}{3ch}(n_0 - n_1) \frac{\omega\Gamma}{(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2/4}. \quad (2.60)$$

Das Sättigungsverhalten bei hohen Puffergasdrücken wird in Kapitel 4 näher betrachtet. Dort wird gezeigt, dass sich für eine intensive Wechselwirkung mit dem Puffergasbad ein verwandtes Verhalten ergibt.

2.5 Gekoppelte Atom-Licht-Zustände

Das Jaynes-Cummings-Modell beschreibt die Wechselwirkung von Atomen mit quantisierten Lichtfeldern [92].

Der Hamiltonian in diesem vollquantisierten Bild lautet :

$$\hat{H} = \hat{H}_A + \hat{H}_L + \hat{V}_{AL}. \quad (2.61)$$

mit dem Hamiltonian für das Atom \hat{H}_A , und denen für das Lichtfeld \hat{H}_L und die Wechselwirkung in 2. Quantisierung \hat{V}_{AL} mit dem photonischen Erzeugungsoperator \hat{a}^+ und dem Vernichtungsoperator \hat{a} :

$$\hat{H}_A = \hbar\omega_0|b\rangle\langle b| \quad (2.62)$$

$$\hat{H}_L = \hbar\omega_L(\hat{a}^+\hat{a} + 1/2) \quad (2.63)$$

$$\hat{V}_{AL} = g(|b\rangle\langle a| + |a\rangle\langle b|)(\hat{a}^+ + \hat{a}) \quad (2.64)$$

$$\hat{V}_{AL} = g(|b\rangle\langle a| \cdot \hat{a} + |a\rangle\langle b| \cdot \hat{a}^+). \quad (2.65)$$

Hier bezeichnet g die Stärke der Kopplung des Atom an das Lichtfeld:

$$g = -\vec{d}_{ab}\vec{\epsilon}_L\sqrt{\frac{\hbar\omega_L}{2\epsilon_0V}}. \quad (2.66)$$

\vec{d}_{ab} ist dabei das Dipolmoment des Atoms, $\vec{\epsilon}_L$ der Polarisationsvektor des Lichtmodes und V das Volumen der im Modell angenommenen Kavität. Als Kopplungskonstante zwischen den Zuständen $|a, N+1\rangle$ und $|b, N\rangle$ erhält man:

$$G_N = \langle a, N+1|\hat{V}_{AL}|b, N\rangle = g\sqrt{N+1}. \quad (2.67)$$

Die Zustände sind hier als Eigenzustände des Anzahloperators $\hat{n}_i = \hat{a}_i^+\hat{a}_i$, die sogenannten Fockzustände, beschrieben. Für das tatsächlich verwendete Laserlicht geht man besser von kohärenten Zuständen aus:

$$|a\rangle = e^{-\alpha^2/2} \sum_{N=0}^{\infty} \frac{\alpha^N}{\sqrt{N!}} = |N\rangle e^{-\alpha^2/2} e^{\alpha\hat{a}^+} |0\rangle. \quad (2.68)$$

$|0\rangle$ ist hierbei der Vakuumzustand. Es gilt weiter:

$$\hat{a}|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle, \quad \langle N\rangle = \alpha^2. \quad (2.69)$$

Für die Kopplung gilt hier:

$$G_N = g\sqrt{N+1} = \frac{1}{2}\hbar\Omega. \quad (2.70)$$

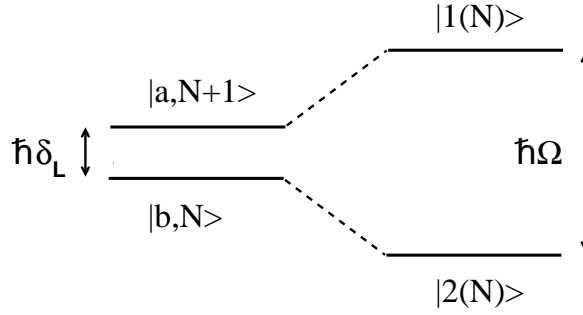


Abbildung 2.5: Eigenzustände des ungekoppelten Atom-Lichtsysteams (links), sowie die Eigenzustände unter Berücksichtigung der Kopplung (rechts) [92].

Eine Projektion auf die Einheitsmatrix des freien Systems,

$$\hat{1} = |a, N + 1\rangle\langle a, N + 1| + |b, N\rangle\langle b, N|, \quad (2.71)$$

führt zu dem Hamiltonian

$$\hat{H} = \hbar \begin{pmatrix} -\delta_L & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} + \hbar\omega_L \begin{pmatrix} -N + 3/2 & 0 \\ 0 & N + 3/2 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} -0 & G_N \\ G_N & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.72)$$

mit den Eigenwerten:

$$\lambda_{1/2} = \hbar \left(\frac{\omega_0}{2} + \omega_L \left(N + \frac{1}{2} \right) \right) \pm \frac{1}{2} \hbar \sqrt{\delta^2 + 4 \frac{G_N^2}{\hbar^2}}. \quad (2.73)$$

und den zugehörigen Eigenzuständen

$$|1, N\rangle = \sin \Theta |a, N + 1\rangle + \cos \Theta |b, N\rangle \quad (2.74)$$

$$|2, N\rangle = \cos \Theta |a, N + 1\rangle - \sin \Theta |b, N\rangle. \quad (2.75)$$

Den Mischungswinkel Θ erhält man über die Beziehung

$$\tan 2\Theta = -\frac{\Omega}{\delta_L}. \quad (2.76)$$

Die Energiedifferenz zwischen beiden Zuständen ist

$$\hbar\Omega_1 = \hbar\sqrt{\delta^2 + \Omega^2}. \quad (2.77)$$

Die gekoppelten und ungekoppelten Atom-Licht-Zustände sind in Abb. 2.6 dargestellt.

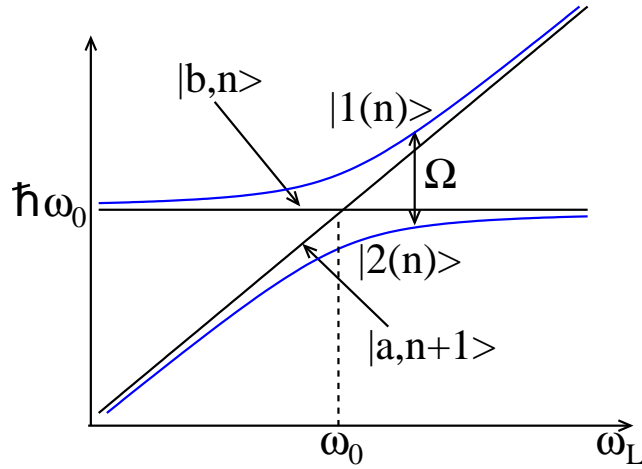


Abbildung 2.6: Vermiedene Kreuzung der Atom-Licht-Zustände [92].

Stöße im Dressed-State Bild

Um Stöße im Dressed-State Bild zu beschreiben, geht man wieder zum Dichtematrixformalismus über. Die Mastergleichung für die Dichtematrix σ mit optischen Kollisionen und Relaxation durch Spontanzerfall :

$$\frac{d\sigma}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [H, \sigma] + \left\{ \frac{d\sigma}{dt} \right\}_{\text{rad}} + \left\{ \frac{d\sigma}{dt} \right\}_{\text{col}}, \quad (2.78)$$

Unter der Annahme, dass allein durch Stöße keine Übergänge möglich sind, bleiben σ_{aa} und σ_{bb} unbeeinflusst. Die Nebendiagonalelemente erfahren die Änderung

$$\Delta \tilde{\sigma}_{ba} = -(1 - e^{-i\phi}) \tilde{\sigma}_{ba}, \quad (2.79)$$

wobei ϕ der während der Kollision angesammelte Phasenschub ist:

$$\phi = \int_{-\infty}^{+\infty} dt [\omega_{ba}(t) - \omega_0], \quad (2.80)$$

wobei $\omega_{ba}(t)$ die instantane Oszillatorfrequenz des Übergangs beschreibt.

$$\omega_{ba}(t) = \frac{E_b(r(t)) - E_a(r(t))}{\hbar}. \quad (2.81)$$

Die Entwicklung der Kohärenzen kann damit umgeschrieben werden:

$$\frac{\Delta \tilde{\sigma}_{ba}}{\Delta t} = -\langle 1 - e^{-i\phi} \rangle_{\text{col}} \tilde{\sigma}_{ba}, \quad (2.82)$$

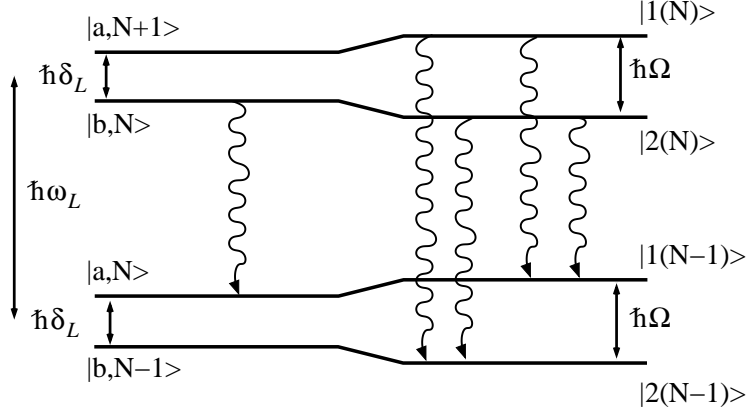


Abbildung 2.7: Erlaubte spontane Übergänge zwischen den ungekoppelten Zuständen (links) und den gekoppelten Zuständen (rechts).

wobei der Phasenschub wieder in Real- und Imaginärteil zerlegt werden kann

$$\frac{\Delta\tilde{\sigma}_{ba}}{\Delta t} = -(\gamma + i\eta)\tilde{\sigma}_{ba}, \quad (2.83)$$

$$\frac{d\tilde{\sigma}_{aa}}{dt} = \frac{d\tilde{\sigma}_{bb}}{dt} = 0. \quad (2.84)$$

Man gelangt wieder zur Darstellung im Impakt-Limit, die resultierende Linienform ist ein Lorentzprofil.

Angewandt auf die Dressed States folgt, dass zwischen den verschiedenen Mannigfaltigkeiten durch phasenändernde Stöße kein Transfer hervorgerufen wird, da die beim Stoß übertragene Energie $k_B T$ viel kleiner ist als die Energie des optischen Übergangs $\hbar\omega_0$. Anders sieht es innerhalb einer Mannigfaltigkeit aus [95, 96]. Deren Aufspaltung $\hbar\Omega$ ist in der Regel bei Raumtemperatur deutlich kleiner als $k_B T$, in diesem Experiment sind jedoch beide Energien in der gleichen Größenordnung. Die kollisionsunterstützten Übergangsraten zwischen $|2(N)\rangle$ und $|1(N)\rangle$ sind

$$\Gamma_{2(N)\rightarrow 1(N)}^{\text{col}} = \Gamma_{1(N)\rightarrow 2(N)}^{\text{col}} = \Gamma^c, \quad (2.85)$$

und in Abb. 2.7 eingezeichnet. Die Entwicklung der Populationen $p_{1(N)}$ und $p_{2(N)}$ ist wie folgt gegeben:

$$\frac{d}{dt}p_{1(N)} = -\Gamma^c(p_{1(N)} - p_{2(N)}), \quad (2.86)$$

$$\frac{d}{dt}p_{2(N)} = -p_{1(N)}. \quad (2.87)$$

Als stationäre Lösungen erhält man

$$p_{1(N)} = \frac{\Gamma_{2(N)\rightarrow 1(N)} + \Gamma^c}{\Gamma_{1(N)\rightarrow 2(N)} + \Gamma_{2(N)\rightarrow 1(N)} + 2\Gamma^c}, \quad (2.88)$$

2 Grundlagen zur atomaren Druckverbreiterung

$$p_{2(N)} = \frac{\Gamma_{1(N) \rightarrow 2(N)} + \Gamma^c}{\Gamma_{1(N) \rightarrow 2(N)} + \Gamma_{2(N) \rightarrow 1(N)} + 2\Gamma^c}. \quad (2.89)$$

bzw. als Funktion des Mischwinkels ausgedrückt

$$p_{1(N)} = \frac{\Gamma \sin^4 \Theta + \Gamma^c}{\Gamma(\cos^4 \Theta + \sin^4 \Theta) + 2\Gamma^c}, \quad (2.90)$$

$$p_{2(N)} = \frac{\Gamma \cos^4 \Theta + \Gamma^c}{\Gamma(\cos^4 \Theta + \sin^4 \Theta) + 2\Gamma^c}. \quad (2.91)$$

Im Grenzfall $k_B T \gg \hbar \Omega$ ist die stoßinduzierte Übergangsrates in beide Richtungen gleich groß. Im Limit $\Omega_1 \ll \delta \ll \tau_c^{-1}$ ergibt sich eine Umverteilung der Frequenzkomponenten [97, 98]:

$$I(\omega_0) = \frac{\gamma_c \Omega_1^2}{2\delta^2} \quad (2.92)$$

$$I(\omega_L) = \frac{\Gamma \Omega_1^2}{4\delta^2} \quad (2.93)$$

$$I(2\omega_0 - \omega_L) = \frac{\Gamma \Omega_1^4}{16\delta^4}. \quad (2.94)$$

Als Gesamtintensität erhält man

$$I_{\text{ges}} = \frac{\Omega_1^2}{4\delta^2} (\Gamma + 2\gamma_c). \quad (2.95)$$

In Kapitel 4 wird gezeigt, dass im extrem druckverbreiterten Bereich $k_B T \simeq \hbar \Omega$ bei starker resonanter Laseranregung die Populationen nicht mehr gleichverteilt sind, sondern, durch die intensive Kopplung an ein thermisches Bad, einer Boltzmann-Verteilung folgen [65, 94, 99, 100, 101].

2.6 Optische Kollisionen

Zum Verständnis von Stößen bei Anwesenheit eines Laserlichtfeldes kann man das Problem auch von einem anderen Standpunkt aus betrachten, nämlich als effektiven Dreikörperstoß, der den Energieaustausch zwischen dem Lichtfeld und den stoßenden Atomen berücksichtigt [64, 106].

Dieser Ansatz ist unter dem Begriff *Laser-induced radiative collision* bekannt. Relevant wird die Beschreibung für $\delta \simeq k_B T$, also besonders dann, wenn die typische Energie eines thermischen Bades in der Größenordnung der Photonenverstimmung liegt. Die Beschreibung ist sehr nützlich für die Beschreibung lichtinduzierter chemischer Prozesse [103], und ganz allgemein lässt sich der Vorgang wie eine chemische Gleichung zwischen den Stoßpartnern A und B schreiben, mit der zusätzlichen Energie der beteiligten Photonen:



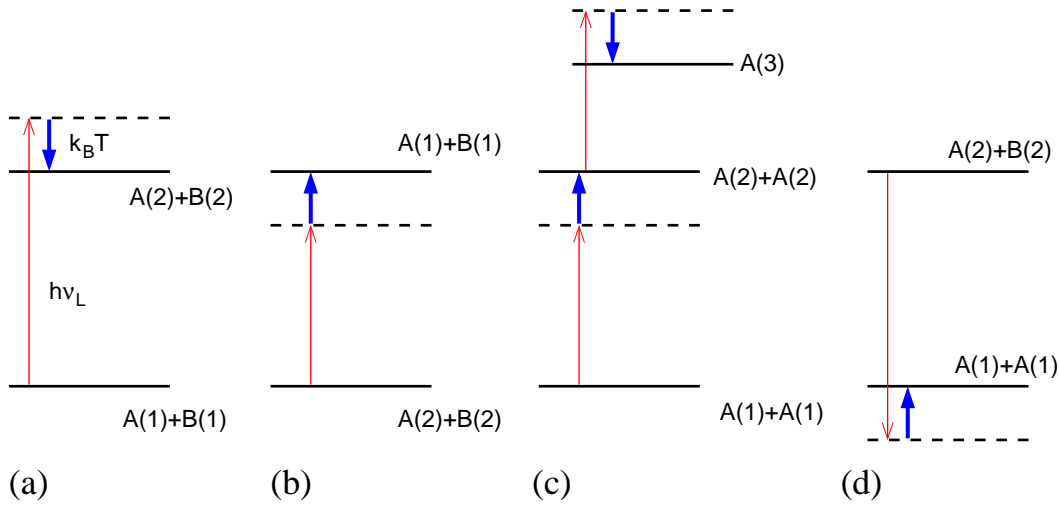
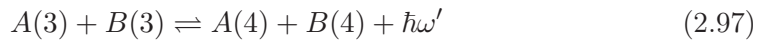


Abbildung 2.8: a), b) Stoßinduzierte Anregung für verschiedene Verstimmungen. c) Stoßinduzierter Energie-Transfer [102, 103] oder auch Zweiphotonenabsorption [104]. d) Stoßunterstützte induzierte Emission [100, 105]. Die dargestellten Prozesse sind ohne die Stoßenergie in der Größenordnung $k_B T$ nicht möglich.



Die instruktive Schreibweise macht deutlich, dass bei solchen Reaktionen je nach Verstimmung des Lasers ein Energieaustausch stattfinden kann. Einige Möglichkeiten sind in Abb. 2.8 aufgeführt.

Gerade bei Verstimmungen $\delta \simeq k_B T$ kann bei starker Laserintensität eine intensive Wechselwirkung zwischen thermischen Bad und dem Atom-Lichtsystem entstehen, da die Energieskalen vergleichbar werden.

Dieser Energieaustausch zwischen Bad und angeregten Atomen ist fundamental für die in dieser Arbeit diskutierten Effekte. Er bringt die Populationen der gekoppelten Atom-Licht-Zustände in ein detailliertes Gleichgewicht und ermöglicht es schließlich thermische Energie über optische Kühlung aus dem System zu entfernen. Daneben spielt der Energieaustausch zwischen internen und externen Freiheitsgraden eine Rolle beim sogenannten *energy pooling*, bei dem zwei angeregte Atome über stoßinduzierten Energie-Transfer eines der Atome sehr hoch anregen [102, 107].

Unter dem Begriff *Optical collisions* [55] wurden besonders in den 1970er und 80er Jahren zahlreiche Forschungsarbeiten veröffentlicht, von denen hier die Arbeiten zum *Optical piston effect* [108, 109, 110, 111] und laserinduzierte chemische Kollisionen [67, 112] erwähnt werden sollen.

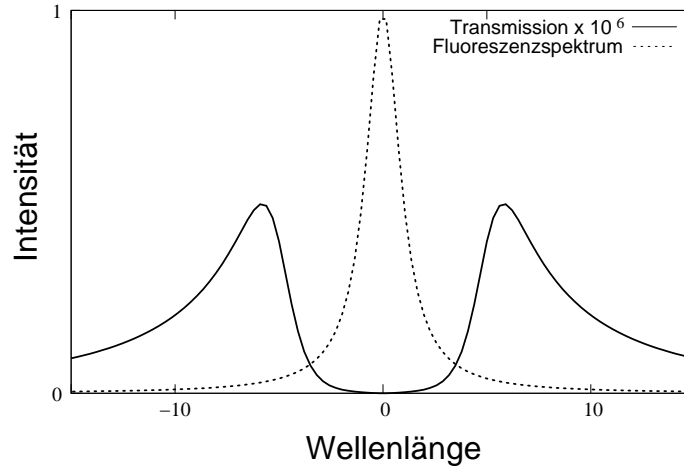


Abbildung 2.9: Schematische Darstellung zum Strahlungseinschluss. Gestrichelt ist das Lorentzförmige Emissionsprofil der Atome dargestellt. Nach mehrmaliger Reabsorption der Fluoreszenzphotonen in einem optisch dichten Gas erwartet man in Vorwärtsrichtung das durchgezogene Transmissionsspektrum. Um die Resonanzfrequenz ist das Medium optisch dicht, und man erhält in diesem spektralen Bereich keine Transmission. Zu den Flanken des Absorptionsspektrums hin wird das Medium optisch dünner. Die Photonen, die hier transmittiert werden, wurden im Mittel mehrmals absorbiert und reemittiert [114, 115].

2.7 Strahlungseinschluss

In dichten Gasen nimmt die Wahrscheinlichkeit zu, dass Fluoreszenzphotonen reabsorbiert werden, wodurch die Photonen effektiv länger im Gas verbleiben. Man spricht vom Strahlungseinschluss oder *radiation trapping*. Der Anteil der angeregten Atome setzt sich somit aus den direkt von einem externen Laserfeld angeregten Atomen, sowie den durch Fluoreszenz angeregten, zusammen. Beschreiben lässt sich dies mit der Holstein-Biberman-Gleichung [56, 113]:

$$\frac{dn(\mathbf{r}, t)}{dt} = S(\mathbf{r}, t) + \gamma \int_{\text{Vol}} K(\mathbf{r} - \mathbf{r}') n(\mathbf{r}', t) d^3\mathbf{r}' - \gamma n(\mathbf{r}, t), \quad (2.98)$$

wobei $n(\mathbf{r}, t)$ den Anteil der angeregten Atome am Ort \mathbf{r} , und $S(\mathbf{r}, t)$ die Anregungsrate durch das Laserfeld ist. Der Kern des Integrals $K(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$ bezeichnet die Wahrscheinlichkeit zur Reabsorption eines Fluoreszenzphotons am Ort \mathbf{r} , das von einem Atom am Ort \mathbf{r}' emittiert wurde. Wir betrachten $K(x) = K(|r - r'|)$ und drücken $K(x)$ durch den Transmissionfaktor $T(x)$ aus:

$$K(x) = \frac{1}{4\pi x^2} \frac{dT(x)}{dx}, \quad (2.99)$$

mit

$$T(x) = \int_0^\infty L(\omega) \exp(-k(\omega)x) d\omega, \quad (2.100)$$

2.7 Strahlungseinschluss

wobei $L(\omega)$ die normierte spektrale Verteilung der Emission ist. Für den Fall kompletter Redistribution der Fluoreszenz gilt für $k(\omega)$

$$k(\omega) = \frac{\lambda^2}{8\pi} n\Gamma \quad (2.101)$$

Für relativ kleine optische Dichten ($kx \simeq 1$) ist das Lambert-Beersche Gesetz, $T(x) \simeq \exp(-kx)$, weitgehend erfüllt, und das Transmissionspektrum ist weitgehend ähnlich zum Fluoreszenzspektrum. Für große optische Dichten erhält man hingegen $T(x) \simeq (\pi kx)^{-1/2}$ [115]. Beide Situationen sind in Abb. 2.9 dargestellt.

2 Grundlagen zur atomaren Druckverbreiterung

3 Experimenteller Aufbau

Nachdem Voruntersuchungen mit wenigen Bar Puffergas und Temperaturen bis 200°C begonnen wurden, war absehbar, dass wesentlich höhere Drücke und Temperaturen nötig sind, um in experimentell für uns interessante Bereiche zu gelangen. Diese extremen Bedingungen erzeugen einige Schwierigkeiten bei der Konstruktion einer geeigneten Spektroskopiezelle, die offenbar auch früher in der ein oder anderen Form nicht unbekannt waren¹, und auch bei gegenwärtigen experimentellen Ansätzen wurden dem jeweiligen Experiment angepasste Kompromisslösungen gefunden, aber bei weitem nicht alle Probleme gelöst [116, 117, 118]. In der chemischen Industrie treten derartige hohe Drücke und Temperaturen durchaus oft auf, allerdings wird dort meist kein hochwertiger optischer Zugang benötigt, und dort benutzte Standardkomponenten sind nur eingeschränkt für Laborforschung geeignet. Quarzbasierte Fenster neigen bei Temperaturen über 140°C dazu, Rubidium zu adsorbieren und chemisch zu binden, schieden also als Fenster aus. Saphir ist hinsichtlich spektraler Transmissivität, chemischer und mechanischer Belastbarkeit gut geeignet und der thermische Ausdehnungskoeffizient liegt relativ nahe an dem des Stahls, der für den Zellenkörper verwendet wurde. Beim Stahl musste auf hochwarmfeste Legierungen zurückgegriffen werden, die auch bei Temperaturen über 300°C dauerhaft ihre Festigkeit behalten. Für Hochdruck zugelassene Stahlsorten sind dabei meist kohlenstoffarm und damit wenig korrosionsbeständig. Der kritische Punkt beim Zellendesign ist die Abdichtung der Fenster zum Stahlkörper. Diese muss bei großen Temperaturwechseln beständig gegen Vakuum während der Ausheizphasen und gegen Hochdruck im Normalbetrieb sein, in dem sie zusätzlich chemisch aggressivem Rubidiumdampf ausgesetzt wird [119].

Für die Versuche wurde eine selbstentworfene und in der vorhandenen Feinmechanikwerkstatt gefertigte Zelle verwendet, sowie eine nach meinen Vorgaben gefertigte Zelle eines Spezialherstellers, die ein technisch verschiedenes Dichtprinzip verwendet. Mit beiden Zellen konnten erfolgreich Untersuchungen durchgeführt werden, allerdings traten bei beiden spezifische Probleme auf, die kontinuierliches Experimentieren öfter unterbrachen.

¹In spite of these rather useful properties, we feel compelled to add a warning that constructing and aligning such an instrument is a job for a patient man.' [66]

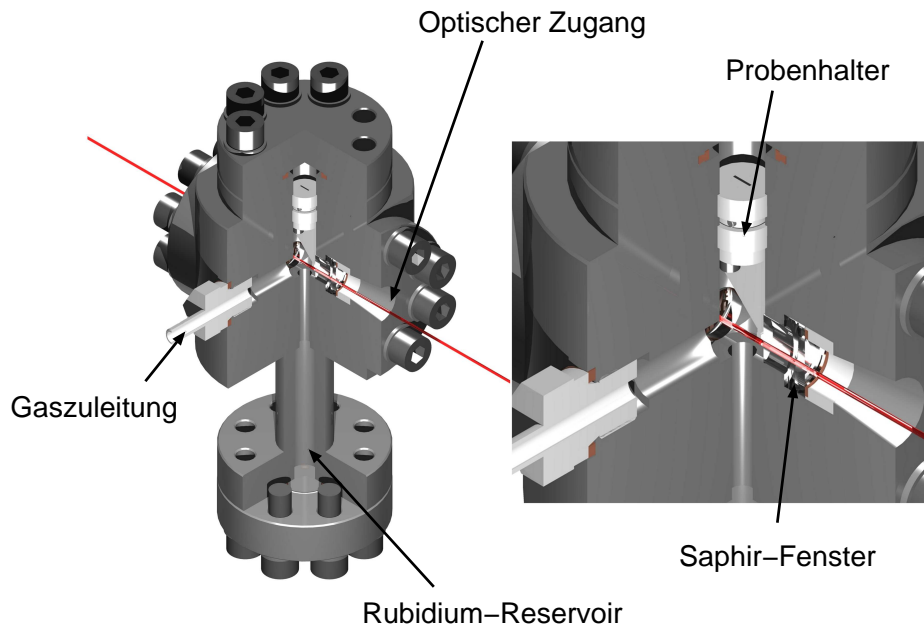


Abbildung 3.1: In der Instituts-Feinmechanikwerkstatt gefertigte Hochdruckzelle. Das metallische Rubidium wird in einem verjüngtem Teil der Zelle platziert, um durch differentielles Heizen den Rubidiumdampfdruck einstellen zu können, und vor allem, damit die Fenster stets heißer sind als der Stahl am Rubidiumreservoir, und Rubidiumkondensation dort vermieden wird.

3.1 Hochdruckzellen

3.1.1 Selbstgebaute Zelle

In Abb.3.1 ist der Aufbau der selbstentworfenen Zelle gezeigt. Der Zellenkörper, Flansche und Schrauben sind aus Stahl vom Typ 17.73 gefertigt, die minimale Wandstärke beträgt 1 cm, womit die Sicherheitsvorgaben (BetrSichV und GPSG) für Hochdruckbehälter mit kleinem Volumen erfüllt sind. Für die Gaszuleitungen werden Hochdruckarmaturen der Firma *Swagelok* verwendet. Die Saphirfenster mit Durchmesser 15 mm werden mit silberbeschichteten C-Ring-Dichtungen an die Zelle geflanscht. Diese Dichtungen haben im Querschnitt ein C-förmiges Profil, das beim Anflanschen leicht zusammengedrückt und vorgespannt wird. Bei hohem Druck in der Zelle wird diese Vorspannung durch den innen angreifenden Druck unterstützt. Mit diesen Dichtungen konnten Leckraten von $< 10\text{bar/Woche}$ erreicht werden. Allerdings sind hohe Anforderungen an die Oberflächengüte der Dichtflächen gestellt, und die Dichtungen sind sehr empfindlich gegen schnelle Temperatur- und Druckschwankungen sowie mechanische Einflüsse. Der freie optische Zugang misst 10 mm im Durchmesser, der minimale Arbeitsabstand zum Zellenmittelpunkt beträgt 6 cm. Ein Vorteil des Designs ist, dass einfach und kostengünstig über einen Wechsel der Fenster die optische Weglänge durch das Gas im Bereich von 2 bis 10 mm geändert

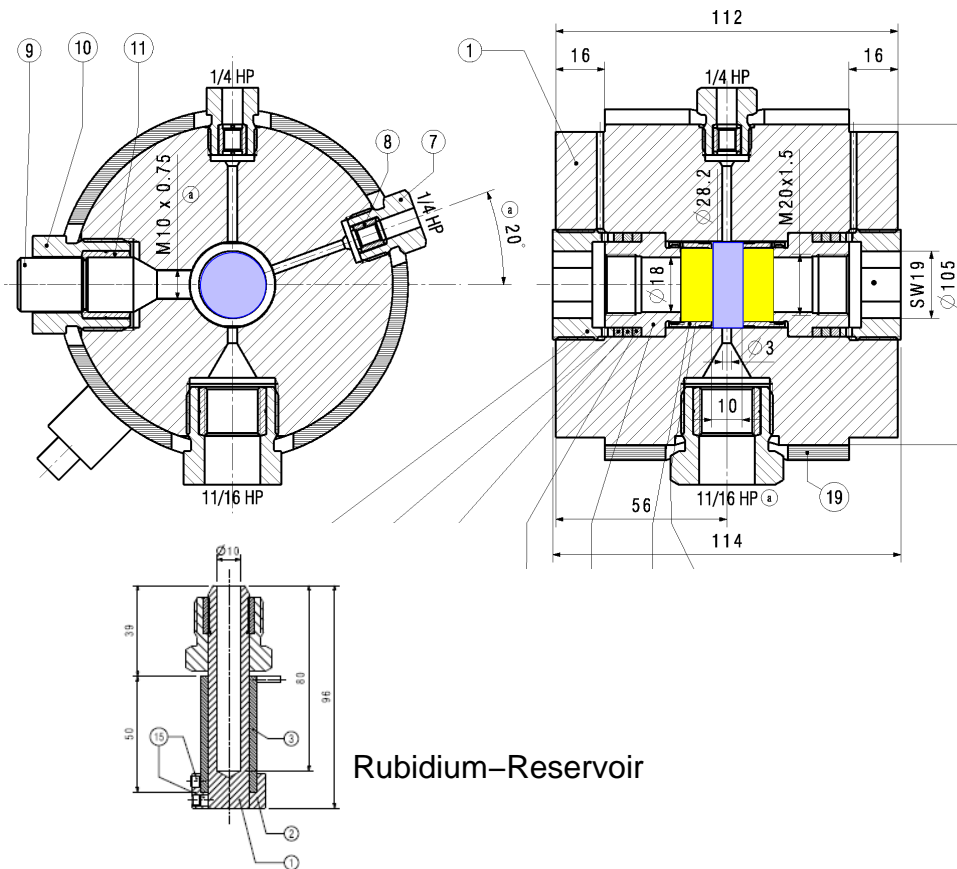


Abbildung 3.2: Das Design der extern gefertigten Hochdruckzelle konnte für die Bedürfnisse des Experiments angepasst werden. Gezeigt sind zwei Querschnitte durch die Zelle, das Gasvolumen ist blau hinterlegt. Gelb eingezeichnet sind die Saphirfenster. Auch hier wird das Rubidium in einem verjüngtem Teil der Zelle eingebracht, um den Rubidium-Partialdruck separat über die dortige Temperatur zu kontrollieren.

werden kann. Dazu werden die flachen Saphirfenster ersetzt durch Fenster mit T-förmigem Querschnitt, so dass der Saphir weiter in die Zelle ragt. Zusätzlich kann über einen weiteren Flansch ein Probenhalter eingeführt werden.

3.1.2 Kommerzielle Zelle

Die verwendete kommerzielle Zelle ist in Abb. 3.2 gezeigt. Sie wurde in Zusammenarbeit mit der Schweizer Firma *Sitec Sieber Engineering* entworfen und gefertigt, die sich auf Sonderanfertigungen für Hochdruckanwendungen spezialisiert hat. Die Saphirfenster werden hier über sogenannte Bridgman-Dichtungen [120] befestigt. Hierbei wird der Rand der Saphirfenster mit geeignetem Metall bedampft und auf einen massiven Metallstopfen vorbefestigt. Der Fensterstopfen wird über robuste Metall-

3 Experimenteller Aufbau

dichtungen an den Zellenkörper gepresst. Die eigentliche Dichtigkeit bildet sich erst bei Überdruck von innen aus. Dann wird der Saphir durch den von innen angreifenden Gasdruck fest gegen den Fensterstopfen gepresst, und je mehr Druck von innen wirkt, desto besser dichtet die aufgedampfte Metallschicht ab. Dies ist ideal für den Betrieb bei sehr hohem Druck, allerdings zeigte dieses Dichtsystem zwei Nachteile. Während der Ausheizphase muss die Zelle abgepumpt werden, bei hohen Temperaturen löst sich der Saphir aber bei Überdruck von außen leicht vom Fensterstopfen, so dass man hier maximal auf 80°C heizen kann, wodurch man eine gute Zellenreinheit erst nach einigen Tagen Ausheizens erhält. Weiter wird die dünne metallische Dichtschicht durch den heißen Rubidiumdampf angegriffen. Das ursprünglich eingesetzte Gold war nach ca. einer Woche bei 350°C soweit chemisch umgesetzt, dass Lecks auftraten. Silber widerstand deutlich besser, zeigte aber bei einer Revision auch sichtbare chemische Veränderungen. Nickel zeigte bisher die besten Resultate und die Zelle blieb damit in einigen Fällen über Monate dicht. Das chemische Verhalten der Dichtungen ist somit schwierig vorherzusagen, da es auch für die Schweizer Konstrukteure überraschend war, dass das chemisch edle Gold versagt, wogegen das unedle Nickel gute Ergebnisse liefert. In der Literatur werden Gold-Rubidium Reaktionen erst ab 700°C beschrieben [121]. Bei weiteren Versuchen waren die Dichtungen beständig gegen heißen Wasserdampf, gegen heißen Ioddampf während einer Zeitdauer von zwei Wochen.

3.1.3 Betriebsparameter der Zellen

Die Zellen wurden auf Temperaturen bis zu 500°C geheizt. Der Zellenkörper der Schweizer Zelle ist mit einem keramisch eingefassten Heizmantel ausgestattet, die selbstgebaute mit Heizkabeln. Temperatursteuerung und -regelung geschieht über einen Mehrkanal-Heizregler (Typ HT60, *Horst GmbH*), womit gleichmäßiges Rampen der Temperatur möglich ist, so dass zerstörende Verspannungen an den Fenstern vermieden werden können. Wichtig ist, einen Teil der Zelle kühler zu halten als die Fenster, damit der Rubidiumdampf nicht an den Fensterflächen kondensiert und den optischen Zugang verschmutzt. Das Rubidium wurde in 1 g-Ampullen in natürlicher Isotopenverteilung in der Zelle deponiert. Durch Erhitzen der Zelle stellt sich der Gleichgewichtsdampfdruck im Zellenvolumen ein [122]:

$$\log_{10} P = 15.88253 - \frac{4529.635}{T} + 0.00058663T - 2.99138 \log_{10} T. \quad (3.1)$$

Die entsprechende Teilchenzahldichte ist Abb. 3.3 dargestellt.

Als Puffergas wurden Argon und für einige Messungen auch Helium eingesetzt. Die Druckmessung erfolgte über ein an die Zelle angeschlossenes Federmanometer (Fa. *Empeo*). Der Gasdruck wird in dieser Arbeit durchgehend in der Einheit Bar angegeben, zum einen schlicht, um Konfusionen mit den Anzeigen der verwendeten Messgeräte zu vermeiden, zum anderen ist es die überwiegend verwendete Einheit in den einschlägigen Referenzen. Die Umrechnung in die gültige SI-Einheit Pascal ist einfach: 1 bar = 100000 Pa. Da bei den späteren Messungen das Verhältnis

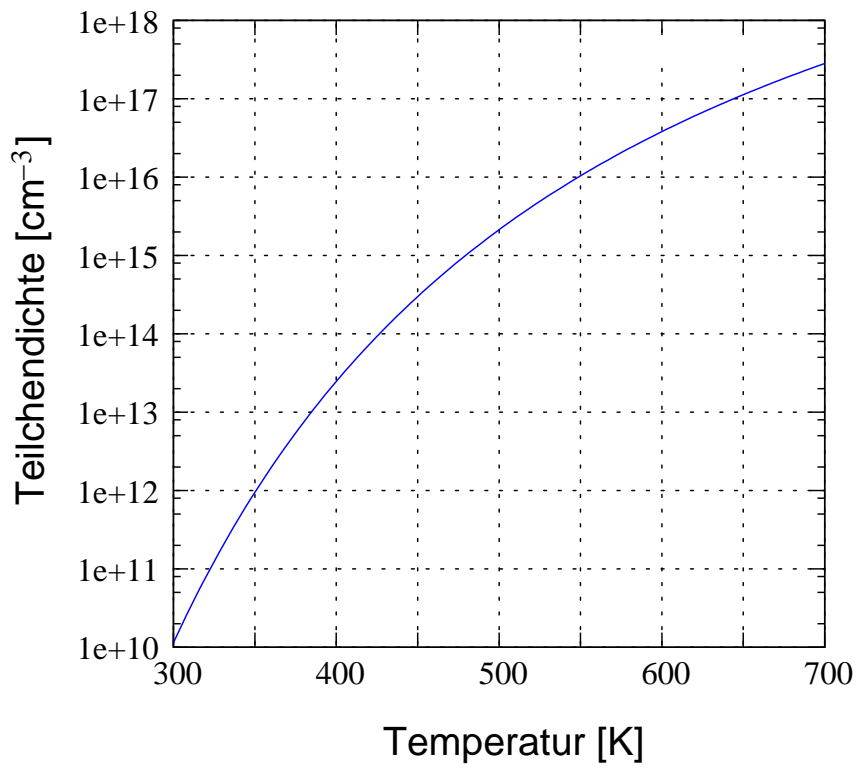


Abbildung 3.3: Teilchendichte von Rubidium abhängig von der Temperatur bei gesättigtem Dampfdruck [122].

3 Experimenteller Aufbau

Rubidium/Puffergas bei etwa $1:10^5 - 10^6$ lag, musste sehr reines Edelgas verwendet werden. Selbst einige Chargen mit vom Hersteller (*Praxair*) angegebener Verunreinigung < 1 ppm waren unbrauchbar, es stellte sich kein nennenswerter Rubidiumdampfdruck ein, was wahrscheinlich auf Restverunreinigung mit Kohlenwasserstoffen zurückzuführen ist, die das Rubidium binden. Für die Versuche wurden Gase des Herstellers *Airlíquide* der Reinheitsstufe 6.0 verwendet, bei denen die Restverunreinigungen keine erkennbaren Probleme bereiteten.

3.2 Charakterisierung

Um generell das System zu charakterisieren, wurden einige Messungen zur Druckverbreiterung und Lebensdauermessungen durchgeführt. Bei relativ kleinen Puffergasdrücken unter 1 bar erhält man noch Voigt-Profile, die auch Anteile der Dopplerverbreiterung zeigen. Dieser Druckbereich ist gut dokumentiert [68, 70, 73, 123, 124], und einige Messungen in diesem Bereich wurden in einer vorangegangenen Diplomarbeit durchgeführt.

3.2.1 Lasersystem und Detektion

Für die experimentellen Untersuchungen war es nötig, eine hohe Anregung des atomaren Ensembles auch bei Verstimmungen von der Resonanz in der Größenordnung von $\delta = k_B T/h$ zu erreichen, was bei den herrschenden Temperaturen etwa 10 THz entspricht. Als geeignete Laserquelle mit Durchstimmbareit über den benötigten Wellenlängenbereich wurde ein Titan-Saphir-Laser (*Coherent*, MBR 110) verwendet, der von einem frequenzverdoppelten Nd:YVO₄-Laser (*Coherent*, Verdi V-18) mit maximal 18 W Leistung gepumpt wurde. Mit den verwendeten Spiegelsätzen ließ sich der Titan-Saphir-Laser über einen Wellenlängenbereich von 710 - 940 nm betreiben. Die maximale Ausgangsleistung betrug etwa 4 W.

Der vereinfachte experimentelle Strahlengang, der für die Charakterisierungsmessungen verwendet wurde, ist in Abb. 3.4 zu sehen. Hiermit wurde mit Fluoreszenzspektroskopie die Druckverbreiterung von Rubidium in den Puffergasen Argon bzw. Helium bestimmt, und die Lebensdauer der angeregten Rubidium-Atome in Abhängigkeit vom Puffergasdruck bestimmt.

3.2.2 Druckverbreiterung

Die Druckverbreiterung und Druckverschiebung wurde im Bereich von 1-400 bar für Argon als Puffergas bestimmt. Die gemessenen Parameter für Druckverbreiterung und Linienverschiebung liegen im Bereich der dokumentierten Werte, und zeigen für die Druckverbreiterung und -verschiebung einen weitgehend linearen Verlauf mit zunehmendem Puffergasdruck, wie in Abb. 3.5 für die D2-Linie gezeigt. Die hier ermittelte Druckverbreiterung mit Puffergas Argon liegt für die Rubidium D1-Linie bei etwa $7.2 \frac{\text{GHz}}{\text{bar}}$, die Druckverschiebung $-6 \frac{\text{GHz}}{\text{bar}}$. Die Werte für den D2-Übergang

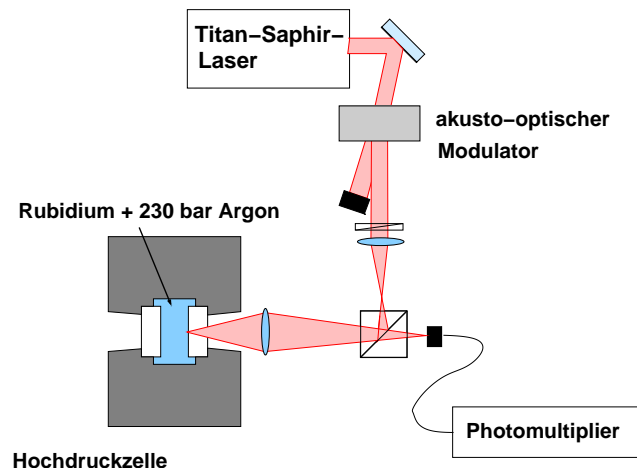


Abbildung 3.4: Strahlengang zur Vermessung der Druckverbreiterung und der Lebensdauer der angeregten Zustände.

sind vergleichbar (Druckverbreiterung $5.9 \frac{\text{GHz}}{\text{bar}}$, Druckverschiebung $-3.3 \frac{\text{GHz}}{\text{bar}}$). Die ermittelten Werte sind konsistent mit dokumentierten Werten [48, 125]. Die Hyperfeinstruktur ist bei den hohen Drücken hier nicht aufgelöst.

Ein weiterer Effekt zeigte sich im vergleichsweise moderaten Druckbereich 100 bar bei 270°C . Wie in Abb. 3.6 ersichtlich, zeigt sich hier eine bimodale Verteilung um die Rubidium D1-Linie. Hierzu muss ergänzt werden, dass Stöße gleichartiger Atome einige Besonderheiten aufweisen, die in Kapitel 2 nicht erwähnt wurden. Die Druckverbreiterung ist hier in der Regel deutlich stärker als bei verschiedenartigen Stoßpartnern und es tritt in erster Ordnung keine Druckverschiebung auf. Beide Verbreiterungsmechanismen wurden getrennt für Rb-Ar-Stöße und Rb-Rb-Stöße ausführlich beschrieben [48], und es ist natürlich, anzunehmen, dass sie parallel nebeneinander stattfinden, eine aufgelöste Messung ist mir dennoch bisher aus der Literatur nicht bekannt.

3.2.3 Lebensdauerermessung

Stöße mit Edelgasatomen lassen die Lebensdauer angeregter Alkaliatome weitgehend unbeeinflusst [44, 126], dies wurde bei den bekannten Messungen allerdings nicht unter den hier auftretenden hohen Gasdrücken getestet. Da unser experimenteller Ansatz darauf beruht, dass die Lebensdauer des angeregten Zustands von Rubidium deutlich größer ist als die inverse Stoßrate, wurde die Lebensdauer der angeregten Rubidiumzustände in unserem System vermessen. Hierzu wurde der anregende Laserstrahl mit einem Rechteckpuls unterbrochen, so dass der zeitliche Abfall der Fluoreszenz direkt beobachtet werden konnte. Für die Messung wurde ein akustooptischer Modulator (*Crystal Technology*, AOMO 3350-121) verwendet, der über einen TTL-Schalter mit Rechteckpulsen geschaltet wurde. Die Fallzeit der Pulsflanke konnte hier auf 6 ns optimiert werden. Das Fluoreszenzsignal wurde mit einem Photomultiplier

3 Experimenteller Aufbau

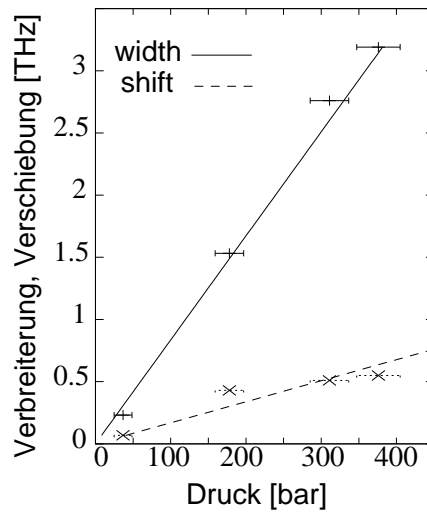


Abbildung 3.5: Druckverbreiterung und -verschiebung der Rubidium D2-Linie mit Puffergas Argon in Abhängigkeit vom Puffergasdruck. Die daraus bestimmte Druckverbreiterung ist etwa $5.9 \frac{\text{GHz}}{\text{bar}}$, die Druckverschiebung $-3.3 \frac{\text{GHz}}{\text{bar}}$.

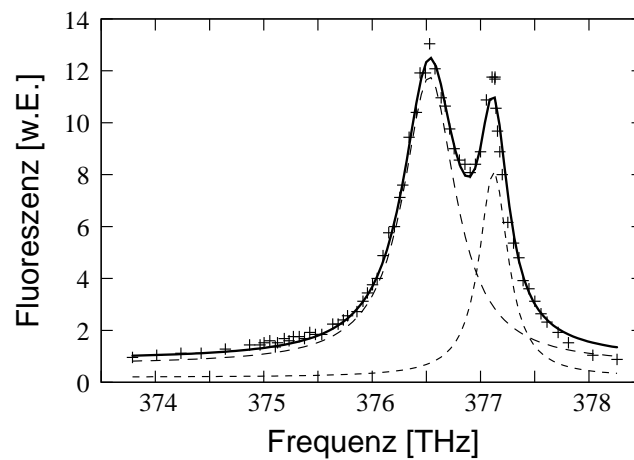


Abbildung 3.6: Druckverbreitertes Spektrum der Rubidium D1-Linie bei 100 bar Argon und 270°C abhängig von der anregenden Laserfrequenz. In diesem Parameterbereich sind die unterschiedlichen Beiträge zur Druckverbreiterung von Rb-Ar-Stößen und Rb-Rb-Stößen erkennbar. Stöße gleichartiger Atome erzeugen eine Druckverbreitete Linie ohne Druckverschiebung der Rubidium-D1-Linie bei 377.1 THz. Rubidium-Argon-Stöße erzeugen ein zusätzliches rotverstimmt Druckverschobenes Maximum. Bei höheren Puffergasdrücken wird der Anteil der Rb-Rb-Stöße vernachlässigbar.

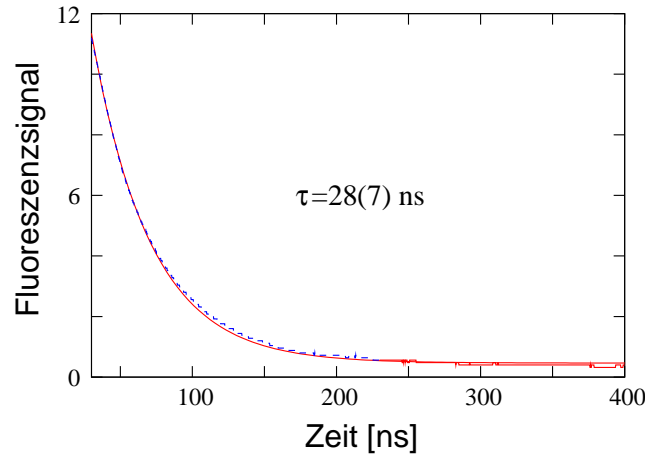
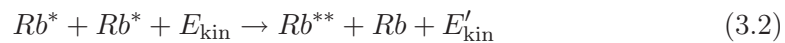


Abbildung 3.7: Direkte Lebensdauermessung der angeregten Rubidiumatome bei 300 bar Argon Puffergasdruck und 280°C (rot). An die Daten angepasst ist ein exponentieller Abfall. Im Rahmen der Fehlergrenzen liegt die beobachtete Lebensdauer nahe bei der natürlichen Lebensdauer 27 ns.

(Hamamatsu R943-02) mit Anstiegszeit $< 1 \text{ ns}$ aufgezeichnet. Dies berücksichtigt, ergibt sich bei hohen Puffergasdrücken eine experimentell bestimmte Lebensdauer von 28(7) ns (vgl. Abb. 3.7). Die natürliche Lebensdauer der Rubidium $5P$ -Zustände liegt bei etwa 27 ns, so dass im Rahmen der Messgenauigkeit die Rubidium-Argon-Stöße auch bei einigen 100 bar Argondruck weitgehend elastisch sind. Erwähnt werden soll, dass bei späteren Messungen, bei denen die Rubidiumdichte höher war, längere Abfallzeiten beobachtet wurden. Eine entsprechende Messung ist in Abb. 3.9 gezeigt, für die eine um 11 ns verlängerte Abfallzeit beobachtet wurde. Dies wird auf *radiation trapping* zurückgeführt. Die spektral aufgelöste Fluoreszenz in Vorwärtsrichtung zeigt eine entsprechende Signatur mit verminderter Transmission bei den Resonanzen (vgl. Abb. 3.8).

Bei kleineren Puffergasdrücken misst man zum Teil deutlich längere Lebensdauern bis $1 \mu\text{s}$. Dies wird auf die Bevölkung höherer angeregter Zustände zurückgeführt [102]. Stoßen zwei angeregte Rubidiumatome, kann die zweifache Anregungsenergie und die kinetische Energie der Atome ausreichen, eines der beiden Atome über stoßinduzierten Energie-Transfer in einen noch höheren Zustand zu heben.



Direkt zu beobachten ist dieses sogenannte *energy pooling* in den $6P$ Zustand, der mit blauem Licht bei etwa 425 nm zerfällt (Abb. 3.10 und Abb. 3.11). Die so angeregten Atome haben Lebensdauern deutlich über 27 ns, und können den $5P$ Zustand nachbevölkern, so dass insgesamt eine verlängerte Lebensdauer beobachtet wird. Bei höheren Puffergasdrücken nimmt dieser Effekt ab, da die Rubidiumatome zunehmend voneinander von den Puffergasatomen abgeschirmt werden, und die Rate von Stößen zwischen zwei angeregten Rubidiumatomen abnimmt [123].

3 Experimenteller Aufbau

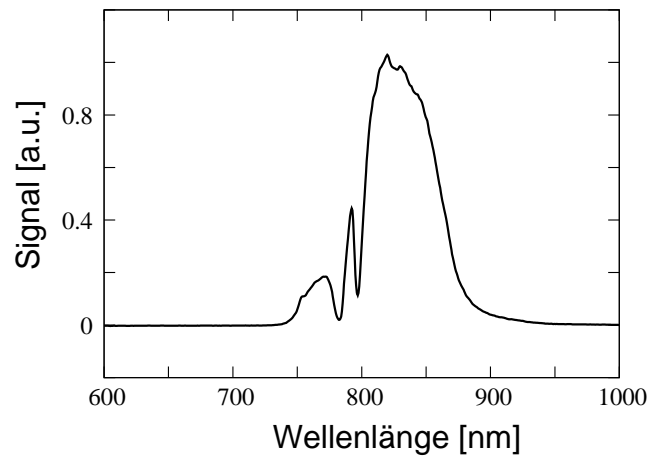


Abbildung 3.8: Fluoreszenzspektrum von Rubidium in Vorwärtsrichtung bei 250°C und 230 bar Argon nach 1 cm Strecke durch das Gas. Die $D1$ - und $D2$ -Linien von Rubidium sind als Dips bei 780 und 795 nm erkennbar. Hier ist das Gas weitgehend optisch dicht, und man erkennt die Signatur von *radiation-trapping* [115].

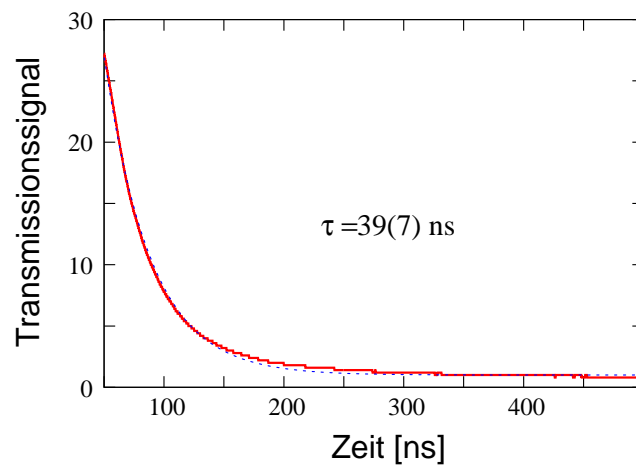


Abbildung 3.9: Lebensdauerermessung der angeregten Rubidiumatome bei 230 bar Argon Puffergasdruck und 300°C in Vorwärtsrichtung nach 1 cm Strecke durch das Gas (rot). Angepasst ist ein exponentieller Abfall. Im Rahmen der systematischen Fehler liegt die gemessene Lebensdauer bei 39 ns.

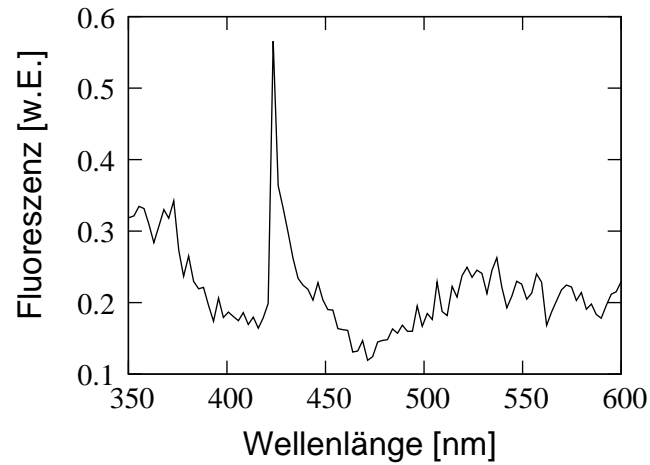


Abbildung 3.10: Fluoreszenz bei 425 nm. Stoßinduzierter Energie-Transfer zwischen jeweils zwei angeregten Rubidiumatomen hebt Rubidiumatome auf das $6P$ -Niveau. Der als blaues Fluoreszenzlicht beobachtbare Zerfallskanal in den Grundzustand hat ohne Druckverschiebung die Wellenlänge 421 nm [102].

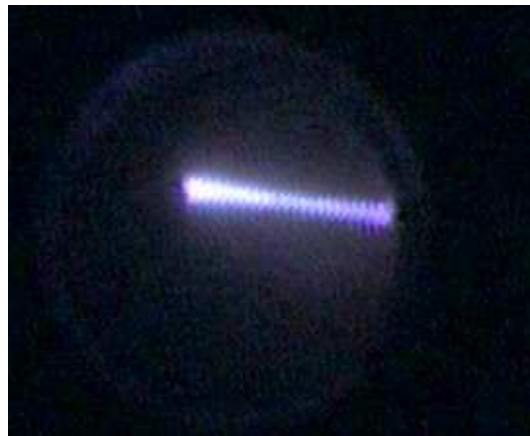


Abbildung 3.11: Der Effekt von *energy pooling* ist mit bloßem Auge beobachtbar als blaues Fluoreszenzleuchten in der mit dem Laser in dieser Aufnahme bei 800 nm ausgeleuchteten Region in der Zelle. Für die Justage des optischen Strahlengangs war dieser Nebeneffekt oft sehr nützlich.

3 Experimenteller Aufbau

4 Thermalisierung gekoppelter Atom-Licht-Zustände

Das einfach zu beschreibende Modell eines Zweiniveausystems, das an ein monochromatisches Lichtfeld koppelt, bietet zahlreiche experimentelle Ansätze [43, 127]. Eine besonders interessante Entwicklung führte im Bereich der Festkörperphysik zur Erzeugung von Bose-Einstein Kondensaten von Quasiteilchen [42, 128]. Exziton- bzw. Magnon-Anregungen in Mikro-Resonatoren aus Halbleiterstrukturen wurden dabei einem starken Laserlichtfeld ausgesetzt. Das resultierende Gesamtsystem lässt sich elegant durch die Einführung neuer Quasiteilchen, sogenannter Polaritonen beschreiben. Bei ausreichender Phasenraumdichte können diese bosonischen Quasiteilchen den Grundzustand makroskopisch besetzen [37, 38, 39, 40, 129]. Ein intrinsischer Nachteil der beschriebenen Systeme ist die vergleichsweise kurze Lebensdauer der verwendeten Zweiniveau-Anregungen von wenigen Pikosekunden. Dies reicht in der Regel nicht aus, volles thermisches Gleichgewicht der Quasiteilchen in Mikroresonatoren zu realisieren [41], so dass man die experimentellen Ergebnisse zum Teil mit Nichtgleichgewichtsdynamik nachvollzieht.

Bei atomaren Übergängen ist es dagegen sehr einfach, deutlich längere Lebensdauern zu finden. Der hier verwendete Übergang von Rubidium 5S-5P hat beispielsweise eine natürliche Lebensdauer des angeregten Zustands von etwa 27 ns. Ein gekoppeltes System aus einem Ensemble von Zweiniveau-Atomen und einem Lichtfeld lässt sich mathematisch vollkommen analog zu den erwähnten Festkörper-Polaritonen beschreiben, so dass auch hier unter geeigneten Bedingungen neuartige Phasenübergänge möglich sind [97, 130, 131, 132]. In der Mehrzahl der Experimente der Laserspektroskopie arbeitet man gewöhnlich allerdings auch weit entfernt vom thermischen Gleichgewicht. Durch die ungewöhnliche Eigenschaft von Alkali-Edelgasstößen, die Lebensdauer angeregter Alkali-Atome weitestgehend nicht zu beeinflussen, besteht die prinzipielle Möglichkeit, die getriebenen Zweiniveausysteme an ein thermisches Bad von Puffergasatomen zu koppeln und so insgesamt ins thermische Gleichgewicht zu bringen [133, 134].

4.1 Stöße im Dressed-State Bild

Für ein theoretisches Modell des Übergangs von gekoppelten Atom-Lichtzuständen ins thermische Gleichgewicht betrachten wir die relevanten Raten für die Übergänge aus Abschnitt 2.5 erneut. Wenn sich ein Puffergasatom nähert, werden die atomaren Niveaus verändert, und ein Transfer zwischen den Dressed-State Energieniveaus kann stattfinden, wenn der anregende Laser während der Kollision kurzzeitig resonant

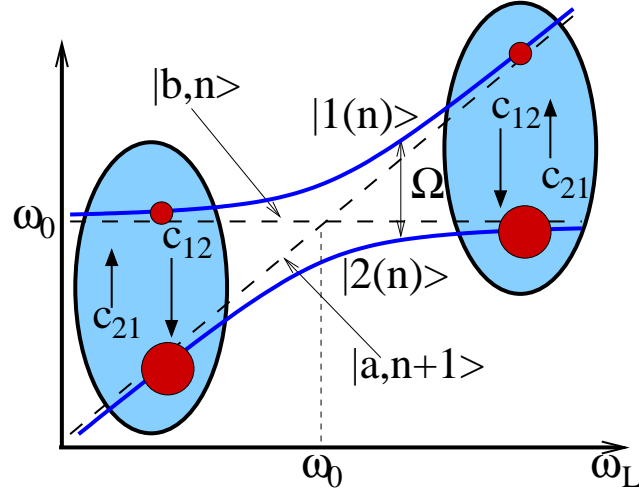


Abbildung 4.1: Die Dressed-State Energieniveaus als Funktion der Verstimmung zur Resonanzfrequenz. Über den stoßunterstützten Transfer c_{21} und c_{12} gelangen die Besetzungen in ein detailliertes Gleichgewicht.

wird. Es bezeichnen c_{21} und c_{12} die Raten für kollisionsunterstützten Transfer zwischen den Dressed-State Zuständen $|1(n)\rangle$ und $|2(n)\rangle$, wie in Abb. 4.1 skizziert. Für Zweikörperstöße in säkularer Näherung bei großer Verstimmung ($|\delta| \gg \Omega_0 \gg \Gamma$) sind diese proportional zur Puffergasdichte und Laserintensität [92]. Die endliche spontane Zerfallsrate Γ des angeregten Zustands koppelt auch Zustände verschiedener Mannigfaltigkeiten. Für ein optisch dünnes System erhält man folgende Ratengleichungen:

$$\dot{p}_1 = c_{21}(\delta)p_2 - c_{12}(\delta)p_1 - \Gamma \cos^4 \Theta p_1 + \Gamma \sin^4 \Theta p_2 \quad (4.1a)$$

$$\dot{p}_2 = -c_{21}(\delta)p_2 + c_{12}(\delta)p_1 + \Gamma \cos^4 \Theta p_1 - \Gamma \sin^4 \Theta p_2, \quad (4.1b)$$

Hier bezeichnen p_1 und p_2 die Populationen der Zustände $|1(n)\rangle$ und $|2(n)\rangle$. Den Zusammenhang zwischen den Raten c_{12} and c_{21} erhält man aus der Gleichgewichtssituation

$$\dot{p}_1 = \dot{p}_2 = 0 \quad (4.2)$$

unter Vernachlässigung des Spontanzerfalls (d.h. $\Gamma \rightarrow 0$). In dieser Näherung erhält man mit dem detaillierten Gleichgewicht der Boltzmann-Verteilung

$$p_1 = e^{\hbar\Omega/k_B T} / (1 + e^{\hbar\Omega/k_B T}) = 1 / (1 + e^{-\hbar\Omega/k_B T}), \quad (4.3)$$

was der Fermi-Dirac-Verteilung entspricht. Sie taucht, wie gezeigt nicht nur in fermionischen Systemen auf, sondern allgemein in Situationen, bei denen nur zwei diskrete Zustände zur Verfügung stehen, die nicht gleichzeitig besetzt werden können, häufig wird dieses Verhalten dann als Quasispin bezeichnet [43].

Aus Gleichung 4.3 erhält man $p_1 = 1 - p_2 = 1 / (1 + c_{12}/c_{21})$ womit man zu folgender

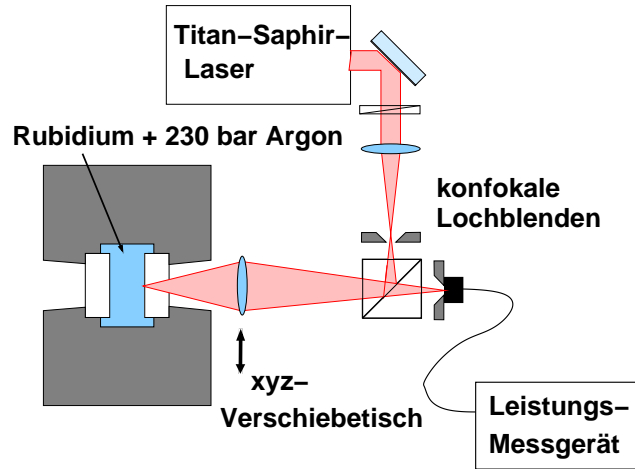


Abbildung 4.2: Konfokaler Strahlengang zur räumlich selektiven Detektion der Fluoreszenz in Rückrichtung.

Abhängigkeit zwischen den Raten gelangt:

$$c_{12} = c_{21} \cdot \exp(\hbar\Omega/k_B T) \equiv c(\delta). \quad (4.4)$$

Die erhöhte Rate in den niedrigeren Dressed-State Zweig kann als Einstellung einer Gleichgewichtspopulation zwischen quasimolekularen Zuständen betrachtet werden, wie es [96, 100] herleiten. Spontaner Zerfall verändert als Verlustprozess das Gleichgewicht des Dressed-State Systems, berücksichtigt man dies in Gl. 4.1, erhält man die stationäre Fließgleichgewichtslösung

$$p_1 = \frac{\sin^4 \Theta + s(\delta)e^{-\hbar\Omega/k_B T} / 2}{(\cos^4 \Theta + \sin^4 \Theta) + s(\delta)(1 + e^{-\hbar\Omega/k_B T}) / 2}, \quad (4.5)$$

wobei $s(\delta) = 2c(\delta)/\Gamma$ der verallgemeinerte Sättigungsparameter ist.

4.2 Experimentelle Realisierung

Für die experimentelle Untersuchung wurde mit den Puffergasen Argon bzw. Helium gearbeitet, da hier jeweils die rote bzw. blaue Flanke der Rubidium D-Linien verstärkt druckverbreitert wird [48]. Leistungsabhängige Effekte sollten unabhängig von dieser Asymmetrie sein. Die Zelltemperatur betrug 260°C , was einer Rubidium-Teilchendichte von etwa 10^{16} cm^{-3} entspricht. Das Puffergas wurde bei Raumtemperatur mit den maximal verfügbaren 230 bar eingefüllt, und das Zellenventil geschlossen. Nach der Aufheizphase erreichte man so einen Heliumdruck von etwa 400 bar und einen Argondruck von etwa 500 bar. Der höhere Argondruck erklärt sich durch das größere Kovolumen, die mit dem beschriebenen Verfahren erreichten Enddrücke sind konsistent mit den Van-der-Waals Parametern beider Gase.

4 Thermalisierung gekoppelter Atom-Licht-Zustände

Über einen konfokalen Strahlengang wurde der Laserstrahl auf einen Durchmesser von $6\ \mu\text{m}$ in die Zelle fokussiert (Abb. 4.2). Um das Fluoreszenzsignal aus dem Bereich höchster Intensität zu selektieren, wurden die beiden konfokalen Lochblenden möglichst klein gewählt. Auf Kosten des Gesamtsignals konnten so störende Reflexe sowie mehrfach gestreute Fluoreszenz weitgehend abgefiltert werden. Die laterale Auflösung war etwa $10\ \mu\text{m}$, die axiale etwa $100\ \mu\text{m}$. In Abb. 4.3 sind Spektren für verschiedene Laserleistungen gezeigt. Die Linien zeigen für Argon bzw. Helium als Puffergas bei kleiner Laserleistung jeweils die charakteristische Asymmetrie, die sich mit den jeweiligen Quasimolekülpotentialen erklären lässt [74].

4.3 Sättigungsverhalten und Thermalisierung

Genauer betrachtet wurde nun das Sättigungsverhalten der Linien, wobei sich schon aus den Spektren abzeichnet, dass an den rotverstimmten Flanken deutlich früher Sättigung eintritt als an den blau verstimmten Flanken der Linien. Exemplarisch ist das in Abb. 4.4(a) dargestellt. Gezeigt sind Sättigungskurven für rote und blaue Verstimmung, sowie für resonante Anregung der D1-Linie (mit dem Puffergas Helium).

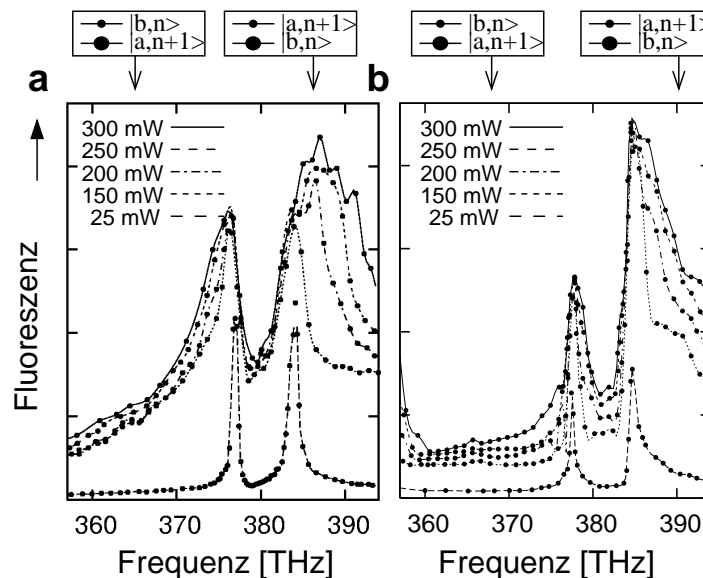


Abbildung 4.3: Rubidium Anregungsspektren für (a) 500 bar Argon und (b) 400 bar Helium Puffergasdruck. Die Spektren wurden für verschiedene Ausgangs-Laserleistungen bei gleicher Strahlgeometrie gemessen. Zu sehen sind die Feinstruktur-Übergänge bei 377 und 384 THz. Bei kleiner Laserleistung sind die druckverbreiterten Linienformen zu sehen. Bei erhöhter Laserleistung wird das Profil zunehmend sättigungsverbreitert. Hierbei tritt in beiden Fällen an der rotverstimmten Flanke deutlich stärker Sättigung auf als an den blauverstimmten Flanken. Die gemessenen Spektren zeigen direkt die Signatur der Besetzung des angeregten Zustandes $|b, N\rangle$, wie in den Kästchen am oberen Rand schematisch angedeutet ist.

4.3 Sättigungsverhalten und Thermalisierung

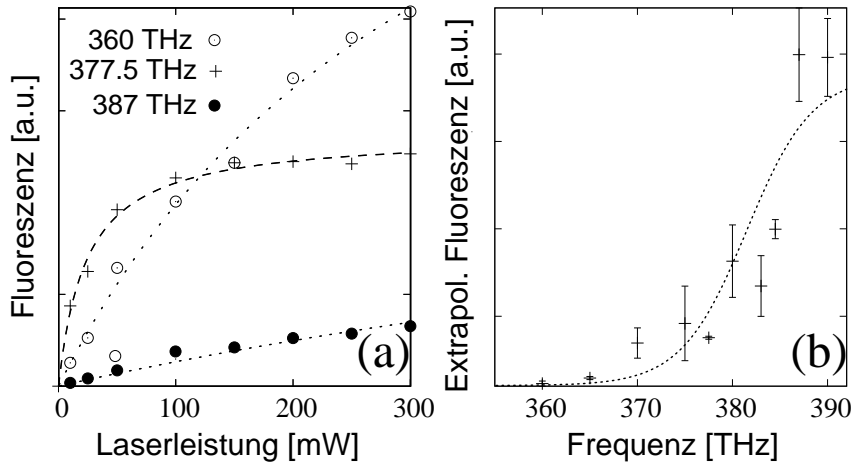


Abbildung 4.4: a) Fluoreszenzsignal bei 400 bar Helium Puffergasdruck als Funktion der Laserleistung für drei verschiedene Frequenzen. b) Das Sättigungsverhalten aus den Daten von Abb. 4.3 wurde zu sehr hohen Laserleistungen extrapoliert. Angepasst ist eine Fermi-Dirac-Verteilung, die man als Spektrum bei vollständigem thermischen Gleichgewicht erwartet.

Eine systematische Auswertung des Sättigungsverhaltens ist in Abb. 4.4(b) gezeigt. Aufgetragen sind hier die maximalen Besetzungen des angeregten Zustands extrapoliert zu sehr hoher Laserleistung, die sich aus der Anpassung der Sättigungskurven an die experimentellen Daten ergibt.

Experimentell wurden die Fluoreszenzspektren aufgezeichnet, so dass hier die Signatur der ungekoppelten Zustände auftritt (Abb. 4.5(a)). Im experimentell relevanten Grenzfall $|\delta| \gg \Omega_0$, vereinfacht sich die erwartete Besetzung des oberen Zustands zu

$$p_b = \frac{s(\delta)/2}{1 + s(\delta)(1 + e^{-\hbar\delta/kT})/2} \quad (4.6)$$

Die Veränderung der Linienform bei fortschreitender Thermalisierung wird in Abb. 4.5(b) gezeigt. Aus Gl. 4.6 erhält man die gewöhnliche (gesättigte) Linienform eines Zweiniveausystems

$$p_b \simeq (s(\delta)/2)/(1 + s(\delta)) \quad (4.7)$$

für den Bereich $k_B T \gg \hbar|\delta|$.

Für das andere Extrem, bei großer Linienbreite und Sättigung auch bei Verstimmungen im Bereich der thermischen Energie $k_B T$, wird der verstimmungsabhängige exponentielle Term in Gl. 4.6 relevant. Der Ausdruck vereinfacht sich zur Fermi-Dirac Verteilung, falls $s(\delta) \gg 1$ bei allen relevanten Verstimmungen δ erfüllt ist. Dies entspricht dem thermischen Gleichgewicht der Besetzungen eines Zweiniveau Dressed-State Systems.

Bei der gezeigten Auswertung wurde nicht berücksichtigt, dass sich abhängig von der Verstimmung des Lasers die Temperatur des Gases stark ändert. Dieser Effekt wurde erst nach diesen Messungen erkannt, und weitere Messungen wurden seither

4 Thermalisierung gekoppelter Atom-Licht-Zustände

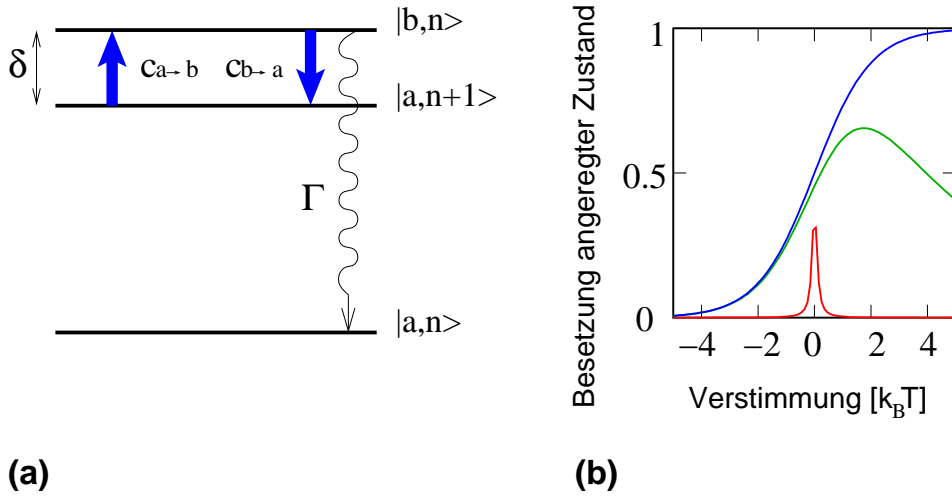


Abbildung 4.5: (a) Schema für den stoßunterstützten Populationstransfer in der Basis der ungekoppelten Atom-Licht-Zustände. (b) Besetzung des angeregten Zustands in Abhängigkeit von der Frequenz bei intensiver Kopplung an ein thermisches Bad für verschiedene Sättigungsgrade. Es wurde ein Lorentzförmiges Anregungsprofil zugrunde gelegt (rot). Bei fortschreitender Sättigung wird für blaue Verstimmung der angeregte Zustand energetisch günstiger (grün). Für vollständige Sättigung erwartet man eine Fermi-Dirac-ähnliche Verteilung (blau).

noch nicht bei gleichzeitiger Kontrolle der Temperatur wiederholt. In den vorliegenden Messungen zeichnete sich diese Temperaturabhängigkeit bei der Anpassung der Fermi-Dirac-Verteilung an die extrapolierten Daten ab. Hier ergaben sich für die Temperatur als freien Parameter Werte von 162(58) K für die Messungen mit dem Puffergas Helium und 270(91) K für das Puffergas Argon. Beide Werte liegen deutlich unter der Gastemperatur von 540 K. Die späteren Messungen zur stoßinduzierten Redistributionskühlung zeigten, dass man an der rotverstimmen Flanke des Anregungsspektrums eine lokale Abkühlung erwartet, an der blauverstimmen Flanke eine Temperaturerhöhung. Rein heuristisch kann dies den, im Vergleich zum vorgestellten Modell, zu steilen Verlauf der Flanke abhängig von der Verstimmung erklären. Ein erweitertes Modell muss die variierende Gastemperatur abhängig von der eingestrahelten Laserfrequenz beinhalten und Messungen sollten hier in Zukunft mit gleichzeitiger Temperaturbestimmung durchgeführt werden. Für weitere Messungen könnte es zudem interessant sein, den Einfluss thermischer Fluktuationen genauer zu untersuchen [135].

Unabhängig davon, zeigen die Ergebnisse, dass die Puffergasumgebung geeignet ist, die internen Freiheitsgrade der atomaren Zweiniveausysteme mit den äußeren Freiheitsgraden in ein thermisches Gleichgewicht zu bringen, wie dies in früheren Arbeiten bereits angedeutet wurde [84, 89, 96, 136].

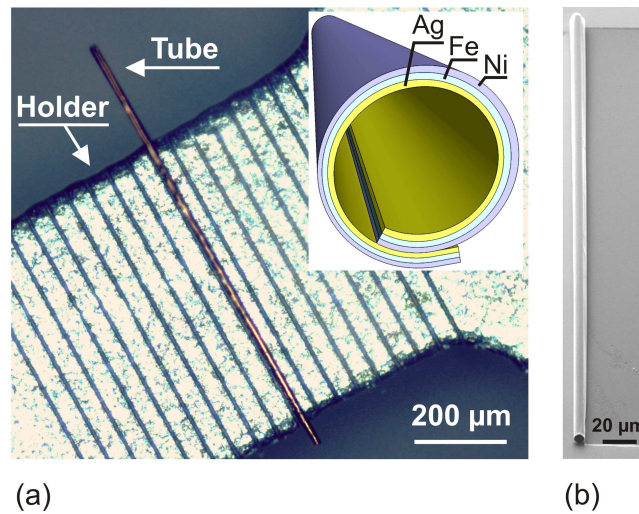


Abbildung 4.6: a) Aufnahme eines metallischen Mikroröhrchens auf dem Probenhalter. b) Zur Produktion der Röhrchen werden gezielt Verspannungen in aufgedampften dünnen Schichten erzeugt. Einseitiges Auftrennen der Schichten führt zum gewünschten Aufrollen [142]. (Mit freundlicher Genehmigung von A. Solovev.)

4.4 Metallische Wellenleiter und Resonatoren

Nachdem die Möglichkeit gezeigt ist, bei hinreichend großer optischer Intensität das atomare Zweiniveauesemble ins thermische Gleichgewicht zu bringen, sind die nächsten Schritte

- Die optische Feldstärke und die Wechselwirkung sollte erhöht werden, wobei die Laserleistung limitiert ist.
- Die Dispersion der Polaritonenzweige so zu modifizieren, dass ein lokales Minimum bei einem Wellenvektor $k \neq 0$ auftritt, in das die Polaritonen kondensieren können. Dies kann erreicht werden durch einen Hohlwellenleiter mit gebrochener radialer Symmetrie [137, 138] oder durch einen Resonator mit kleinem Spiegelabstand in der Größenordnung $\lambda/2$.

Beide Ansätze scheinen geeignet, da sie neben der benötigten Modenstruktur prinzipiell auch eine Leistungsüberhöhung ermöglichen können. Wegen der harschen Bedingungen im Rubidiumdampf scheiden quarzbasierte Strukturen erneut aus, so dass sich vorhandene Ansätze mit photonischen Hohlfasern [139, 140, 141] und Mikroresonatoren mit dielektrischen Spiegeln nicht nutzen lassen.

Seit wenigen Jahren ist es möglich, metallische Röhrchen durch kontrolliertes Aufrollen dünner Schichten zu erzeugen [142, 143], wie in Abb. 4.6 dargestellt. Dabei können Durchmesser von Nanometern bis zu einigen zehn Mikrometern realisiert werden. Die Länge der Röhrchen kann einige Millimeter betragen, das Verhältnis Durchmesser zu Länge über 1:10000. Die Wanddicke lässt sich dabei auch gezielt einstellen,

4 Thermalisierung gekoppelter Atom-Licht-Zustände

von sub-Nanometern zu einigen hundert Nanometern. Das Verfahren ist anwendbar auf sehr viele Metalle und Legierungen, sowie auf Halbleiter und Dielektrika. Durch eine Zusammenarbeit mit der Gruppe um Oliver Schmidt vom IWF Dresden erhielten wir einige speziell angefertigte Proben, um damit erste Tests durchführen zu können. Da wir nur grob abschätzen konnten, wie sich die Feldkomponenten an der metallischen Wand der Röhrrchen genau verhalten - die Wandstärke ist im Bereich der Skintiefe und besteht aus mehreren Metall-Lagen, wurde für erste Versuche ein Durchmesser der Röhrrchen von $6\ \mu\text{m}$ gewählt, was dem Modenfelddurchmesser gängiger Singlemodefasern entspricht. Als Material wurde Silber gewählt, da es bei den verwendeten Wellenlängen eine hohe optische Reflektivität besitzt, das etwas bessere Gold wurde wegen der beobachteten hohen chemischen Reaktivität mit Rubidium verworfen. Die Wanddicke der Röhrrchen beträgt etwa $100\ \text{nm}$, und ist somit in der Größenordnung der Skintiefe von massivem Silber. Bei späteren Messungen könnte es eventuell nützlich sein, die Emission der Röhrrchen in transversaler Richtung durch die Wand der Röhrrchen zu beobachten, was mit der gewählten Dimensionierung prinzipiell möglich ist.

Die geringe Wanddicke sollte auch die Dämpfung elektromagnetischer Wellen, die für einen massiven Hohlwellenleiter dieser Abmessung sehr groß wäre ($\sim 10^5\ \text{dB/m}$) vermindern, und die ganze Anordnung praktikabel machen. Unterstützend könnte hier auch der Einfluss von Oberflächen-Plasmonen wirken. In verwandten Systemen wurde bereits verstärkte Transmission durch Öffnungen kleiner als die Wellenlänge des verwendeten Lichts beobachtet [144, 145].

Die Länge der verwendeten Röhrrchen beträgt etwa $1\ \text{mm}$. Während bei den Versuchen mit frei fokussiertem Laser der Bereich höchster Intensität etwa der Rayleighlänge von $70\ \mu\text{m}$ entsprach, kann man durch die Verwendung dieses Wellenleiters eine hohe Laserintensität über eine deutlich vergrößerte Länge erhalten.

Für diese Versuche wurde der optische Aufbau aus Abb. 4.7 verwendet, die Mikrostrukturen wurden dabei auf einem Halter dicht an einem der Saphirfenster platziert. Die optische Weglänge der Zelle beträgt insgesamt $10\ \text{mm}$, so dass nach der Interaktion mit dem Röhrrchen $9\ \text{mm}$ reine Transmission durch das Gasmedium erfolgt.

Eine Schwierigkeit bei der Justage war, zu erkennen, ob man mit dem Laser wirklich in den Hohlleiter einkoppelt, da man mit dem bestehenden Aufbau nicht exakt sehen kann, ob Transmission aus dem Röhrrchen kommt, oder streifend daran vorbei. Mit dem konfokalen Aufbau konnte zunächst sichergestellt werden, dass der Laser den Eingang des Röhrrchens trifft. Dazu wurde der konfokale Strahlengang so modifiziert, dass der eine Teilstrahl des Lasers auf das Mikroröhrrchen abgebildet wurde, der andere über einen analogen Strahlengang auf eine $10\ \mu\text{m}$ große Lochblende. Beide Ziele konnten mit einer CCD-Kamera beobachtet werden, so dass der Fokus des Lasers mit dem Bereich der Schärfentiefe des abbildenden Objektivs der Kamera überlagert werden konnte, in dem dann auch die Öffnung des Hohlleiters scharf sichtbar war.

Mit einem auf einem Verschiebetisch montierten Objektiv, konnte der Laserfokus

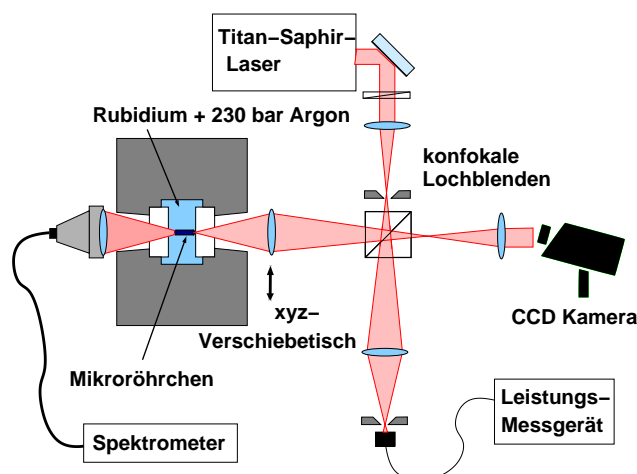


Abbildung 4.7: Konfokaler Aufbau zur Untersuchung der Mikroröhrchen. Zur kontrollierten Justage wurden im unteren Arm des Aufbaus der Fokus des Laserstrahls und der Schärfbereich der Kameraabbildung zur Deckung gebracht. So war gewährleistet, dass auch in der Zelle das Mikroröhrchen scharf zu sehen war und sich gleichzeitig in der Fokalregion des Laserstrahls befand. Detektiert wurde das Signal in Vorwärtsrichtung.

quer zur Längsachse des Wellenleiters verschoben werden, um zu testen, ob der Laserstrahl parallel zum Hohlleiter verläuft. Detektiert wurde die Transmission über ein optisches Spektrometer. Das Transmissionssignal setzt sich aus dem nichtabsorbierten Teil des anregenden Lasers und dem Anteil der in Vorwärtsrichtung gestreuten Fluoreszenz zusammen. Über den verlängerten optischen Weg wird ein Großteil der Fluoreszenz über den kompletten Raumwinkel abgestrahlt, und durch Reabsorption gelangt nur der spektrale Anteil der äußeren Flanken des Fluoreszenzspektrums in das Transmissionssignal. Zwei typische Transmissionsspektren sind in Abb. 4.8 dargestellt. Man erkennt den schmalbandigen Anteil des transmittierten Lasers (im weiteren Träger genannt) und eine Bande im Bereich von 825 nm bis 950 nm. Die Form der Bande erklärt sich aus einem Teil der Fluoreszenz, der durch Stokes-Streuung und durch mehrfache Reabsorption der Fluoreszenzphotonen rotverschoben wurde.

Weiterhin wurde untersucht, ob die Wechselwirkung durch die Bündelung der Lichtintensität über die Länge des Röhrchens verstärkt werden kann. Zur Analyse der Wechselwirkung wurden beide Anteile, Träger und Raman-Bande herangezogen. Abb. 4.8 zeigt die transmittierte Lichtleistung des nicht absorbierten Lasers und der Raman-Bande bei fester Laserwellenlänge 790 nm bei 1 W Leistung, einmal aufgenommen mit frei laufendem Laserstrahl (rot), und einmal mit Mikroröhrchen im Strahlengang (blau). Im vorgestellten Fall zeigt sich eine Verstärkung der Bande im Vergleich zum Träger, wenn der Laserstrahl das Mikroröhrchen passiert.

Um das Verhalten genauer zu charakterisieren wurden weitere Messungen für verschiedene Anregungsfrequenzen, jeweils mit und ohne Röhrchen durchgeführt. Für die Einzelmessungen wurde die transmittierte Leistung im Träger und in der Raman-Bande bestimmt. In Abb. 4.9 ist das Verhältnis zwischen Bande und Träger in Ab-

4 Thermalisierung gekoppelter Atom-Licht-Zustände

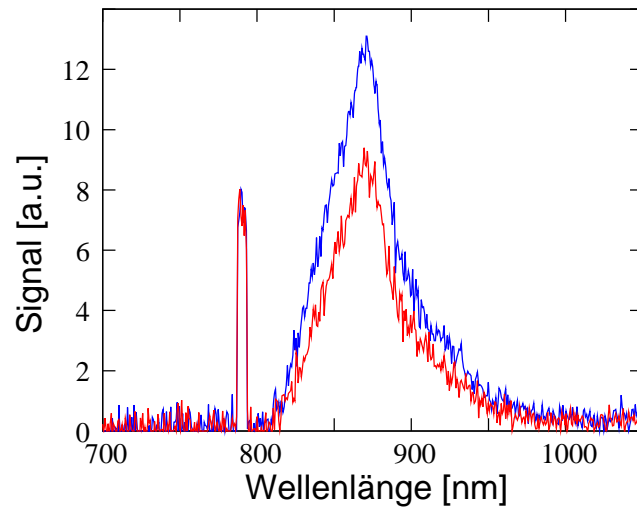


Abbildung 4.8: Zwei typische Spektren nach Durchgang durch die Zelle. Zu erkennen ist der Träger, der Rest des anregenden Laserlichts bei 790 nm. Rotverschoben erkennt man eine breite Raman-Bande, die zur Charakterisierung der Atom-Lichtwechselwirkung im Röhrchen herangezogen wurde. Rot eingezeichnet ist das Signal in freier Transmission ohne Röhrchen. Blau eingezeichnet ist das Signal durch das Röhrchen, bei dem die Raman-Bande verstärkt ist.

hängigkeit von der Anregungswellenlänge dargestellt. Gezeigt ist das Verhältnis für Transmission durch ein Röhrchen, von dem der systematische Anteil, der aus freier Transmission bestimmt wurde, abgezogen worden ist.

Das Ergebnis dieses Vergleichs lässt sich zunächst so beschreiben, dass im Wellenlängenbereich 780-800 nm ein verstärkter Transfer in die Raman-Bande beobachtet wird, der sich als mit verstärkter Atom-Licht-Wechselwirkung im Bereich der Rubidium-D-Resonanzen erklären lässt. Außerhalb dieses Bereichs stellt man keinen Unterschied zwischen freier Transmission und Transmission durch das Mikroröhrchen fest. Für ein genaueres Verständnis dieses Verhaltens müssen die Wechselwirkungen des Lichtfeldes an der Metalloberfläche zukünftig noch deutlich präziser charakterisiert werden.

Im Rahmen dieser Messungen ging es in erster Linie darum, zu testen, ob die metallischen Mikroröhrchen in den Hochdruckaufbau integriert werden können, und ob die Strukturen mit dem Rubidiumdampf verträglich sind. Beides ist der Fall. Zusätzlich wurde hier eine spektrale Veränderung des durch die Röhrchen transmittierten Lichts beobachtet, die bereits darauf hindeutet, dass sich die Atom-Licht-Wechselwirkung durch die räumliche Eingrenzung des Lichts weiter verstärken lässt.

Die weitere Untersuchung dieser Mikrostrukturen bietet, neben der in dieser Arbeit primär verfolgten Bündelung des Lichts, weitere Ansätze, wie etwa zur Untersuchung modifizierter Spontanemission in Dielektrika [146, 147] oder photonische Phasenübergänge für reduzierte Dimensionen [130, 131, 132, 148].

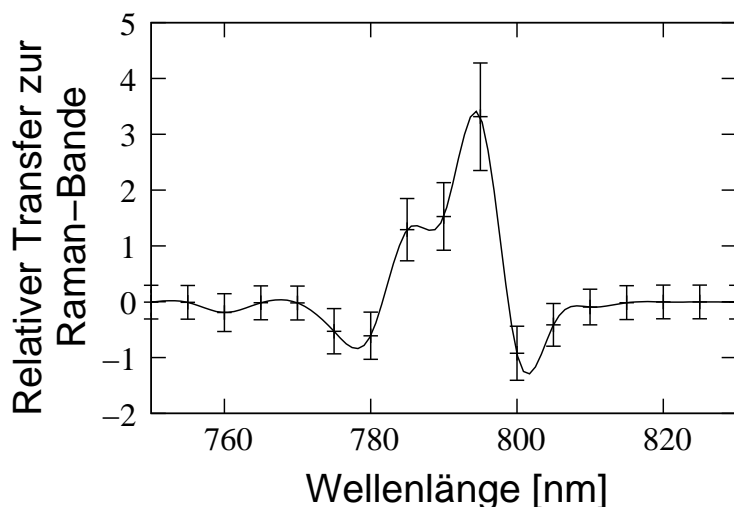


Abbildung 4.9: Verstärkung der Raman-Bande bei Transmission durch Mikroröhrchen. Zunächst wurde hier das Verhältnis zwischen der detektierten Leistung aus dem Träger und der Raman-Bande (vgl. Abb. 4.8) bestimmt, jeweils für Transmission durch das Röhrchen und ohne Röhrchen. Gezeigt ist nun dieses Verhältnis für die Transmission durch das Röhrchen ohne den systematischen Beitrag bei freier Transmission.

4.5 Schlußbetrachtungen zur Thermalisierung

Die bisher gezeigten Ergebnisse bieten Grundlagen für zukünftige Experimente, bei denen die Eigenschaften von gekoppelten Atom-Lichtzuständen im thermischen Gleichgewicht untersucht werden sollen. Gezeigt wurde in der vorliegenden Arbeit, dass die intensive Kopplung des thermischen Puffergasensembles an das Atom-Licht-System zu einer Thermalisierung auch der internen Zustände des Atom-Lichtsystems benutzt werden kann. Hierbei ist die Thermalisierungszeit in der Größenordnung der inversen Stoßrate, und damit deutlich schneller als der Zerfall der angeregten Zustände. Diese Eigenschaft ist ein grundsätzlicher Vorteil im Vergleich zu den bisher demonstrierten Polariton-Systemen in Festkörpern, in denen erfolgreich Bose-Einstein-Kondensate aus Exziton- bzw. Magnon-Polaritonen realisiert wurden [38, 39, 149, 150, 151, 152]. In allen diesen Experimenten ist bisher die Lebensdauer der Anregungen in der Größenordnung der Thermalisierungszeit, so dass diese Experimente nur ansatzweise im thermodynamischen Gleichgewicht arbeiten [39, 153, 154]. Die in den zitierten Experimenten betrachteten Quasiteilchen sind formal äquivalent zu behandeln wie die Polaritonen hier. Dort konnten durch Mikrostrukturen Resonatoren geschaffen werden, die eine Abschnidefrequenz bei $k \neq 0$ aufweisen, und somit das nötige Fallenpotential für Bose-Einstein-Kondensation haben [151, 155, 156]. Auf diesen Punkt zielt der zweite Teil dieses Kapitels ab. Da es in der chemisch reaktiven Rubidium-Dampf-Umgebung sehr schwer möglich ist, einen entsprechenden Mikroresonator aus dielektrischen Spiegeln zu installieren, wollen wir in Zukunft versuchen, entsprechend dimensionierte Resonatoren aus Metall, gegebenenfalls kombiniert mit

4 Thermalisierung gekoppelter Atom-Licht-Zustände

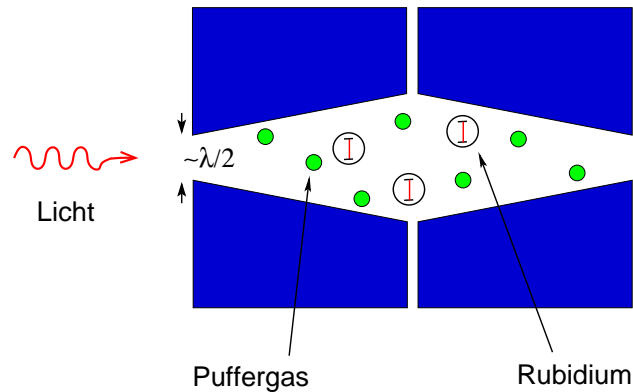


Abbildung 4.10: Schematische Darstellung eines in Fertigung befindlichen Mikroresonators aus Metall. Geplant ist, hier Licht durch eine kleine Öffnung einzukoppeln. Durch stoßunterstützte Prozesse wird spektral breite Fluoreszenz im Inneren des Resonators erzeugt. Der Resonator ist so dimensioniert, dass seine Abschneidefrequenz innerhalb des Fluoreszenzspektrums liegt.

Halbleitern, zu verwenden. Die untersuchten Mikroröhrchen wurden zunächst darauf getestet, ob sie prinzipiell vereinbar mit dem Rubidiumdampf sind, was der Fall ist. Um sie als Resonator zu nutzen, muss der Durchmesser zunächst weiter bis zur Größenordnung $\lambda/2$ des verwendeten Lichts verkleinert werden. Um eine Abschneidefrequenz bei $k \neq 0$ zu erreichen, muss zusätzlich die axiale Symmetrie gebrochen werden [137]. Ein möglicher Aufbau, in dem dies erreicht wird, ist in Abb. 4.10 gezeigt. Diese Probleme als gelöst vorausgesetzt, könnte man nun Licht z.B. bei der Rubidium-Resonanzfrequenz einstrahlen, im Resonator würde ein Teil des Lichts durch Redistribution der Fluoreszenz zu Wellenlängen verschoben, die der Abschneidefrequenz des Resonators entsprechen. Ein verwandter experimenteller Ansatz wurde in der Arbeitsgruppe unter vollkommen anderen experimentellen Parametern zur Thermalisierung von Photonen an einem Farbstoff-Wärmebad erfolgreich realisiert [157], der sich konzeptionell auf atomare Gase übertragen lassen kann. Ob sich damit Phasenübergänge atomarer Polaritonen [158] in einem Hochdruck-Puffergassystem erzeugen lassen, ist ein spannendes zukünftiges Thema.

5 Stoßinduzierte Redistributionskühlung

5.1 Redistribution der Fluoreszenz

Während unserer Untersuchungen mit sehr hohen Puffergasdrücken von einigen hundert Bar zeigte sich anhand der Fluoreszenzspektren, dass ganz deutlich ein Teil der Fluoreszenz unabhängig von der Verstimmung des Lasers um die Resonanz verteilt abgestrahlt wird, was als Redistribution der Fluoreszenz bezeichnet wird. Grundsätzlich ist dies ein wohlbekanntes Phänomen [104, 105, 136, 159, 160], das beispielsweise als Verlustprozess in optischen Fallen auftritt [161, 162].

Bei den in diesem Experiment vorherrschenden extrem hohen Puffergasdrücken befinden wir uns in einem Bereich, in dem die statistische Theorie zur Druckverbreiterung weitgehend gültig ist. Während eines Stoßes mit einem Puffergasatom werden die Energieniveaus transient verschoben, so dass bei einem bestimmten Abstand der

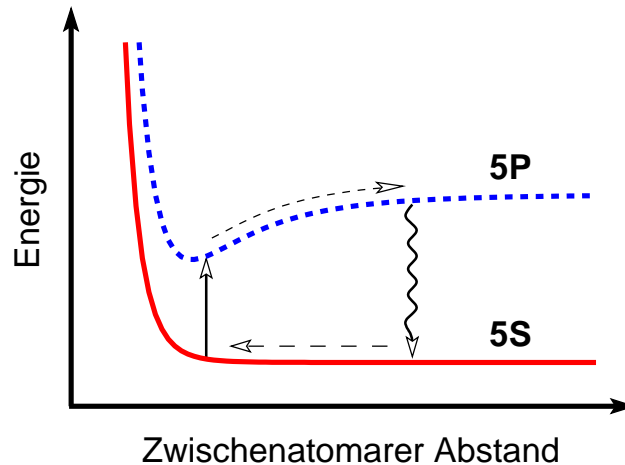


Abbildung 5.1: Schematischer Potentialverlauf der beteiligten Energieniveaus von Rubidium bei Annäherung eines Argonatoms. Bei relativ starker Annäherung der Stoßpartner kann ein Laser auch deutlich rotverstimmt Atome anregen. Die angeregten Atome relaxieren im Mittel bei deutlich größeren Abständen in den Grundzustand, d.h. die Fluoreszenz wird spektral um die ungestörte Resonanzfrequenz verteilt. Einige experimentell bestimmte Verläufe der Potentiale für Rubidium-Edelgas-Moleküle finden sich in [74]. Da in der hier betrachteten Situation sehr wahrscheinlich Vielkörperstöße eine Rolle spielen, für die keine entsprechenden Daten vorliegen, wurde die gezeigte schematische Darstellung gewählt.

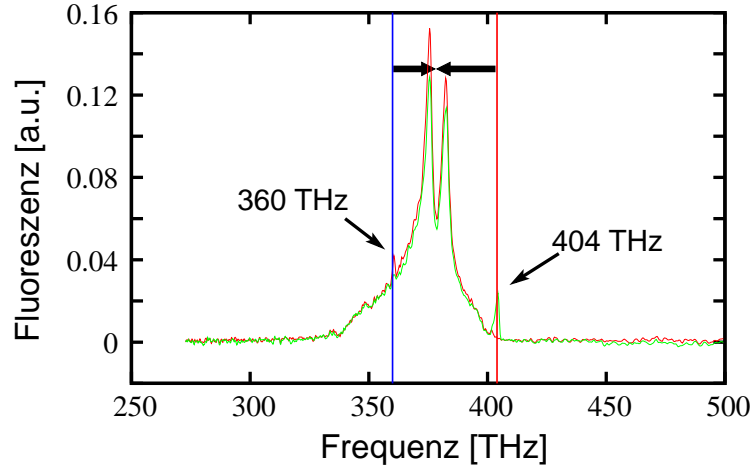


Abbildung 5.2: Beispiel für die Redistribution der Fluoreszenz für die Anregungsfrequenzen 360 THz und 404 THz. Obwohl einmal 15 THz rot- bzw. 20 THz blauverstimmt angeregt wurde, sind die Fluoreszenzspektren praktisch deckungsgleich. Als kleine Spitzen sind die Restsignale des anregenden Lasers zu sehen. Die kleinen Nebenmaxima an der roten Flanke werden auf Satelliten-Resonanzen zurückgeführt, wie sie aus der Literatur bekannt sind [82].

Atome resonante Anregung möglich wird (Abb. 5.1). Die Stoßdauer und die inverse Stoßrate sind kürzer als die Lebensdauer des angeregten Atoms, und so wird es sich in der Regel weit aus dem Einflussbereich des stoßenden Atoms entfernen, und dann erst spontan zerfallen. Entsprechend dem instantanen Potentialverlauf wird das Atom die zuvor beim Stoß aufgenommene Energie mit dem Fluoreszenzphoton teilweise abgeben [163].

Abbildung 5.2 zeigt ein Spektrum der Fluoreszenzstrahlung für eine rote Laserverstimmung (rote Kurve) sowie eine blaue Verstimmung (blaue Kurve). Die Messung zeigt, dass in beiden Fällen die gesamte Fluoreszenz nahe der Resonanz abgestrahlt wird, d.h. die Redistribution erfolgt nahezu vollständig. Für die experimentelle Beobachtung dieser Spektren war ein sehr sorgfältig justierter konfokaler Aufbau, bei dem Reflexe von Streuphotonen gut abgeschirmt sind, entscheidend. Das Verhältnis der Frequenzverschiebung der abgestrahlten Fluoreszenzphotonen zur eingestrahnten Laserfrequenz ist somit weitgehend proportional zur Laserverstimmung:

$$f = \frac{\overline{\nu_{fl}} - \nu_{laser}}{\nu_{laser}}. \quad (5.1)$$

Aus den Spektren mit redistribuierter Fluoreszenz konnte der mittlere Energieübertrag pro Photon bestimmt werden (Abb. 5.3). Im experimentell zugänglichen Bereich ist die mittlere Frequenzverschiebung pro Fluoreszenzphoton linear abhängig von der Laserverstimmung, was mit der beobachteten vollständigen Redistribution konsistent ist. Mit dem verwendeten konfokalen Aufbau für die Fluoreszenzmessung

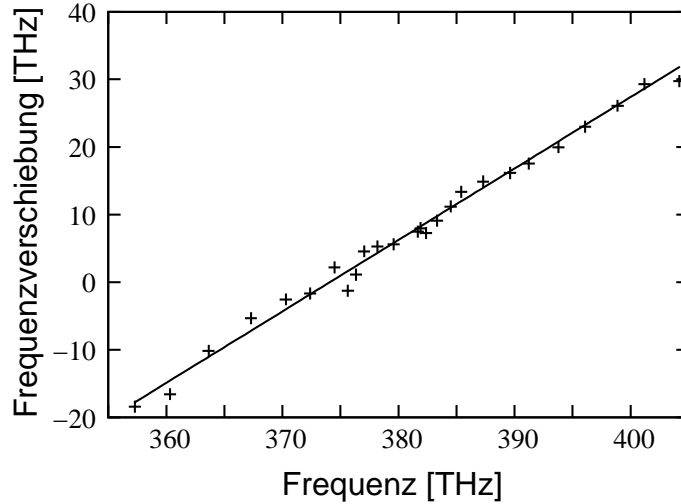


Abbildung 5.3: Die Differenz zwischen der mittleren Fluoreszenzfrequenz und der Frequenz der anregenden Laserfrequenz als Funktion der eingestrahlenen Laserfrequenz. Angepasst ist ein linearer Verlauf, wie er für vollständige Redistribution der Fluoreszenz erwartet wird.

konnte eine gute räumliche Auflösung erreicht werden, so dass das Volumen, aus dem die Fluoreszenz aufgefangen wurde, bestimmt war. Über die gemessene optische Absorptivität konnte die im beobachteten Volumen absorbierte Laserleistung abgeschätzt werden, gleichzeitig war der detektierte Raumwinkel der Detektion bekannt. Hiermit konnte, abhängig von der Laserfrequenz der mögliche Leistungsübertrag auf das Gas bestimmt werden:

$$P_{\text{cool}} = P_{\text{opt}} \alpha(\nu) \frac{\bar{\nu}_{\text{fl}} - \nu_{\text{laser}}}{\nu_{\text{laser}}}, \quad (5.2)$$

wobei P_{opt} die eingestrahelte Laserleistung, und $\alpha(\nu)$ die Absorption bezeichnet. Die daraus abgeleitete erwartete Kühlleistung P_{cool} in Abhängigkeit von der Laserfrequenz wird in Abb. 5.4 gezeigt. Quantitativ ist diese Abschätzung durch die Genauigkeit der Fluoreszenzdetektion begrenzt, qualitativ zeigt sich aber ganz deutlich, dass der Nulldurchgang etwa beim Zentroid des Rubidium D-Dubletts liegt, bei negativer Verstimmung wird Kühlung erwartet, bei positiver Verstimmung Heizung.

Diese spektroskopischen Daten sind alleine nicht ausreichend, um eine Netto-Kühlung nachzuweisen. Zwar wurde über die Charakterisierung der Lebensdauer der angeregten Zustände ausgeschlossen, dass nicht-radiative Prozesse dominieren, allerdings kann die Heizeffizienz bei diesen Prozessen 100% erreichen, während die Kühleffizienz pro Photon, die aus der Redistribution der Fluoreszenz erkennbar ist, bestenfalls 10% erreicht. Daher können auch kleine Quenchingraten oder Absorption an Verunreinigungen die erwartete Kühleffizienz überkompensieren.

Deutlich wurde dies bei den ersten Versuchen, eine Kühlung nachzuweisen. Zur Verfügung stand ein Pyrometer, also ein Gerät zur berührungslosen Temperaturmessung

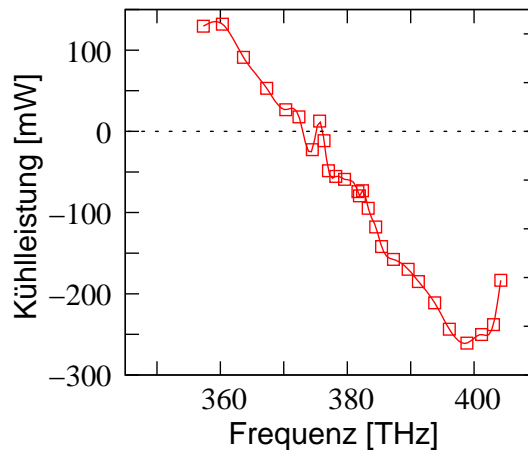


Abbildung 5.4: Erwartete Kühlleistung, wie sie aus der Frequenzverschiebung der Fluoreszenzstrahlung abgeschätzt wurde, als Funktion der einfallenden Laserfrequenz. Hierzu wurde das gemessene Anregungsprofil mit dem Energieübertrag pro Photon gewichtet und die Strahlgeometrie eingefügt. Für rote Verstimmung gelangt man in den kühlenden Bereich. (Der statistische Fehler ist bei dieser Abschätzung klein, da die Fluoreszenzspektren vielfach gemittelt aufgenommen wurden. Ein systematischer Fehler bei dieser Messung könnte die erwartete Kühlung prinzipiell stark verändern.)

mittels des Schwarzkörperspektrums. Für den detektierbaren spektralen Bereich waren die Saphirfenster transparent, so dass man das Innere der Zelle untersuchen konnte. Allerdings sind solche Geräte nur für die Temperaturbestimmung von Oberflächen geeignet, können also nicht direkt die Temperatur von transparenten Gasen bestimmen. Für den Versuch wurde ein dünnes Stück reflektierender Metallfolie mit niedriger Wärmekapazität in die Zelle gestellt und in direkter Nachbarschaft versucht, mit dem Laser zu kühlen. Die gemessenen Resultate zeigten bestenfalls eine verminderte Aufheizung im Frequenzbereich, in dem man Kühlung erwartete. Die Absorption von Streulicht und Fluoreszenz heizte das Metall zu stark auf, um einen möglichen Kühlprozess nachweisen zu können. Diese Detektionsmethode wurde daher nicht weiter verfolgt.

5.2 Nachweis von Kühlung mit einer Thermografiekamera

Bei der Beschäftigung mit den thermischen Eigenschaften der verwendeten Materialien fiel die ungewöhnlich hohe thermische Leitfähigkeit des verwendeten Saphir auf, sie beträgt $\lambda = 200 \text{ Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$. Nur Diamant besitzt unter den natürlich vorkommenden Festkörpern eine höhere thermische Leitfähigkeit. Gleichzeitig ist der Anteil des vom Saphir absorbierten Laserlichts gering. Über einen Vergleich des Transmissions- und des Reflexion-Signals zeigte sich, dass die Absorption der verwendeten Fenster innerhalb der Messgenauigkeit kleiner als 1% ist. Auch nach einstündiger Bestrahlung mit 3 W Laserlicht bei 760 nm wurde keine messbare Temperaturerhöhung

5.2 Nachweis von Kühlung mit einer Thermografiekamera

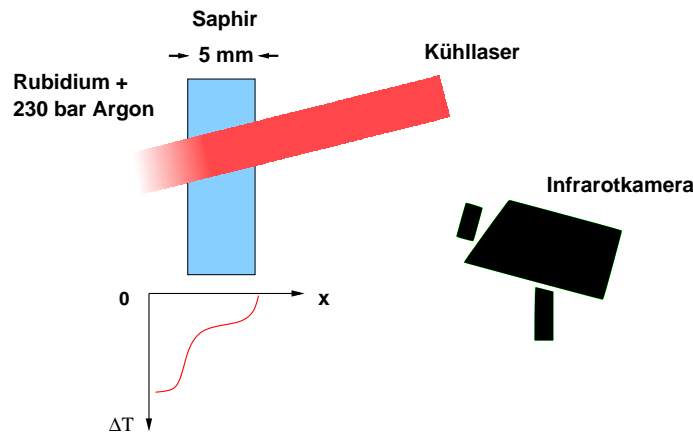


Abbildung 5.5: Illustration der experimentellen Situation der Messungen mit der Thermografiekamera. Der Kühllaserstrahl wird aufgeweitet auf das Zellenfenster geschickt, so dass ein Großteil der Kühlleistung in dem Gas dicht hinter dem Fenster deponiert wird. Die Temperaturleitfähigkeit der Saphirfenster ist deutlich besser als die des Argon-Gases [164]. Eine Temperaturänderung des Gases breitet sich teilweise bis an die äußere Fensteroberfläche aus, wo sie von der Thermografiekamera detektiert werden kann.

der (bei dieser Messung thermisch weitgehend isolierten) Saphirfenster beobachtet. Während Saphir im sichtbaren und nahinfraroten Bereich sehr gut transparent ist, ist er für Strahlung mit Wellenlängen größer als $7,5 \mu\text{m}$ opak. In diesem Spektralbereich erscheint der Saphir in guter Näherung als schwarzer Körper, dessen emittiertes Spektrum direkt Aufschluss über die Oberflächentemperatur erlaubt. Im Experiment wurde eine Thermografiekamera (*Flir* T200) verwendet, die für diesen Bereich empfindlich ist. Die Kamera konnte auf die Emissivität von Saphir geeicht werden, so dass die angezeigte Absoluttemperatur mit alternativen Temperaturmessungen mit Metallfühlern übereinstimmt.

Experimentell wurde der Kühllaserstrahl auf einen Durchmesser von 6 mm aufgeweitet und auf die Rubidiumzelle geschickt. Durch die relativ geringe Strahlintensität $0,1 \text{ W/mm}^2$ wurde ein Großteil der Laserleistung in einer dünnen Schicht hinter dem Eintrittsfenster absorbiert, und konnte hier eine Temperaturänderung hervorrufen (Abb. 5.5). Die Wärmeleitung des dichten Argongases [164, 165, 166] ist sehr klein im Vergleich zu der des Saphirfensters, die gekühlte Region ist somit zum Zelleninneren relativ gut thermisch isoliert, die Temperaturdifferenz wird also bevorzugt durch den Saphir diffundieren.

Im Experiment wurde eine Kühdauer von 30 s gewählt. Dies ist deutlich länger als die charakteristische Zeit für Wärmeleitung im Argon, und experimentell brachte ein längerer Zyklus keine erkennbare Verbesserung. Zudem wurden bei Testmessungen die Zeitkonstanten der elektrischen Temperaturregelung der Zelle zwischen 1 und 120 s gewählt. Es zeigte sich, dass die Heizung träge genug ist, so dass dadurch keine signifikanten Temperaturänderungen innerhalb von 30 s auftreten. Da die ther-

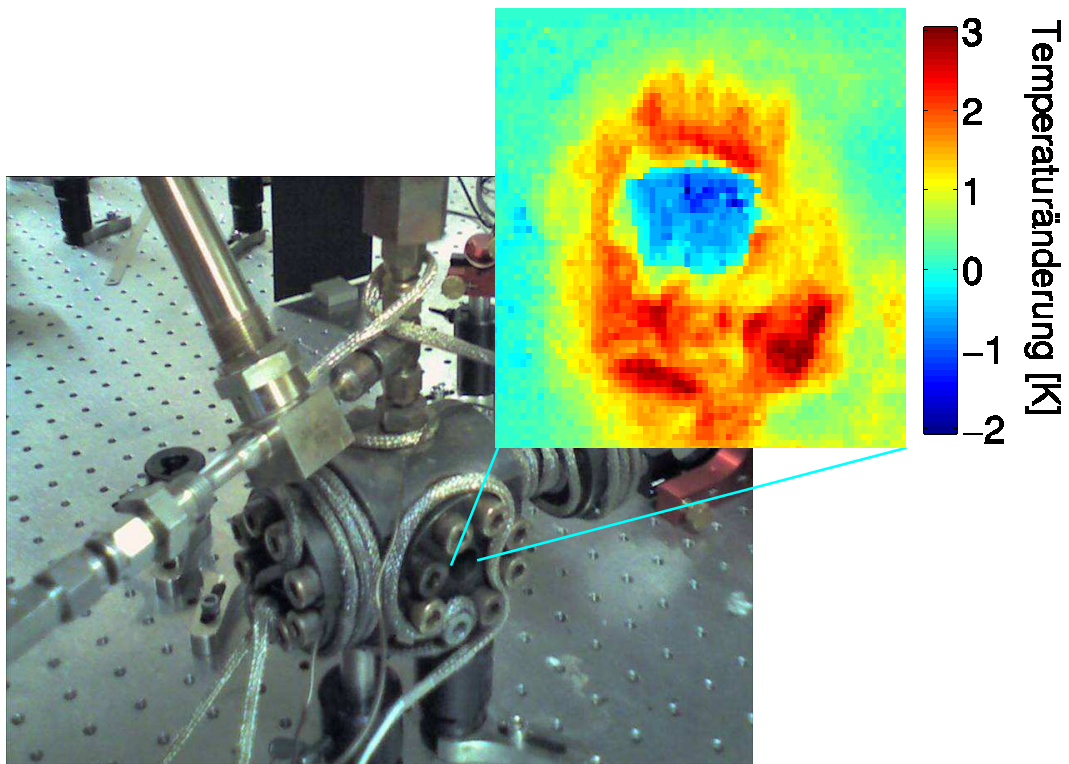


Abbildung 5.6: Die farbkodierte Aufnahme zeigt die relative Kühlung der Außenfläche des Saphirfensters von $0,31(0,03)$ K nach 30 Sekunden Einstrahlung mit dem Laser, gemittelt über 80 Einzelmessungen mit einer Thermografiekamera. Der Kühlaserfrequenz war dabei 365 THz, also ca. 15 THz von den resonanten D-Übergängen von Rubidium rotverstimmt. Die Laserleistung betrug 3 W. Gezeigt ist zusätzlich die verwendete Hochdruckzelle. Zu sehen sind in dieser Aufnahme die freiliegenden Heizkabel um die Zelle, im eigentlichen Betrieb ist zusätzlich eine Isolierschicht aus Glasgarngewebe und Aluminiumfolie angebracht. Der optische Zugang liegt relativ tief im Stahlkörper. Dadurch ist eine Wärmekopplung der Saphirfenster zum Stahlkörper der Zelle unvermeidlich. Zusätzlich wird Streulicht vom Stahl absorbiert, wie an dem deutlich aufgeheizten Ring um das Fenster in der Thermografieaufnahme sichtbar ist.

5.2 Nachweis von Kühlung mit einer Thermografiekamera

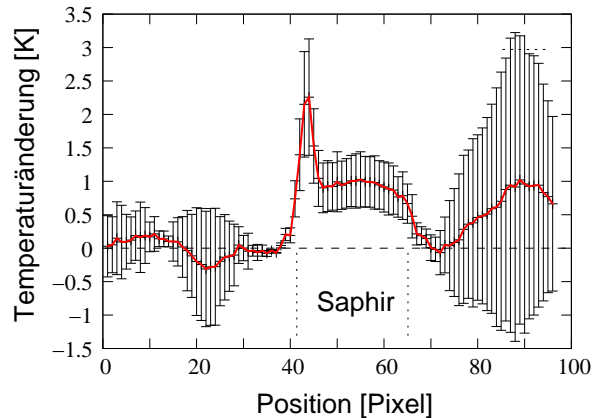


Abbildung 5.7: Diese Daten zeigen einen Schnitt durch die gemittelten Thermografiekameraaufnahmen, aufgenommen bei der Laserfrequenz 390 THz, also blauverstimmt zu den Rubidium-D-Übergängen. Es gelten ansonsten dieselben Parameter wie in Abb. 5.6. Beobachtet wird hier eine mittlere Aufheizung des Saphirfensters von etwa 1 K. (Zusätzlich eingetragen sind die statistischen Fehler, die sich aus den 30 Einzelmessungen hier ergeben. Außerhalb des Saphirs blickt die Thermografiekamera z.T. direkt auf Heizkabel, wodurch dort starke Fluktuationen in den Wärmebildern entstehen.)

mischen Fluktuationen vor der Zelle verhältnismäßig groß waren, ist die gemessene Temperaturverteilung in einzelnen Aufnahmen stark verrauscht. Abb. 5.6 zeigt eine Mittelung über 80 Einzelmessungen. Hierzu wurde jeweils 30 s gekühlt, die Temperatur bestimmt, nach einer Abkühlphase von ebenfalls 30 s wurde erneut gemessen. Zu beiden Messzeitpunkten war der Laserstrahl blockiert, um die Aufnahme nicht durch Laserlicht zu beeinträchtigen. Durch Differenzbildung wurden die systematischen Fehler weitgehend eliminiert, und man konnte aus den Messungen die durch das Laserlicht hervorgerufene Temperaturänderung bestimmen. Im Bereich des Saphirfensters erhält man aus diesen Messungen mit der Kühllaserfrequenz 365 THz und 3 W Lichtleistung eine Temperaturabsenkung von 0,31(0,03) K. Um das Zellenfenster herum sieht man in der Thermografieaufnahme dagegen eine deutliche Aufheizung, die durch Absorption von Streulicht und Fluoreszenz im Stahl verursacht wird. Mit denselben sonstigen Parametern erhielt man für eine blauverstimme Laserfrequenz bei 390 THz eine deutliche Aufheizung des Saphirfensters um etwa 1 K (Abb. 5.7).

Vereinfacht kann man den gezeigten Versuch zunächst als eindimensionales Wärmeleitungsproblem mit Wärmequelle behandeln, bei dem an einem Ende des Saphirs eine Wärmesenke dQ platziert wird und der Wärmetransport vom Argon-Gas zum Saphir diffusiv erfolgt:

$$\frac{dQ}{dt} = -\lambda \frac{A}{d} \Delta T, \quad (5.3)$$

wobei $\lambda = 20000 \frac{\text{W}}{\text{m K}}$ die Wärmeleitfähigkeit von Saphir ist, A und d Fläche und Dicke des Saphirfensters. Umgestellt nach ΔT sieht man, dass sich wegen der sehr

5 Stoßinduzierte Redistributionskühlung

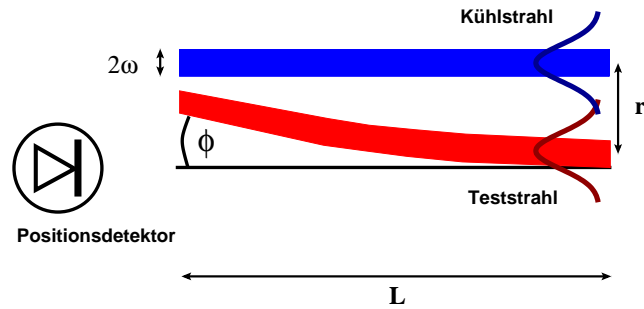


Abbildung 5.8: Prinzip der kollinearen thermischen Deflektionsspektroskopie. Der nichtresonante Teststrahl verläuft zunächst parallel zum Kühlstrahl, und wird im Medium von der thermischen Linse des Kühlstrahls abgelenkt.

hohen Wärmeleitfähigkeit keine nennenswerte Temperaturdifferenz im Saphirfenster aufbauen kann. Die beobachtete Temperaturänderung an der äußeren Oberfläche des Saphirfensters ergibt sich somit genähert aus der Abkühlung des gesamten Fensters:

$$\Delta T = \frac{Q}{c \cdot m}, \quad (5.4)$$

wobei $c = 800 \text{ J/kg K}$ die spezifische Wärmekapazität von Saphir bei 300°C ist, und $m = 3,5 \text{ g}$ die Masse des Saphirfensters. Die im Gas deponierte Kühlleistung kann man aus den Fluoreszenzmessungen optimistisch geschätzt mit 100 mW ansetzen. Mit den angenommenen Werten erwartet man eine beobachtbare Temperaturabsenkung $\Delta T = 1.25 \text{ K}$.

Die Abweichung der Messung zum obigen Modell lässt sich zumindest zum Teil mit der nicht einbezogenen thermischen Kopplung des Fensters an den Metallflansch erklären, die Auflagenlinien sind etwa 1 mm breit. Zusätzlich werden die metallischen Teile der Zelle durch gestreutes Laserlicht und Fluoreszenz aufgeheizt. Und natürlich wird ein Teil der Kühlleistung über Diffusion und Konvektion in das dahinterliegende Gas abgeführt.

Rechnet man in dem Modell mit der beobachteten Abkühlung zurück, ergibt sich eine im Gas deponierte Kühlleistung von 29 mW . Dies entspricht knapp 1% der eingestrahelten Laserleistung. Für eine quantitativ genauere Bestimmung der Gastemperatur im Inneren der Zelle ist diese Methode schlecht geeignet, da die Absorptivität des Zellenstahls über die Fläche sehr inhomogen ist, und die thermische Kopplung an den Saphir im eingebauten Zustand schwer zu bestimmen ist. Generell ist die gute Wärmekopplung an den Saphir hier nachteilig, um große Temperaturänderungen zu erzeugen.

5.3 Temperaturmessung mittels thermischer Deflektionsspektroskopie

Die thermische Deflektions- oder Ablenkungsspektroskopie [167, 168, 169] erwies sich als deutlich besser dafür geeignet, quantitative Messungen der Kühlung des Gases durchzuführen, als diese indirekt über die Abkühlung der Zellenfenster zu bestimmen. Die Methode beruht darauf, dass Laserstrahlen in absorbierenden Medien Energie deponieren, und damit die Temperatur lokal ändern. In Gasen geht eine Temperaturänderung in guter Näherung proportional einher mit einer Änderung des Brechungsindex n [170]:

$$\frac{dn}{dT} \simeq -\frac{T}{n-1}. \quad (5.5)$$

Im Bereich des Laserstrahls entsteht somit ein Brechungsindexgradient, der dem induzierten Temperaturprofil folgt. Ein nichtresonanter Testlaserstrahl, der parallel zum Kühllaser verläuft, wird in diesem Bereich durch den Brechungsindexgradienten prismatisch abgelenkt, was detektiert werden kann, wie in Abb. 5.8 skizziert.

Die erwartete Strahlablenkung über die ganze Zellenlänge L ist damit

$$\Phi = \frac{T}{n-1} \int_0^L \frac{dT}{dr} dz, \quad (5.6)$$

Der Kühlstrahl läuft mit TEM_{00} -Mode mit der Strahltaile w , und wird in der Zelle durch die Absorptivität α abgeschwächt:

$$I(r, z) = \exp\left(-\alpha(\nu)z - \frac{2r^2}{w^2}\right). \quad (5.7)$$

Nimmt man zusätzlich an, dass der Wärmetransport hauptsächlich radial erfolgt, kann man aus der Ablenkungsmessung folgendes Temperaturprofil gewinnen:

$$\Delta T(r, z) = \frac{T}{n-1} \frac{\alpha e^{-\alpha z}}{1 - e^{-\alpha z}} \int_r^\infty \Phi(r') dr'. \quad (5.8)$$

Zur experimentellen Datenaufnahme ist es sinnvoll, den Kühlstrahl zeitlich zu pulsen. Mit dieser Randbedingung und mit dem Kühllaserprofil als gaußförmigem Quellterm kann man die Wärmeleitungsgleichung auswerten. Damit erhält man das Temperaturprofil:

$$\Delta T = \frac{P_{\text{cool}}}{4\pi\kappa} e^{-\alpha z} \left[\text{Ei}\left(\frac{2r^2}{w^2}\right) - \text{Ei}\left(\frac{2r^2}{w^2 - 8Dt}\right) \right]. \quad (5.9)$$

Mit der Wärmekapazität κ , der Strahltaile w (für beide Strahlen gleich), der thermischen Diffusivität D , dem Strahlversatz r und der Zeit t . Das Exponentialintegral Ei ergibt sich aus der Wärmediffusion mit einem gaußförmigen Profil als Anfangsbe-

5 Stoßinduzierte Redistributionskühlung

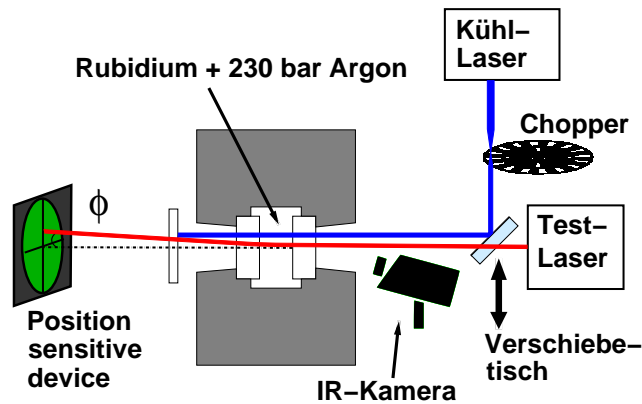


Abbildung 5.9: Schematischer Aufbau zur thermischen Deflektionsspektroskopie. Der Kühlaser wird mit einem mechanischen Chopper regelmäßig unterbrochen. Ein paralleler Teststrahl wird durch die thermische Linse im Gas abgelenkt. Über einen dichroitischen Spiegel kann der Versatz zwischen Kühl- und Teststrahl durchgeführt werden. Die Ablenkung des Teststrahls wird mit einer Quadrantendiode oder einer positionsempfindlichen Diode (Position sensitive device) bestimmt.

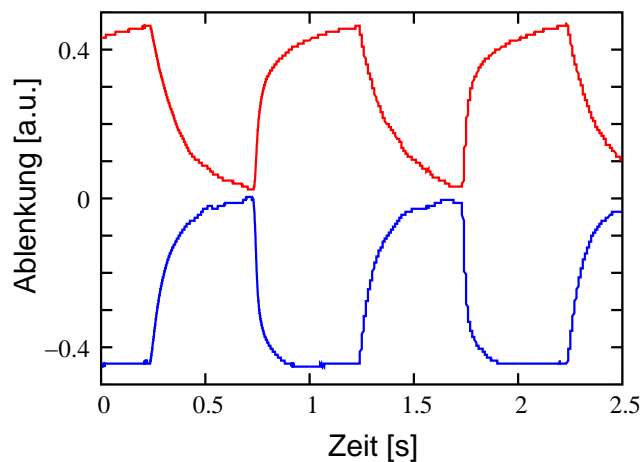


Abbildung 5.10: Typische Ablenkungssignale für positive bzw. negative Kühlaserverstimmung als Funktion der Zeit. Die rote Kurve zeigt eine Messung mit Kühlaserfrequenz 365 THz, die blaue Kurve wurde mit 387 THz gemessen. Aus der beobachteten Anstiegszeit kann die thermische Diffusivität D des Gases bestimmt werden. Die Anstiegszeiten sind dabei in guter Übereinstimmung mit charakteristischen Zeit für die Ausbildung einer thermischen Linse. Andere Effekte, die den Brechungsindex lokal ändern, wie etwa der Kerr-Effekt, und sich deutlich schneller ausbilden, werden bei dieser Messung nicht beobachtet.

5.3 Temperaturmessung mittels thermischer Deflektionsspektroskopie

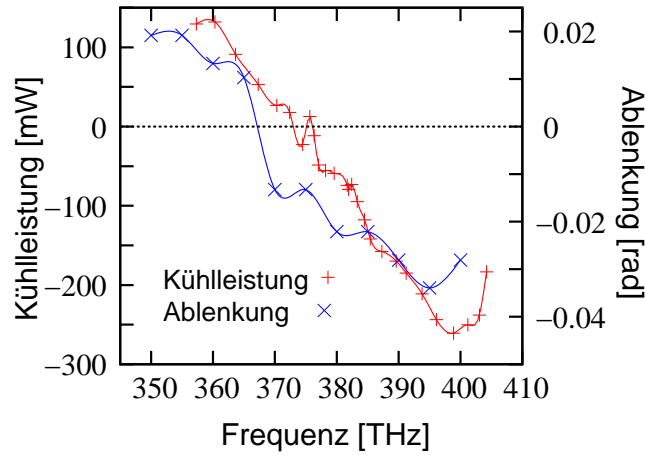


Abbildung 5.11: Zusätzlich zum geschätzten Leistungsübertrag aus Abb. 5.4 (rote Kurve) ist hier der beobachtete Ablenkungswinkel des Teststrahls als Funktion der Laserfrequenz dargestellt (blaue Kreuze). Beide Kurven verlaufen weitgehend parallel, und der Nulldurchgang der Ablenkungsmessung zeigt die effektive Abkühlung bzw. Aufheizung des Gases abhängig von der eingestrahelten Laserfrequenz. Das Resultat der Ablenkungsmessung deutet darauf hin, dass Kühlung erst bei etwas stärkerer roter Verstimmung auftritt, als es die redistribuierte Fluoreszenz erwarten lässt. (Statistische Schwankungen der Ablenkungsmessung durch thermische Fluktuationen wurden durch vielfache Mittelung größtenteils kompensiert.)

dingung, für den Temperaturgradienten vereinfacht sich der Ausdruck zu

$$\frac{dT}{dr} = -\frac{P_{\text{cool}}}{2\pi\kappa} \frac{e^{-\alpha z}}{r} \left[\exp\left(\frac{2r^2}{w^2}\right) - \exp\left(\frac{2r^2}{w^2 - 8Dt}\right) \right]. \quad (5.10)$$

Zur Messung der Ablenkung wurde zunächst das Restlicht des Kühlstrahls mit einem optischen Tiefpassfilter geblockt. Als Teststrahl wurde ein Helium-Neon Laser verwendet, der ungehindert passieren konnte. Die Ablenkung wurde mit einer Quadrantendiode gemessen, die für kleine Ablenkungen eine lineare Antwort liefert. Um größere Ablenkungen zu erfassen wurde später vor allem eine positionsempfindliche Diode (*position sensitive device*, Hamamatsu Typ S5991-01) verwendet. Die experimentelle Umsetzung ist in Abb. 5.9 gezeigt.

Abb. 5.10 zeigt typische Ablenkungssignale für verschiedene Laserfrequenzen. Bei festem Strahlabstand wurde so mit dem Kühlaser bei verschiedenen Frequenzen die druckverbreiterte Rubidium-Linie angeregt und jeweils die Maximalablenkung des Testlasers bestimmt. In Abb. 5.11 ist die Strahlablenkung abhängig von der Kühlaserfrequenz aufgetragen. Ein Vergleich mit dem Ergebnis aus der Fluoreszenzmessung zeigt gute qualitative Übereinstimmung. Der Vorzeichenwechsel der Ablenkung zeigt direkt Heizung bzw. Kühlung für verschiedene Verstimmungen des Lasers. Der Nulldurchgang ist nicht genau beim Zentroid des D-Dubletts, sondern etwa 5 nm rot verstimmt davon. Dies wird auf konkurrierende Heizeffekte zurückgeführt, die erst kompensiert werden müssen, bis netto Kühlung auftritt. In Frage kommen hierzu vor

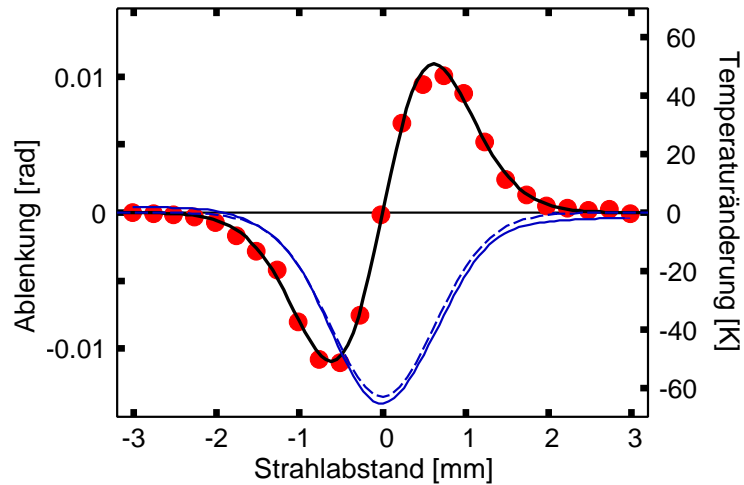


Abbildung 5.12: Die roten Punkte zeigen die Ablenkung des Teststrahls als Funktion des lateralen Abstands zwischen Teststrahl und Kühlstrahl. Die schwarze Kurve ist eine Anpassung nach Gl.5.10. Die gemessene Ablenkung ist direkt proportional zum erzeugten Temperaturgradienten. Durch numerische Integration kann aus dem Temperaturgradienten das Temperaturprofil gewonnen werden. Die durchgezogene blaue Kurve zeigt das Temperaturprofil 1 mm nach dem Zellenanfang, wo die volle Kühlaserleistung zur Verfügung steht. (Die gestrichelte blaue Kurve berücksichtigt einen zusätzlichen linearen Temperaturgradienten zwischen den Zellenwänden, der die geringen Abweichungen zu Gl.5.9 erklären kann.)

allem Restverunreinigungen des Gases, die zu Heizeffekten führen.

Zur Bestimmung der maximalen Kühlung wurde das komplette Temperaturprofil räumlich abgetastet. Dazu wurden beide Laserstrahlen auf gleichen Durchmesser kollimiert und parallel justiert. Der Kühlaser wurde auf eine Frequenz von 365 THz eingestellt, die Laserleistung betrug 3 W. In Abb. 5.12 wird die gemessene Ablenkung des Teststrahls als Funktion des Parallelversatzes zwischen Kühl- und Testlaserstrahl gezeigt (rote Punkte). Eine numerische Integration der Ablenkungsdaten (blaue Kurve) liefert das Temperaturprofil mit einer maximalen Kühlung von 66(13) K nach einer Kühldauer von 0.5 s. Da die Kühlaserintensität durch Absorption über die Zellenlänge abnimmt, wird dieser maximale Wert der Kühlung zu Beginn der Zelle erreicht. Wegen der bekannt guten Wärmeleitung der Saphirfenster, bezieht sich der Wert der Kühlung von 66(13) K nicht auf den Eintrittspunkt des Kühlasers in die Zelle, sondern auf einen Punkt 1 mm dahinter. Dieser Wert wurde gewählt, da die Messungen eine radiale Ausbreitung des Temperaturprofils von etwa 1 mm zeigen. Eine thermische Kopplung an den Saphir sollte nach dieser typischen Länge klein sein. Eine Anpassung an Gl.5.9 (schwarze Kurve) zeigt gute Übereinstimmung der Daten mit dem angenommenen Modell, wobei für die Wärmekapazität der Wert $\kappa = 0.034 \text{ Wm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ [166] und für den Brechungsindex der Wert $n=1.057(6)$ [170] angenommen wurde. Die angegebenen Fehlergrenzen der Temperaturmessung set-

5.3 Temperaturmessung mittels thermischer Deflektionsspektroskopie

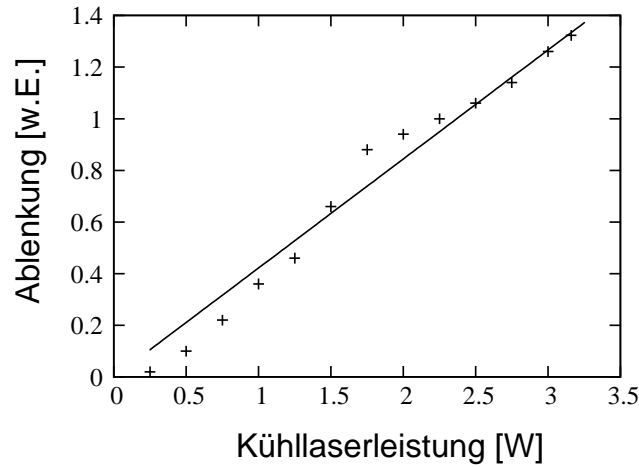


Abbildung 5.13: Maximale Ablenkung an der erzeugten thermischen Linse in Abhängigkeit von der Kühllaserleistung für eine Kühllaserfrequenz von 360 THz und einen Strahldurchmesser von etwa 0.5 mm, bei 230 bar Argon-Puffergasdruck und 330°C Gas-Temperatur. Für die experimentell verfügbare Laserleistungen ist keine signifikante Abweichung vom linearen Verhalten festzustellen.

zen sich hauptsächlich aus den Unsicherheiten bei der Bestimmung des Druckes, der Strahldurchmesser beider Strahlen und der Absorptionslänge zusammen. Ein freier Parameter beim Vergleich der Messung mit Gl.5.9 ist die thermische Diffusivität D , für die aus der Literatur nur unpräzise Werte vorliegen [164, 165, 166]. Sie wurde zu $D = 0.16(0.05) \text{ mm}^2\text{s}^{-1}$ bestimmt, was im Rahmen der Unsicherheit konsistent mit den bekannten Ergebnissen ist.

Aus dem Vergleich mit dem Modell zur Wärmeleitungsgleichung konnte eine Kühlleistung von 87(20) mW bestimmt werden. Die entspricht einer Kühleffizienz von 3.5(0.8)% der eingestrahlten Laserleistung. Die bestimmte Kühlleistung ist konsistent mit der beobachteten Redistribution der Fluoreszenz und der aus der gemessenen Lebensdauermessung des angeregten Zustands bestimmten großen Elastizität der Rubidium-Argon-Stöße. Mögliche parasitäre Heizeffekte spielen somit hier offenbar keine dominante Rolle.

In den durchgeführten Messungen war die beobachtete Kühlung im Rahmen der Fehlergrenzen stets linear von der eingestrahlten Laserleistung abhängig. Abbildung 5.13 zeigt eine entsprechende Ablenkungsmessung für einen Strahldurchmesser von 0.5 mm. Bisher konnten mit einem minimalen Strahldurchmesser von $100 \mu\text{m}$ reproduzierbare Messungen durchgeführt werden, wobei auch hier keine signifikante Abweichung vom linearen Verlauf beobachtet wurde. Bei sehr hoher Laserintensität erwartet man durch zunehmende Sättigung eine Abweichung von diesem linearen Verlauf. Für kleine Strahldurchmesser von Kühllaser und Detektionsstrahl wird die korrekte und reproduzierbare Justage des Strahlengangs zur Deflektionsspektroskopie zunehmend anspruchsvoller. Für zukünftige Messungen ist daher geplant, den Strahlengang durch elektronisch gesteuerte Positioniersysteme zu ergänzen.

5 Stoßinduzierte Redistributionskühlung

Der Einfluss von *radiation trapping* wurde bei dem verwendeten Modell nicht berücksichtigt. Bei der hohen optischen Dichte des untersuchten Gases tritt dieser Effekt teilweise auf (siehe Abb. 3.8). Die bisherigen Messungen liefern allerdings keine direkten Hinweise auf einen dadurch verminderten Abtransport der Fluoreszenz. Dies könnte sich prinzipiell durch eine andere Form des Temperaturprofils oder eine veränderte Zeitkonstante der Etablierung des Temperaturprofils bemerkbar machen. Dies wurde nicht beobachtet, so dass die mittlere freie Weglänge der Fluoreszenzphotonen bisher vermutlich größer ist als der Durchmesser des Temperaturprofils.

Wie bereits bei den Messungen in Kapitel 4, wurden auch hier Untersuchungen mit dem Puffergas Helium statt Argon durchgeführt. Auch mit 230 bar Helium als Puffergas zeigte sich die für Kühlung entscheidende Redistribution der Fluoreszenz. Die rote Linie in Abb. 5.14 zeigt die aus den Daten für die beobachtete Frequenzverschiebung der Fluoreszenz erwartete Kühlleistung als Funktion der Laserfrequenz. Die blaue Linie zeigt die mittels Deflektionsspektroskopie beobachtete jeweilige Ablenkung des Detektionsstrahls an der erzeugten thermischen Linse in Abhängigkeit von der Laserfrequenz. Auch hier wird ein Vorzeichenwechsel der Ablenkung zwischen roter und blauer Laserverstimmung beobachtet, also Kühlung oder Aufwärmung des Gases im jeweiligen Bereich.

Aus zwei Gründen wurden die Experimente mit Helium nicht näher verfolgt. Das Anregungsspektrum für das Puffergas Helium ist deutlich asymmetrisch mit ver-

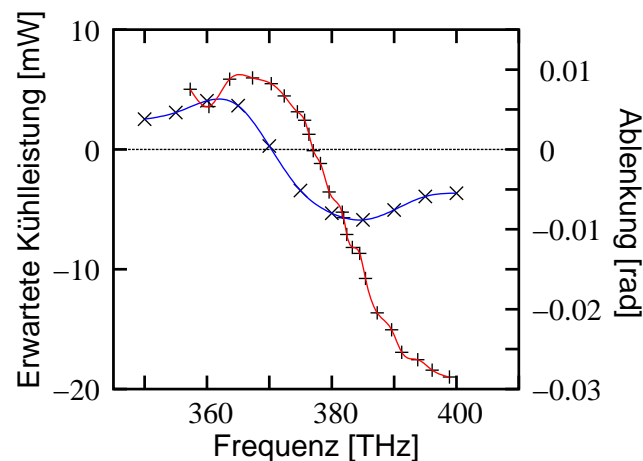


Abbildung 5.14: Auch für das Puffergas Helium (230 bar) wurden Messungen zur Redistribution der Fluoreszenz durchgeführt. Die daraus abgeleitete erwartete Kühlleistung abhängig von der Laserfrequenz zeigen die mit der roten Linie verbundenen Daten. Zusätzlich wurden Ablenkungsmessungen (blaue Linie) analog zu Abb. 5.11 durchgeführt. Die Wärmeleitfähigkeit von Helium ist deutlich größer als die von Argon, so dass sich in Helium schwerer Temperaturgradienten erzeugen lassen. Zudem ist rotverstimmte Anregung bei Helium ineffizienter als bei Argon. Daher wurden Kühlexperimente mit diesem Gas nicht weiter verfolgt.

5.3 Temperaturmessung mittels thermischer Deflektionsspektroskopie

stärkter blauverstimmter Flanke (siehe Abb. 4.3). Die zur Kühlung benötigte stark rotverstimmte Anregung ist daher deutlich ineffizienter als in der Situation mit dem Puffergas Argon. Zusätzlich ist die thermische Leitfähigkeit von Helium um eine Größenordnung besser als die von Argon. Zur Erzeugung möglichst großer Temperaturgradienten und möglichst tiefer Temperaturen ist Helium entsprechend schlechter geeignet als Argon. (Die deponierte Kühlleistung ist natürlich unabhängig von der thermischen Leitfähigkeit. Wollte man in Zukunft einen effektiven Leistungsübertrag zu einer thermischen Last erreichen, wäre die hohe thermische Leitfähigkeit von Helium von Vorteil.) Zu erwarten ist, dass die Puffergase Krypton bzw. Xenon auf Grund ihrer noch geringeren Wärmeleitfähigkeit bessere Resultate, d.h. tiefere Endtemperaturen liefern könnten.

Während diese Arbeit abgefasst wurde, konnte vor kurzem, vor allem durch stärkere Fokussierung des Kühllaserstrahls und durch eine Erhöhung der optischen Dichte (d.h. zunächst stärkeres Heizen des Rubidiumdampfes), eine Temperaturabsenkung von 527 K nachgewiesen werden¹. Dies entspricht einer Kühlung auf eine Absoluttemperatur von -117°C . Einige, zum Teil noch ungeklärte, Phänomene, die in diesem neuartigen System auftreten, sind Gegenstand gegenwärtiger Messungen, etwa ein möglicher Einfluss von Selbstfokussierung des Kühllaser-Strahls bei hoher Strahlintensität. Bisher scheint es, dass weitere Kühlung nur durch die Wärmeleitung des Gases und natürlich durch die Ausgangsleistung des Kühllasers limitiert ist.

¹A. Saß, U. Vogl und M. Weitz, in Vorbereitung.

5 Stoßinduzierte Redistributionskühlung

6 Ausblick

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Wechselwirkung von Laserstrahlung mit Rubidiumatomen bei extrem hohen Puffergasdrücken in der Größenordnung von einigen hundert Bar. Unter diesen Bedingungen erreicht die Druckverbreiterung der optischen Übergänge die Größenordnung der thermischen Energie der Gasatome und elastische Stöße können effizient Energie zwischen den inneren und äußeren Freiheitsgraden der Atome umverteilen. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit gelang es, gekoppelte Atom-Licht-Zustände in ein beginnendes thermisches Gleichgewicht zu bringen. Mit der Verwendung eines optischen Resonators oder Wellenleiters könnte dieser experimentelle Ansatz zukünftig die Bose-Einstein-Kondensation von Atom-Licht-Polaritonen erlauben, wie in Kapitel 4.5 dargestellt wurde.

Auch erlaubte das dichte Rubidium-Puffergasgemisch im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Demonstration eines neuartigen Laserkühlverfahrens, der stoßinduzierten Redistributionskühlung. Hierbei handelt es sich um ein neues Kühlverfahren mit dem erstmalig makroskopische Gasmengen mittels Laserbestrahlung abgekühlt werden können.

Mittlerweile konnte das mit der vorgestellten Methode gekühlte Gas auf kryogene Temperaturen gebracht werden, mit ähnlichen Tiefstwerten, wie sie jüngst in einem mit Ytterbium dotierten LiYF_4 -Kristall mit Anti-Stokes-Kühlung erzielt werden konnten [27]. Dort wurden die tiefsten Temperaturen nach einer Kühltdauer von 90 Minuten erzielt, wobei die gekühlte Probe aufwendig thermisch von der Umgebung abgeschirmt war. Bei der vorgestellten stoßinduzierten Redistributionskühlung wird die Tiefsttemperatur mit den gewählten Parametern typischerweise in einigen Zehntelsekunden erreicht, wobei der gekühlte Bereich nicht thermisch isoliert zur Umgebung hin ist. Eine physikalische Grenze der hier untersuchten Kühlmethode ist automatisch durch die abnehmende kinetische Energie $k_B T$ der stoßenden Atome bei fortschreitender Kühlung gegeben. Ein einfaches Modell, das Vorhersagen zur möglichen maximalen Kühleffizienz zulässt, wird in Anhang A erörtert.

Im Vergleich zur Dopplerkühlung an atomaren Gasen können mit der hier vorgestellten Kühlmethode um Größenordnungen höhere Gasmengen gekühlt werden. Als "Kühlmittel" fungiert in diesem System der kleine Anteil an Rubidiumatomen, deren elektronischer Übergang mit einem Kühlaser getrieben werden kann. Der Kühlprozess basiert auf Stößen zwischen den Rubidium- und Argonatomten, so dass die komplette Gasmenge gekühlt wird.

Für zukünftige Experimente stellen sich vor allem zwei Fragen. Zum einen die der möglichen technischen Anwendbarkeit dieser Kühlmethode und zum anderen die der zukünftigen weiteren Grundlagenforschung auf diesem Gebiet. Für beide soll hier ein

6 Ausblick

Ausblick gegeben werden.

Zunächst sollen hier mögliche Anwendungen der stoßinduzierten Laserkühlverfahrens in der Grundlagenforschung diskutiert werden.

Durch die Verwendung eines Puffergases kleinerer Wärmeleitung, wie beispielsweise Krypton oder Xenon, oder eines leistungsstärkeren Kühllasers (beispielsweise eines Hochleistungs-Diodenlasers), sollte es möglich sein, unter die jeweiligen Siede- oder auch Schmelztemperaturen dieser Edelgase zu kühlen. Bereits jetzt konnten mit der stoßinduzierten Redistributionskühlung Temperaturen in der Nähe der kritischen Temperatur von Argon (-122°C) erzielt werden. Mit dieser kontaktfreien Kühlmethode könnten neuartige Versuche zur homogenen Keimbildung in unterkühlten Flüssigkeiten durchgeführt werden. Unterkühlte Flüssigkeiten lassen sich erzeugen, wenn normale Flüssigkeiten sehr schnell unter die Schmelztemperatur abgekühlt werden, und mangels Kondensationskeimen keine Kristallisation einsetzt [171]. Ausgehend von unterkühlten Flüssigkeiten sind zudem Phasenübergänge hin zu glasartigen Zuständen vorhergesagt, die sich bisher experimentell schwer überprüfen ließen. Die Theoriebildung hierzu ist ein sehr aktives Gebiet [172], leidet aber stark an fehlenden experimentellen Daten. Zum Beispiel zeigten relativ junge experimentelle Untersuchungen zur homogenen Keimbildung in Argon eine um 20 Größenordnungen höhere homogene Keimbildungsrate als es die zuvor bekannten Modelle vorhersagten [173]. Lasergestützte Methoden erwiesen sich in diesem experimentellen Bereich bereits als vorteilhaft, wobei bisher Laserstrahlung ausschließlich zur gezielten Induzierung von Kondensationskeimen in unterkühlten Flüssigkeiten eingesetzt wurden [174]. Die hier entwickelte Laserkühlmethode hat das Potential, auf diesem Forschungsgebiet neue Bereiche experimentell zu erschließen, indem man komplett kontaktfrei mittels Laserlicht die Temperatur von Gasen senken und über den gewünschten Temperaturbereich variieren könnte. Die typische Zeit, mit der im Moment mit der vorgestellten Kühlmethode gekühlt werden kann, ist mit einigen Zehntelsekunden geeignet, erwartete Prozesse bei der homogenen Keimbildung zeitlich aufzulösen [173]. Eine konkrete Messgröße, die mit der in der vorliegenden Arbeit bereits zur Temperaturbestimmung verwendeten thermischen Deflektionsspektroskopie zugänglich sein könnte, ist z.B. die spezifische Wärmekapazität. Beim möglichen Übergang von einer unterkühlten Flüssigkeit in eine glasartige Phase wird ein starker Abfall der spezifischen Wärmekapazität vorhergesagt [175], der sich direkt in einer veränderten Ablenkung des Teststrahls abzeichnen müsste.

Vielfach diskutiert ist die mögliche Kühlung von Molekülen [176, 177, 178], bei der wegen der komplexen internen Struktur der Moleküle Dopplerkühlung bisher schwer anwendbar ist. Die hier vorgestellte Kühlmethode könnte dazu einen neuen Ansatz liefern. Moleküle könnten mit dieser Laserkühlung zwar vermutlich nicht direkt zu ultrakalten Temperaturen abgekühlt werden, aber diese Kühlmethode könnte dazu genutzt werden, größere Gasmengen effektiv vorzukühlen. Zahlreiche Moleküle bieten starke Übergänge im nahinfraroten Bereich, der z.B. mit dem bestehenden Titan-Saphir Laser abgedeckt ist. Gleichzeitig erreicht man mit vielen Molekülgasen bereits

bei Raumtemperatur hohe Teilchendichten, so dass man leicht hohe optische Dichten erreichen kann. Nachteilig sind die hohen Raten stoßinduzierter Fluoreszenzlöschung (Quenching bzw. Self-Quenching), die für viele molekulare Gase dokumentiert sind, und aufgrund der komplexen Niveaustuktur schwer zu vermeiden sind.

Noch wenig untersucht sind die Quenching-Raten von Molekülen in dichten Edelgasen. In einem solchen Gemisch sind die Moleküle durch Edelgasatome weitgehend voneinander abgeschirmt, so dass hier insgesamt geringere Self-Quenchingraten möglich sein könnten, und somit vielleicht die nötige Quanteneffizienz für stoßinduzierte Laserkühlung erreicht werden kann. Aus diesem Grund untersuchten wir kurz in einigen Probemessungen gasförmiges Iod bzw. Wasser mit Argon als Puffergas.

Bei den Versuchen mit Ioddampf und Puffergas Argon zeigte sich keinerlei beobachtbare Redistribution in der Fluoreszenz, so dass die Untersuchungen mit Iod nicht weiter verfolgt wurden.¹

Wassermoleküle besitzen einige relativ schwache Obertonschwingungen bei 780 nm [179]. Eine Vermessung der Fluoreszenzspektren bei 100 bar Argon-Puffergasdruck für verschiedene Anregungsfrequenzen zeigte andeutungsweise eine Redistribution der Fluoreszenz, allerdings insgesamt viel schwächer als man es bei den Experimenten mit Rubidium beobachtet. Bisher erzielte Ergebnisse zur Redistribution der Fluoreszenz in Wasserdampf sind vorläufig und Gegenstand weiterer Untersuchungen, die bisherigen Ergebnisse werden in Anhang B dargestellt (Abb. B.1 und B.2).

Schließlich sollen hier noch einige Aspekte für eine mögliche praktische Umsetzbarkeit zur technischen Kühlung makroskopischer Körper betrachtet werden. Die demonstrierte Laserkühlmethode könnte als Ersatz für Peltierelemente dienen, die typischerweise bei Temperaturen unter 150 K kaum noch effizient arbeiten [180, 181, 182]. Eine mögliche praktische Anwendungsperspektive des entwickelten Kühlverfahrens könnte zum Beispiel die Temperaturstabilisierung von Infrarotdetektoren sein.

Mit dem entwickelten stoßinduzierten Laserkühlverfahren lassen sich potentiell tiefere Endtemperaturen erreichen als mit Peltierelementen, deren Kühleffizienz bei tiefen Temperaturen schnell abnimmt. Zudem wäre eine Laserkühlung in Situationen zu bevorzugen, in denen ein mechanischer und elektrischer Kontakt störend sind. Zum Problem der thermischen Kopplung möglicher Kühlsysteme an eine Kühllast, und dem effektiven Abtransport der Fluoreszenzstrahlung wurden auf dem Gebiet der Festkörperlaserkühlung mittels Anti-Stokes-Übergängen einige praktische Ansätze entwickelt [183], mit denen die thermische Kopplung bzw. Isolation des gekühlten Bereichs verbessert, und die Kühleffizienz optimiert werden kann. Die dort vorgeschlagenen Lösungen zur verbesserten thermischen Kopplung der gekühlten Region und der Kühllast für die Anti-Stokes-Kühlung sind für die hier vorgestellte Kühlung wenig nützlich, da in dem hier betrachteten Fall das Gas bereits einen vergleichsweise guten thermischen Kontakt liefert. Ein Abtransport der Fluoreszenzstrahlung aus dem Gasvolumen kann prinzipiell durch mehr transparente Zellenoberfläche oder

¹Von P. Vöhringer erfuhren wir nach diesen Versuchen, dass I_2 durch Stöße sehr leicht prädissoziiert, wodurch eine Redistribution der Fluoreszenz hier nicht zu erwarten war.

6 Ausblick

auch besser reflektierende Innenoberflächen der Zelle verbessert werden. Will man in Zukunft optisch dünne Gase kühlen, kann man ähnlich wie in [183] vorgeschlagen, das Kühllaserlicht mehrfach durch das Medium passieren lassen, und dabei das gleichzeitig in das Medium zurückreflektierte Fluoreszenzlicht spektral filtern, so dass Heizeffekte durch den blauverstimmten Anteil des Fluoreszenzlichts vermieden werden.

In den derzeitigen ersten Demonstrationsexperimenten wird als Kühlmittel ein Argon-Rubidium-Gemisch verwendet, was aus anwendungstechnischer Sicht natürlich sowohl wegen der chemischen Aggressivität des Rubidium-Metalls als auch wegen des erforderlichen Vorheizens auf eine Temperatur, die einen hinreichenden Rubidium-Partialdruck erlaubt, nur unter Einschränkungen geeignet für praktische Anwendungen ist. Ideal wäre es selbstverständlich, wenn das Kühlschema bereits bei Raumtemperatur starten könnte. Nötig ist hierzu ein Gas mit ausreichend starken optischen Übergängen, vorzugsweise bei Frequenzen verfügbarer leistungsstarker Laser. Zusätzlich sollte die Quanteneffizienz der optischen Kollisionen hoch sein und durch die Stöße eine Redistribution der abgegebenen Strahlung erfolgen. Atomare Edelgase erfüllen diese letzten beiden Bedingungen gut, so dass es im Prinzip möglich sein könnte, auf das Rubidium zu verzichten, und z.B. allein ein dichtes Argongas zu kühlen. Allerdings liegen die Anregungsfrequenzen aus dem Grundzustand für alle Edelgase im UV-Bereich. Die Entwicklung leistungsstarker UV-Laser macht gegenwärtig schnelle Fortschritte, so dass prinzipiell geeignete Kühllaserquellen vorhanden sind. Zu berücksichtigen ist allerdings, dass der Energieübertrag bei jedem Absorptions-Emissions-Zyklus der vorgestellten Kühlmethode in der Größenordnung der thermischen Energie der Stoßpartner $k_B T$ liegt. Die Kühleffizienz pro Laserphoton verschlechtert sich somit bei höheren Laserfrequenzen. Dennoch stellt die mögliche optische Kühlung reiner Edelgase eine interessante Perspektive dar, da Edelgase aufgrund ihrer chemischen Trägheit gefahrlos in direkten Kontakt mit möglichen Kühllasten gebracht werden könnten.

A Thermodynamik optischer Kühlung

Der vorgestellte Kühlprozess stellt allgemein betrachtet eine Kältemaschine dar, die Arbeit von niederentropischem Laserlicht erhält und damit das Gasreservoir kühlen kann. Dieses vereinfachte Modell kann man benutzen, um eine Grenze für die mögliche Kühleffizienz zu bestimmen und ermöglicht es darüber hinaus, ein konzeptuelles Verständnis für die Rolle der Entropie beim vorgestellten Kühlprozess zu gewinnen [93, 184, 185]. Die folgende Darstellung lehnt sich an ein Modell an, dass im Zusammenhang mit Experimenten zur Anti-Stokes-Kühlung von Festkörpern entwickelt wurde [186, 187].

Betrachtet man als vertrautes Kühlgerät einen Kühlschrank, so liefert dort die niederentropische elektrische Energie die benötigte Arbeit, um den Innenraum des Kühlschranks zu kühlen und die Wärmeenergie in die Umgebung abzuführen. Analog dazu dient hier das Laserlicht als niederentropische Energiequelle, die Arbeit verrichten kann und den Kühlprozess antreibt.

Allgemein definiert der Carnot-Koeffizient den möglichen Wirkungsgrad für eine Kältemaschine:

$$\kappa_C = \frac{T}{T_F - T}. \quad (\text{A.1})$$

Die Temperatur T kann dabei in unserem Fall der Temperatur des Gasgemisches zugeordnet werden. Das heiße Reservoir stellt die abgestrahlte Fluoreszenz dar, der man, wie anschließend dargestellt, eine effektive Temperatur T_F zuordnen kann. Das gleiche gilt für das eingestrahlte Laserfeld.

Diese Zuordnung einer Temperatur auf Strahlungsfelder wagte als erster Landau [13], um die Rolle der Entropie beim Energietransfer durch Licht zu charakterisieren. Er definierte die sogenannte Brightness-Temperatur einer Lichtquelle als die Temperatur, die ein schwarzer Strahler haben müsste, um in der spektralen Bandbreite der Lichtquelle die gleiche Abstrahlung wie diese Lichtquelle zu erreichen. Exemplarisch ist dies für die im Experiment beobachtete Fluoreszenz in Abb. A.1 dargestellt, wonach der Fluoreszenz eine effektive Temperatur von etwa 2000 K zugeordnet wird. Eine präzisere Definition der Temperatur von Strahlungsfeldern lieferte Weinstein [188], die sogenannte Flux-Temperatur, definiert als das Verhältnis der von der Strahlung transportierten Energie und Entropie [189, 190, 191]. Diese Temperatur ist natürlich nicht mit einem Thermometer messbar, sondern dient vielmehr als Maß für die Fähigkeit, mit diesem Licht Arbeit zu verrichten.

Die Brightness eines schwarzen Strahlers (black body, BB) ist

$$L_\lambda^{BB} = \frac{2hc^2/\lambda^5}{\exp(hc/k_B T_{BB}\lambda) - 1}. \quad (\text{A.2})$$

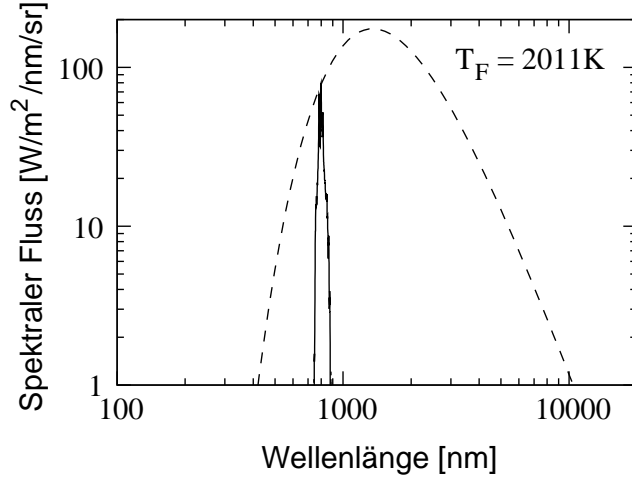


Abbildung A.1: Spektraler Fluss der im hier betrachteten Kühlprozesses auftretenden Fluoreszenz und die daraus abgeleitete effektive Temperatur der Fluoreszenzstrahlung T_F von etwa 2000 K. Gestrichelt ist das dieser Temperatur entsprechende Spektrum der Schwarzkörperstrahlung eingezeichnet.

Die mittlere Brightness der Fluoreszenz ergibt sich aus der Leistung \dot{E} , die über den entsprechenden Raumwinkel (gegeben durch Θ, ϕ) abgestrahlt wird:

$$\bar{L}_\nu = \frac{\dot{E}}{\int_0^{2\pi} \int_0^\delta \int_{\Delta\nu} \int_A \cos \Theta dA d\nu \sin \Theta d\Theta d\phi}. \quad (\text{A.3})$$

Die Temperatur lässt sich aus der dem Strahlungsfeld zugeordneten Energie E und Entropie S , mit der mittleren Besetzung \bar{n} der Moden des Lichtfeldes ableiten [186]:

$$\frac{dE}{dS} = \frac{h\nu_0 d\bar{n}}{k \ln(1 + 1/\bar{n}) d\bar{n}} = T_F. \quad (\text{A.4})$$

Da man rigoros das gleiche auch auf das kühlende Laserlicht anwenden kann, bedeutet dies für den Carnot-Koeffizienten, dass man effektiv mit drei Temperaturen operiert, der Temperatur des Gases T , der Fluoreszenz T_F und des Pumplasers T_P [192], wie in Abb. A.2 skizziert.

Man betrachtet dabei zwei Teilprozesse. Bei der Absorption von Laserlicht wird die Energie der Photonen aufgespalten in verwertbare Arbeit W und ungeordnete Wärmeenergie, in diesem Fall entropiereiche Fluoreszenz, mit dem Wirkungsgrad

$$\epsilon_C = \frac{T_P - T_F}{T_P}. \quad (\text{A.5})$$

Entsprechend wird gleichzeitig dem Gas Wärmeenergie Q entzogen, und zwar mit

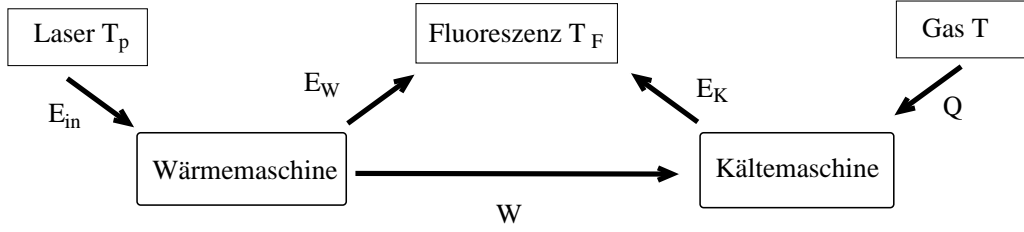


Abbildung A.2: Schematische Darstellung der optischen Kühlung, bei der das Laserlicht und die Fluoreszenz als thermische Reservoirs mit den Temperaturen T_P und T_F betrachtet werden. Bei jedem Absorptions-Emissions Zyklus wird die Energie E_{in} vom Laserlicht bereitgestellt. Das niederentropische Laserlicht kann Arbeit W zum Antrieb einer Kältemaschine liefern. Gleichzeitig wird die Wärmemenge Q in der Größenordnung $k_B T$ dem Gas entzogen. Insgesamt wird die Energie $E_W + E_K$ mit der Fluoreszenz aus dem System getragen.

dem Carnot-Wirkungsgrad

$$\kappa_C = \frac{T}{T_F - T}. \quad (\text{A.6})$$

Insgesamt erhält man für den gesamten Vorgang den Carnot-Wirkungsgrad

$$\kappa_{C,\text{all}} = \frac{T(1 - T_F/T_P)}{T_F - T}. \quad (\text{A.7})$$

In der Regel ist das Laserlicht entropiearm, so dass die effektive Temperatur des Laserlichts T_P sehr groß ist und der Quotient T_F/T_P vernachlässigt werden kann:

$$\kappa_{C,\text{all}} = \frac{T}{T_F - T}. \quad (\text{A.8})$$

(Für das im Experiment verwendete Laserlicht ergibt sich nach Gl. A.4 eine erstaunlich hohe effektive Temperatur in der Größenordnung 10^{10} K. Wollte man qualitativ schlechtere Lichtquellen zur Kühlung verwenden, etwa breitbandig abstrahlende Hochleistungs-Diodenlaser, könnte deren effektive Temperatur physikalisch in Gl. A.7 relevant werden.) Mit dem allgemeinen Ausdruck A.7 lassen sich die effektiven Temperaturen durch die mittleren Frequenzen des Kühllasers und der Fluoreszenz ausdrücken (Gl. A.4), und man erhält wieder den Ausdruck Gl. 5.1, mit dem experimentell die Differenz zwischen Kühllaserfrequenz und mittlerer Fluoreszenzfrequenz ausgewertet wurde:

$$\kappa_{C,\text{all}} = \frac{\nu_F - \nu_P}{\nu_P}. \quad (\text{A.9})$$

Interessant ist nun die Diskrepanz zwischen beiden Werten für Gl. A.8 und Gl. A.9, die sich aus den verschiedenen zugänglichen experimentellen Parametern ergibt. Aus den mittleren Frequenzen von Kühllaser und Fluoreszenz erhält man wie gezeigt eine Effizienz der Kühlung von etwa 4%.

Die spektrale Temperatur der Fluoreszenz lässt sich über den beobachtete räumliche Abstrahlung der Fluoreszenz in den vollen Raumwinkel und die abgestrahlte

Lichtleistung bestimmen (diese setzt sich zusammen aus der zuvor absorbierten Laserleistung zuzüglich der mit der Fluoreszenz abtransportierten Wärmemenge). Aus den experimentellen Daten konnte die effektive Temperatur der Fluoreszenz T_F auf etwa 2000 K bestimmt werden (vgl. Abb. A.1). Daraus lässt sich ein Wirkungsgrad $\kappa_{C,\text{all}}$ von etwa 35% ableiten.

Dieser Unterschied der erwarteten und beobachteten Kühleffizienzen kann verschiedene Ursachen haben. Nichtradiative Prozesse können aus den Fluoreszenzspektren nicht abgelesen werden, können aber potentiell stark zur Aufheizung und zur Entropieerhöhung beitragen. In ähnlicher Weise gilt dies für stoßinduzierten Transfer in hochangeregte Zustände wie das beobachtete *energy pooling*, wobei diese unter Umständen auch netto zur Kühlung beitragen können. Ein wichtiger Faktor ist auch, welcher Anteil der Fluoreszenzphotonen das Gas komplett verlässt und nicht durch Absorption an den Zellenwänden die Hintergrundtemperatur erhöht. Radiation-Trapping wird insgesamt den Abtransport der Fluoreszenzphotonen herabsetzen. Ebenso kann durch eine hohe Kühllaserintensität die effektive Absorptionlänge im Zentrum des Kühlstrahls vergrößert sein, wodurch die Kühleffizienz dort herabgesetzt wird. Für ein verbessertes Modell müssen diese Einflüsse zunächst experimentell genauer charakterisiert werden.

Das theoretische Optimum der Kühlung wird sich schwer erreichen lassen, zumal die hier erwähnte mögliche Kühleffizienz von 35% das tatsächliche Optimum schlicht überschätzen kann, weil das zugrundegelegte Modell zu simpel ist. Die praktisch realisierbaren Grenzen sind aber wohl noch nicht ausgereizt, bisher ging experimentell eine höhere Kühllaserleistung (bzw. Intensität) linear mit stärkerer Kühlung einher (Abb. 5.13).

Bei zukünftigen experimentellen Ansätzen kann man dementsprechend auf verschiedene Weise versuchen zu optimieren. Die kommerziell erhältlichen Puffergase sind mit Restverunreinigungen versetzt, bei denen vor allem Stickstoff und Kohlenwasserstoffe hohe Quenchingquerschnitte besitzen. Auch die verwendete Zelle erfüllt bestenfalls Hochvakuumreinheit. Beide Verlustquellen lassen sich durch weitergehende Reinigungsschritte minimieren. Beim Zellendesign muss zum einen die absorbierende Oberfläche minimiert werden, soweit dies die nötige Stabilität gegen die auftretenden Drücke zulässt. Weiter kann das Verhältnis von Gasvolumen zu transparenter Oberfläche optimiert werden, so dass ein größerer Anteil der Fluoreszenz das Gas verlässt.

B Redistribution von Fluoreszenz in Wasserdampf

In einigen Messungen wurde Wasserdampf mit 100 bar Argon als Puffergas untersucht. Dazu wurde destilliertes Wasser in die Zelle gegeben, worauf sich der gesättigte Dampfdruck in der Zelle etablierte. Mit dem bestehenden Lasersystem konnten Obertonschwingungen im nahinfraroten Bereich [179] angeregt werden. Als Voraussetzung für eine mögliche Kühlung in diesem System, wurde die Fluoreszenz nach der in Abschnitt 5.1 beschriebenen Methode vermessen. Die angeregten Übergänge sind sehr schwach, in Abb.B.1 ist ein aufgenommenes Spektrum zu sehen, wobei das nichtabsorbierte Laserlicht die Aufnahme dominiert und die Fluoreszenz um den Laserpeak verteilt ist und nur schwach vom Rauschen zu unterscheiden ist.

In Abb.B.2 ist der Schwerpunkt des Fluoreszenzsignals in Abhängigkeit von der Anregungswellenlänge aufgetragen. Es zeigt sich eine schwache Redistribution der Fluoreszenz.

Da in stark unterkühltem Wasserdampf bisher nicht nachgewiesene Phasen vermutet werden [172], und Wasser generell ein besonders interessantes Molekül ist, sollte man in Zukunft diese Untersuchungen mit geeigneten Laserquellen bei den weitaus stärkeren Molekülbanden im mittleren infraroten Bereich wiederholen.

B *Redistribution von Fluoreszenz in Wasserdampf*

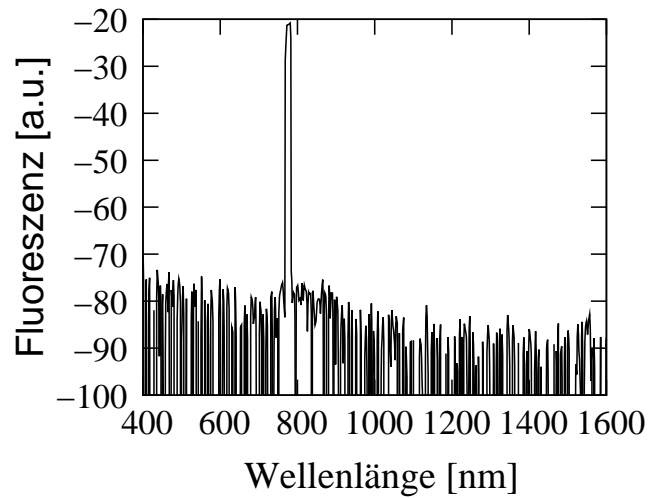


Abbildung B.1: Gezeigt ist ein Spektrum von Wasserdampf mit 100 bar Argon und 140°C, das nahe der Obertonschwingungen bei 790 nm angeregt wurde. Der hohe Peak geht vor allem auf den nicht absorbierten Teil des anregenden Laserlichts zurück. An den Flanken des Peaks zeigt sich ansatzweise redistribuierte Fluoreszenz.

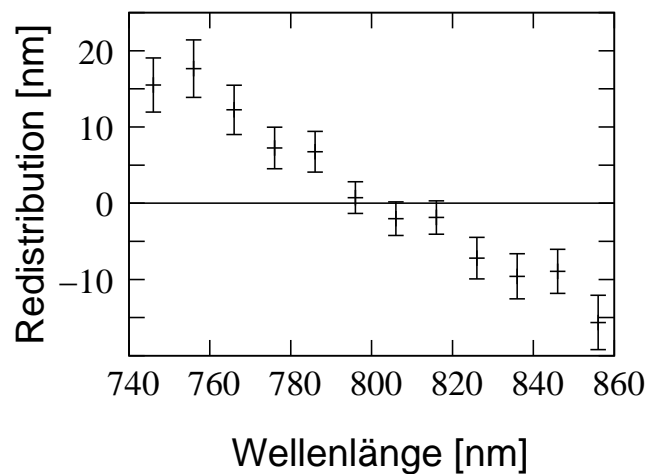


Abbildung B.2: Für verschiedene Anregungsfrequenzen um die Obertonschwingung bei 790 nm wurden Spektren gewonnen, um eine mögliche Redistribution, also Frequenzverschiebung pro Fluoreszenzphoton auszuwerten. Hierzu wurde das Spektrum links und rechts des anregenden Lasers symmetrisch verglichen.

Literaturverzeichnis

- [1] T. W. Hänsch and A. L. Schawlow. *Cooling of gases by laser radiation*. Optics Communications **13**, 68 (1975).
- [2] V. S. Letokhov. *Possibility of fast deep cooling of atomic or molecular gases by laser radiation*. Applied Physics **24**, 119 (1981).
- [3] J. Dalibard. *Laser cooling of an optically thick gas: The simplest radiation pressure trap?* Optics Communications **68**, 203 (1988).
- [4] E. L. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu and D. E. Pritchard. *Trapping of neutral sodium atoms with radiation pressure*. Phys. Rev. Lett. **59**, 2631 (1987).
- [5] D. J. Wineland and W. M. Itano. *Laser cooling*. Physics Today **40**, 34 (1987).
- [6] E. A. Cornell and C. E. Wieman. *Bose-Einstein Condensation in a Dilute Gas; the First 70 Years and Some Recent Experiments*. International Journal of Modern Physics B **16**, 4503 (2002).
- [7] W. Ketterle. *Nobel lecture: When atoms behave as waves: Bose-Einstein condensation and the atom laser*. Reviews of Modern Physics **74**, 1131 (2002).
- [8] D. Egorov, T. Lahaye, W. Schöllkopf, B. Friedrich and J. M. Doyle. *Buffer-gas cooling of atomic and molecular beams*. Phys. Rev. A **66**, 043401 (2002).
- [9] S. C. Doret, C. B. Connolly, W. Ketterle and J. M. Doyle. *Buffer-Gas Cooled Bose-Einstein Condensate*. Phys. Rev. Lett. **103**, 103005 (2009).
- [10] P. Pringsheim. *Zwei Bemerkungen über den Unterschied von Lumineszenz- und Temperaturstrahlung*. Zeitschrift für Physik **57**, 739 (1929).
- [11] S. Vavilov. *Photoluminescence and thermodynamics*. J. Phys. (Moscow) **10**, 499 (1946).
- [12] S. Vavilov. *Some remarks on the Stokes law*. J. Phys. (Moscow) **9**, 68 (1945).
- [13] L. Landau. *On the thermodynamics of photoluminescence*. J. Phys. (Moscow) **10**, 503 (1946).
- [14] A. Kastler. *Quelques suggestions concernant la production optique et la détection optique d'une inégalité de population des niveaux de quantification spatiale des atomes. Application à l'expérience de Stern et Gerlach et à la résonance magnétique*. J. Phys. Radium **11**, 255 (1950).
- [15] N. Djeu and W. T. Whitney. *Laser Cooling by Spontaneous Anti-Stokes Scattering*. Phys. Rev. Lett. **46**, 236 (1981).
- [16] G. Liakhou, S. Paoloni and M. Bertolotti. *Observations of laser cooling by resonant energy transfer in CO₂ – N₂ mixtures*. Journal of Applied Physics **96**, 4219 (2004).
- [17] C. Zander and K. H. Drexhage. *Cooling of a dye solution by anti-Stokes fluorescence*. Advances in Photochemistry, Vol. 20, D. C. Neckers, D. H. Volman, and G. von Büнау, eds. (Wiley, New York, 1995) 59–78 (1995).
- [18] I. Tsujikawa and T. Murao. *Possibility of Optical Cooling of Ruby*. Journal of the Physical Society of Japan **18**, 503 (1963).
- [19] G. C. Dousmanis, C. W. Mueller, H. Nelson and K. G. Petzinger. *Evidence of Refrigerating Action by Means of Photon Emission in Semiconductor Diodes*. Physical Review **133**, 316 (1964).
- [20] T. Kushida and J. E. Geusic. *Optical Refrigeration in Nd-Doped Yttrium Aluminum Garnet*. Phys. Rev. Lett. **21**, 1172 (1968).

Literaturverzeichnis

- [21] C. Mungan, M. I. Buchwald, B. C. Edwards, R. I. Epstein and T. R. Gosnell. *Laser Cooling of a Solid by 16 K Starting from Room Temperature*. Phys. Rev. Lett. **78**, 1030 (1997).
- [22] J. L. Clark and G. Rumbles. *Laser Cooling in the Condensed Phase by Frequency Up-Conversion*. Phys. Rev. Lett. **76**, 2037 (1996).
- [23] C. W. Hoyt, M. Sheik-Bahae, R. I. Epstein, B. C. Edwards and J. E. Anderson. *Observation of Anti-Stokes Fluorescence Cooling in Thulium-Doped Glass*. Phys. Rev. Lett. **85**, 3600 (2000).
- [24] T. R. Gosnell. *Laser cooling of a solid by 65K starting from room temperature*. Opt. Lett. **24**, 1041 (1999).
- [25] A. J. Garcia-Adeva, R. Balda and J. Fernandez. *Upconversion cooling of Er-doped low-phonon fluorescent solids*. Phys. Rev. B **79**, 033110 (2009).
- [26] H. Gauck, T. H. Gfroerer, M. J. Renn, E. A. Cornell and K. A. Bertness. *External radiative quantum efficiency of 96% from a GaAs / GaInP heterostructure*. Applied Physics A: Materials Science & Processing **64**, 143 (1997).
- [27] D. V. Seletskiy, S. D. Melgaard, S. Bigotta, A. D. Lieto, M. Tonelli and M. Sheik-Bahae. *Laser cooling of solids to cryogenic temperatures*. Nature Photonics advance online publication, doi:10.1038/nphoton.2009.269 (2010).
- [28] A. Rayner, N. R. Heckenberg and H. Rubinsztein-Dunlop. *Condensed-phase optical refrigeration*. Journal of the Optical Society of America B Optical Physics **20**, 1037 (2003).
- [29] P. R. Berman and S. Stenholm. *Heating or cooling collisionally aided fluorescence*. Optics Communications **24**, 155 (1978).
- [30] A. Jabłoński. *Über die Stoßverbreiterung der Spektrallinien und den Energieaustausch bei Zusammenstoßen*. Zeitschrift für Physik **70**, 723 (1931).
- [31] A. Jabłoński and P. Pringsheim. *Über die D-Linienemission durch Na-Dampf bei Einstrahlung von gelbem Licht*. Zeitschrift für Physik **70**, 593 (1931).
- [32] M. Garbuny. *Thermodynamic processes induced by coherent radiation*. The Journal of Chemical Physics **67**, 5676 (1977).
- [33] G. Levin. *A new way of gas cooling by light*. Optics Communications **35**, 61 (1980).
- [34] J. Goela and R. Thareja. *Heating or cooling of gases with tunable laser radiation*. Optics Communications **40**, 254 (1982).
- [35] E. Giacobino, M. Tawil, P. R. Berman, O. Redi and H. H. Stroke. *Production of "hot" excited-state atoms in collisionally aided radiative transitions*. Phys. Rev. A **28**, 2555 (1983).
- [36] A. Bambini. *Cooling or heating of atoms by radiatively assisted inelastic collisions*. Phys. Rev. A **48**, 2161 (1993).
- [37] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jem Brun, J. M. J. Keeling, F. M. Marchetti, M. H. Szymanska, R. Andre, J. L. Staehli, V. Savona, P. B. Littlewood, B. Deveaud and L. S. Dang. *Bose-Einstein condensation of exciton polaritons*. Nature **443**, 409 (2006).
- [38] S. O. Demokritov, V. E. Demidov, O. Dzyapko, G. A. Melkov, A. A. Serga, B. Hillebrands and A. N. Slavin. *Bose-Einstein condensation of quasi-equilibrium magnons at room temperature under pumping*. Nature **443**, 430 (2006).
- [39] R. Balili, V. Hartwell, D. Snoke, L. Pfeiffer and K. West. *Bose-Einstein Condensation of Microcavity Polaritons in a Trap*. Science **316**, 1007 (2007).
- [40] C. W. Lai, N. Y. Kim, S. Utsunomiya, G. Roumpos, H. Deng, M. D. Fraser, T. Byrnes, P. Recher, N. Kumada, T. Fujisawa and Y. Yamamoto. *Coherent zero-state and π -state in an exciton-polariton condensate array*. Nature **450**, 529 (2007).
- [41] M. Aßmann, F. Veit, M. Bayer, M. van der Poel and J. M. Hvam. *Higher-Order Photon Bunching in a Semiconductor Microcavity*. Science **325**, 297 (2009).

- [42] P. R. Eastham and P. B. Littlewood. *Bose condensation of cavity polaritons beyond the linear regime: The thermal equilibrium of a model microcavity*. Phys. Rev. B **64**, 235101 (2001).
- [43] A. J. Leggett, S. Chakravarty, A. T. Dorsey, M. P. A. Fisher, A. Garg and W. Zwerger. *Dynamics of the dissipative two-state system*. Rev. Mod. Phys. **59**, 1 (1987).
- [44] U. Volz and H. Schmoranz. *Precision lifetime measurements on alkali atoms and on helium by beam-gas-laser spectroscopy*. Physica Scripta Volume T **65**, 48 (1996).
- [45] J. Thiede, J. Distel, S. R. Greenfield and R. I. Epstein. *Cooling to 208 K by optical refrigeration*. Applied Physics Letters **86**, 154107 (2005).
- [46] H. Lorentz. *The absorption and emission lines of gaseous bodies*. K. Akad. Wet. (Amsterdam) **8**, 591 (1906).
- [47] A. A. Michelson. *On the Broadening of Spectral Lines*. The Astrophysical Journal **2**, 251 (1895).
- [48] S.-Y. Ch'en and M. Takeo. *Broadening and Shift of Spectral Lines Due to the Presence of Foreign Gases*. Rev. Mod. Phys. **29**, 20 (1957).
- [49] J. F. Kielkopf. *Measurement of the width, shift and asymmetry of the sodium D lines broadened by noble gases*. Journal of Physics B Atomic Molecular Physics **13**, 3813 (1980).
- [50] A. Royer. *Shift, width, and asymmetry of pressure-broadened spectral lines at intermediate densities*. Phys. Rev. A **22**, 1625 (1980).
- [51] J. H. Van Vleck and V. F. Weisskopf. *On the Shape of Collision-Broadened Lines*. Rev. Mod. Phys. **17**, 227 (1945).
- [52] R. G. Breene. *The Shift and Shape of Spectral Lines*. American Journal of Physics **31**, 224 (1963).
- [53] N. Allard and J. Kielkopf. *The effect of neutral nonresonant collisions on atomic spectral lines*. Rev. Mod. Phys. **54**, 1103 (1982).
- [54] M. Baranger. *General Impact Theory of Pressure Broadening*. Phys. Rev. **112**, 855 (1958).
- [55] F. Schuller and W. Behmenburg. *Perturbation of spectral lines by atomic interactions*. Phys. Rep. **12**, 273 (1974).
- [56] L. M. Biberman and G. É. Norman. *Reviews of Topical Problems: Continuous Spectra of Atomic Gases and Plasma*. Soviet Physics Uspekhi **10**, 52 (1967).
- [57] U. Fano. *Pressure Broadening as a Prototype of Relaxation*. Phys. Rev. **131**, 259 (1963).
- [58] J. Holtzmark. *Über die Verbreiterung von Spektrallinien*. Annalen der Physik **363**, 577 (1919).
- [59] H. A. Lorentz. *The width of spectral lines*. Koninklijke Nederlandse Akademie van Wetenschappen Proceedings Series B Physical Sciences **18**, 134 (1915).
- [60] P. W. Anderson. *Pressure Broadening in the Microwave and Infra-Red Regions*. Physical Review **76**, 647 (1949).
- [61] J. F. Kielkopf. *Predicted alkali collision broadening by noble gases based on semiempirical potentials*. Journal of Physics B Atomic Molecular Physics **9**, L547 (1976).
- [62] H. Kuhn. *Pressure Broadening of Spectral Lines and van der Waals Forces. I. Influence of Argon on the Mercury Resonance Line*. Royal Society of London Proceedings Series A **158**, 212 (1937).
- [63] H. Margenau. *Theory of Pressure Effects of Foreign Gases on Spectral Lines*. Phys. Rev. **48**, 755 (1935).
- [64] S. I. Yakovlenko. *Laser-induced radiative collisions*. Soviet Journal of Quantum Electronics **5**, 259 (1978).
- [65] R. Ciuryło and J. Szudy. *Line-mixing and collision-time asymmetry of spectral line shapes*. Phys. Rev. A **63**, 042714 (2001).

Literaturverzeichnis

- [66] R. E. M. Hedges, D. L. Drummond and A. Gallagher. *Extreme-Wing Line Broadening and Cs-Inert-Gas Potentials*. Phys. Rev. A **6**, 1519 (1972).
- [67] F. Stienkemeier, J. Higgins, C. Callegari, S. I. Kanorsky, W. E. Ernst and G. Scoles. *Spectroscopy of alkali atoms (Li, Na, K) attached to large helium clusters*. Z. Phys. D **38**, 253 (1996).
- [68] K. Alioua and M. Bouledroua. *Classical and quantal studies of the satellite features in the absorption spectra of lithium (2s-2p) perturbed by helium*. Phys. Rev. A **74**, 032711 (2006).
- [69] J. Pascale and J. Vandeplanque. *Excited molecular terms of the alkali-rare gas atom pairs*. J. Chem. Phys. **60**, 2278 (1974).
- [70] R. E. Walkup, A. Spielfiedel and D. E. Pritchard. *Observation of Non-Lorentzian Spectral Line Shapes in Na-Noble-Gas Systems*. Phys. Rev. Lett. **45**, 986 (1980).
- [71] A. Jabłoński. *General Theory of Pressure Broadening of Spectral Lines*. Phys. Rev. **68**, 78 (1945).
- [72] M. Kristensen, F. J. Blok, M. A. van Eijkelenborg, G. Nienhuis and J. P. Woerdman. *Onset of a collisional modification of the Faraday effect in a high-density atomic gas*. Phys. Rev. A **51**, 1085 (1995).
- [73] J. P. Woerdman, F. J. Blok, M. Kristensen and C. A. Schrama. *Multiperturber effects in the Faraday spectrum of Rb atoms immersed in a high-density Xe gas*. Phys. Rev. A **53**, 1183 (1996).
- [74] D. L. Drummond and A. Gallagher. *Potentials and continuum spectra of Rb-noble gas molecules*. The Journal of Chemical Physics **60**, 3426 (1974).
- [75] R. E. Hedges, D. L. Drummond and A. Gallagher. *Extreme-Wing Line Broadening and Cs-Inert-Gas Potentials*. Phys. Rev. A **6**, 1519 (1972).
- [76] S. H. Patil. *Adiabatic potentials for alkali-inert gas systems in the ground state*. J. Chem. Phys. **94**, 8089 (1991).
- [77] J. Szudy and W. E. Baylis. *Unified Franck-Condon treatment of pressure broadening of spectral lines*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer **15**, 641 (1975).
- [78] R. E. Walkup. *Exponentially decreasing collision-broadened line shapes*. Phys. Rev. A **25**, 596 (1982).
- [79] R. Walkup, B. Stewart and D. E. Pritchard. *Collisional line broadening due to van der Waals potentials*. Phys. Rev. A **29**, 169 (1984).
- [80] P. R. Berman and W. E. Lamb. *Influence of Resonant and Foreign Gas Collisions on Line Shapes*. Phys. Rev. **187**, 221 (1969).
- [81] A. Calisti, L. Godbert, R. Stamm and B. Talin. *Fast numerical methods for line shape studies in hot and dense plasmas*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer **51**, 59 (1994).
- [82] W. Behmenburg, A. Makonnen, A. Kaiser, F. Reberntrost, V. Staemmler, M. Jungen, G. Peach, A. Devdariani, S. Tserkovnyi, A. Zagrebin and E. Czuchaj. *Optical transitions in excited alkali + rare-gas collision molecules and related interatomic potentials: LiNe*. Journal of Physics B Atomic Molecular Physics **29**, 3891 (1996).
- [83] B. N. I. Al-Saqabi and G. Peach. *Unified theories of the pressure broadening and shift of spectral lines. II. Van der Waals interactions*. Journal of Physics B Atomic Molecular Physics **20**, 1175 (1987).
- [84] A. B. Pacheco, A. Reyes and D. A. Micha. *Light absorption during alkali atom-noble gas atom interactions at thermal energies: A quantum dynamics treatment*. J. Chem. Phys. **125**, 154313 (2006).
- [85] J. L. Carlsten, A. Szöke and M. G. Raymer. *Collisional redistribution and saturation of near-resonance scattered light*. Phys. Rev. A **15**, 1029 (1977).

- [86] H. M. Foley. *The Pressure Broadening of Spectral Lines*. Physical Review **69**, 616 (1946).
- [87] A. Gallagher and T. Holstein. *Collision-induced absorption in atomic electronic transitions*. Phys. Rev. A **16**, 2413 (1977).
- [88] T. Holstein. *Pressure Broadening of Spectral Lines*. Physical Review **79**, 744 (1950).
- [89] S. Yeh and P. R. Berman. *Theory of collisionally aided radiative excitation*. Phys. Rev. A **19**, 1106 (1979).
- [90] V. Weisskopf and E. Wigner. *Berechnung der natürlichen Linienbreite auf Grund der Diracschen Lichttheorie*. Zeitschrift für Physik **63**, 54 (1930).
- [91] V. F. I. Weisskopf. *The intensity and structure of spectral lines*. The Observatory **56**, 291 (1933).
- [92] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc and G. Grynberg. *Atom-Photon Interactions: Basic Processes and Applications*, pp. 678. (ISBN 0-471-29336-9. Wiley-VCH, 1998).
- [93] H. Metcalf. *Entropy exchange in laser cooling*. Phys. Rev. A **77**, 061401 (2008).
- [94] R. Karplus and J. Schwinger. *A Note on Saturation in Microwave Spectroscopy*. Phys. Rev. **73**, 1020 (1948).
- [95] J. Czechowska-Kryszk and S. Kryszewski. *Positivity of Bloch-Boltzmann equations: Degenerate case*. Phys. Rev. A **77**, 032715 (2008).
- [96] R. V. Markov, A. I. Plekhanov and A. M. Shalagin. *Population Inversion Induced by Collisions in a Two Level System under Nonresonance Optical Excitation*. Phys. Rev. Lett. **88**, 213601 (2002).
- [97] R. V. Markov, A. I. Parkhomenko, A. I. Plekhanov and A. M. Shalagin. *Lasing on the resonance transition in sodium atoms under nonresonant optical excitation*. Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics **109**, 177 (2009).
- [98] B. R. Mollow. *Elastic and inelastic collisional and radiative damping effects on saturated line shapes in the limit of well-separated spectral lines*. Phys. Rev. A **15**, 1023 (1977).
- [99] R. Buffa, S. Cavalieri and M. Matera. *Effect of a dressing radiation field on the laser-induced collisional energy-transfer line shape*. Optics Letters **17**, 1685 (1992).
- [100] Z. Konefal and M. Ignaciuk. *Observation of collision-induced amplified emission in Na-noble gas system*. Zeitschrift für Physik D Atoms Molecules Clusters **27**, 49 (1993).
- [101] S. Schmidt and G. Blatter. *Strong Coupling Theory for the Jaynes-Cummings-Hubbard Model*. Phys. Rev. Lett. **103**, 086403 (2009).
- [102] A. Ekers, M. Głódź, V. Grushevsky, J. Klavins and J. Szonert. *Energy transfer between the 2S and 2D states in alkalis: experiments and theory*. Canadian Journal of Physics **79**, 1039 (2001).
- [103] B. S. Ault, D. E. Tevault and L. Andrews. *Laser-induced emission evidence for alkali metal atom-noble gas molecules*. J. Chem. Phys. **66**, 1383 (1977).
- [104] P. F. Liao, J. E. Bjorkholm and P. R. Berman. *Study of collisional redistribution using two-photon absorption with a nearly-resonant intermediate state*. Phys. Rev. A **20**, 1489 (1979).
- [105] A. I. Parkhomenko and A. M. Shalagin. *Effect of collisions on the resonance fluorescence spectrum*. Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics **106**, 858 (2008).
- [106] S. I. Yakovlenko. *REVIEWS OF TOPICAL PROBLEMS: Absorption of powerful resonance radiation accompanying collisional line broadening*. Soviet Physics Uspekhi **25**, 216 (1982).
- [107] A. Agresti, P. R. Berman, A. Bambini and A. Stefanel. *Analysis of the far-wing behavior in the spectrum of the light-induced collisional-energy-transfer process*. Phys. Rev. A **38**, 2259 (1988).
- [108] H. G. C. Werij, J. E. M. Haverkort and J. P. Woerdman. *Study of the optical piston*. Phys. Rev. A **33**, 3270 (1986).

Literaturverzeichnis

- [109] F. Wittgreffe, J. L. C. van Saarloos, S. N. Atutov and E. R. Elie. *Light-induced diffusive pulling of rubidium in atomic and molecular buffer gases*. Journal of Physics B Atomic Molecular Physics **24**, 145 (1991).
- [110] J. E. M. Haverkort and J. P. Woerdman. *Rate Equations for Light-Induced Drift*. Annalen der Physik **502**, 519 (1990).
- [111] W. A. Hamel, J. E. M. Haverkort, H. G. C. Werij and J. P. Woerdman. *Calculation of alkali-noble gas diffusion cross sections relevant to light-induced drift*. Journal of Physics B Atomic Molecular Physics **19**, 4127 (1986).
- [112] N. G. C. Astrath, F. B. G. Astrath, J. Shen, J. Zhou, K. H. Michaelian, C. Fairbridge, L. C. Malacarne, P. R. B. Pedreira, A. N. Medina and M. L. Baesso. *Thermal-lens study of photochemical reaction kinetics*. Opt. Lett. **34**, 3460 (2009).
- [113] T. Holstein. *Imprisonment of Resonance Radiation in Gases*. Physical Review **72**, 1212 (1947).
- [114] A. R. Alves-Pereira, E. J. Nunes-Pereira, J. M. G. Martinho and M. N. Berberan-Santos. *Photonic superdiffusive motion in resonance line radiation trapping partial frequency redistribution effects*. The Journal of Chemical Physics **126**, 154505 (2007).
- [115] A. Molisch and B. P. Oehry. *Radiation Trapping in Atomic Vapours* (Oxford University Press, New York, 1998).
- [116] J. Schlejen, J. Post, J. Korving and J. P. Woerdman. *Cell for absorption and fluorescence spectroscopy of high-pressure and high-temperature sodium vapor*. Review of Scientific Instruments **58**, 768 (1987).
- [117] V. O. Lorenz, X. Dai, H. Green, T. R. Asnicar and S. T. Cundiff. *High-density, high-temperature alkali vapor cell*. Review of Scientific Instruments **79**, 123104 (2008).
- [118] J. A. Neuman, P. Wang and A. Gallagher. *Robust high-temperature sapphire cell for metal vapors*. Review of Scientific Instruments **66**, 3021 (1995).
- [119] P. Trevena, N. S. Stoloff and M. G. Nicholas. *Further studies of the effect of rubidium on the mechanical properties of an austenitic steel*. Journal of Materials Science **22**, 2948 (1987).
- [120] P. W. Bridgman. *Recent Work in the Field of High Pressures*. Rev. Mod. Phys. **18**, 1 (1946).
- [121] G. Kienast. *Das Verhalten der Alkalimetalle zu Kupfer, Silber und Gold Professor Egon Wiberg zum 60. Geburtstag gewidmet*. Zeitschrift für anorganische und allgemeine Chemie **310**, 144 (1961).
- [122] A. N. Nesmeyanow. *Vapor Pressure of the Chemical Elements* (Elsevier, Amsterdam, 1963).
- [123] A. Tam, G. Moe, W. Park and W. Happer. *Strong New Emission Bands in Alkali-Noble-Gas Systems*. Phys. Rev. Lett. **35**, 85 (1975).
- [124] M. V. Romalis, E. Miron and G. D. Cates. *Pressure broadening of Rb D₁ and D₂ lines by ³He, ⁴He, N₂, and Xe: Line cores and near wings*. Phys. Rev. A **56**, 4569 (1997).
- [125] C. Ottinger, R. Scheps, G. W. York and A. Gallagher. *Broadening of the Rb resonance lines by the noble gases*. Phys. Rev. A **11**, 1815 (1975).
- [126] E. Speller, B. Staudenmayer and V. Kempter. *Quenching cross sections for alkali-inert gas collisions*. Z. Phys. A **291**, 311 (1979).
- [127] K. Hepp and E. H. Lieb. *On the superradiant phase transition for molecules in a quantized radiation field: the dicke maser model*. Annals of Physics **76**, 360 (1973).
- [128] A. Griffin, D. W. Snoke and S. Stringari (eds.). *Bose-Einstein Condensation* (Cambridge University Press, Cambridge, 1995).
- [129] F. Dalfovo, S. Giorgini, L. P. Pitaevskii and S. Stringari. *Theory of Bose-Einstein condensation in trapped gases*. Rev. Mod. Phys. **71**, 463 (1999).

- [130] H. Cao, S. Pau, J. M. Jacobson, G. Bjöautrk, Y. Yamamoto and A. Imamoglu. *Transition from a microcavity exciton polariton to a photon laser*. Phys. Rev. A **55**, 4632 (1997).
- [131] A. D. Greentree, C. Tahan, J. H. Cole and L. C. L. Hollenberg. *Quantum phase transitions of light*. Nature Physics **2**, 856 (2006).
- [132] M. I. Makin, J. H. Cole, C. Tahan, L. C. L. Hollenberg and A. D. Greentree. *Quantum phase transitions in photonic cavities with two-level systems*. Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics) **77**, 053819 (2008).
- [133] A. Alodjants, S. Arakelian, S. Bagayev, V. Egorov and A. Leksin. *Josephson dynamics for coupled polariton modes under the atom-field interaction in the cavity*. Appl. Phys. B **89**, 81 (2007).
- [134] C. Bolkart, R. Weiss, D. Rostohar and M. Weitz. *Coherent and BCS-Type Quantum States of Dark Polaritons*. Las. Phys. **15**, 3 (2005).
- [135] L. A. Amarante Ribeiro. *Effect of thermal fluctuations in the resonance fluorescence of a two-level system*. Phys. Rev. A **36**, 2676 (1987).
- [136] F. Capozzi, M. Belsley and P. Ewart. *Collisional-redistribution measurements including the effect of velocity*. Phys. Rev. A **44**, 6136 (1991).
- [137] J. D. Joannopoulos, P. R. Villeneuve and S. Fan. *Photonic crystals: putting a new twist on light*. Nature **386**, 143 (1997).
- [138] F. Benabid, F. Couny, J. C. Knight, T. A. Birks and P. S. J. Russell. *Compact, stable and efficient all-fibre gas cells using hollow-core photonic crystal fibres*. Nature **434**, 488 (2005).
- [139] M.-L. Hu, C.-Y. Wang, Y.-J. Song, Y.-F. Li, L. Chai, E. E. Serebryannikov and A. M. Zheltikov. *A hollow beam from a holey fiber*. Optics Express **14**, 4128 (2006).
- [140] M. Bajcsy, S. Hofferberth, V. Balic, T. Peyronel, M. Hafezi, A. S. Zibrov, V. Vuletic and M. D. Lukin. *Efficient All-Optical Switching Using Slow Light within a Hollow Fiber*. Phys. Rev. Lett. **102**, 203902 (2009).
- [141] D. Faccio, A. Grün, P. K. Bates, O. Chalus and J. Biegert. *Optical amplification in the near-infrared in gas-filled hollow-core fibers*. Optics Letters **34**, 2918 (2009).
- [142] A. A. Solovov, Y. Mei, E. B. Ureca, G. Huang and O. G. Schmidt. *Catalytic Microtubular Jet Engines Self-Propelled by Accumulated Gas Bubbles*. Small **5**, 1688 (2009).
- [143] E. J. Smith, Z. Liu, Y. Mei and O. G. Schmidt. *Combined Surface Plasmon and Classical Waveguiding through Metamaterial Fiber Design*. Nano Letters 1530–6984 (2009).
- [144] J. Takahara, S. Yamagishi, H. Taki, A. Morimoto and T. Kobayashi. *Guiding of a one-dimensional optical beam with nanometer diameter*. Optics Letters **22**, 475 (1997).
- [145] J. Rybczynski, K. Kempa, A. Herczynski, Y. Wang, M. J. Naughton, Z. F. Ren, Z. P. Huang, D. Cai and M. Giersig. *Subwavelength waveguide for visible light*. Applied Physics Letters **90**, 021104 (2007).
- [146] P. R. Berman and P. W. Milonni. *Microscopic Theory of Modified Spontaneous Emission in a Dielectric*. Phys. Rev. Lett. **92**, 053601 (2004).
- [147] H. Fu and P. R. Berman. *Microscopic theory of spontaneous decay in a dielectric*. Phys. Rev. A **72**, 022104 (2005).
- [148] I. Carusotto, D. Gerace, H. E. Tureci, S. de Liberato, C. Ciuti and A. Imamoglu. *Fermionized Photons in an Array of Driven Dissipative Nonlinear Cavities*. Phys. Rev. Lett. **103**, 033601 (2009).
- [149] A. V. Chumak, G. A. Melkov, V. E. Demidov, O. Dzyapko, V. L. Safonov and S. O. Demokritov. *Bose-Einstein Condensation of Magnons under Incoherent Pumping*. Phys. Rev. Lett. **102**, 187205 (2009).

Literaturverzeichnis

- [150] V. E. Demidov, O. Dzyapko, S. O. Demokritov, G. A. Melkov and A. N. Slavin. *Observation of Spontaneous Coherence in Bose-Einstein Condensate of Magnons*. Phys. Rev. Lett. **100**, 047205 (2008).
- [151] J. M. Blatt, K. W. Böer and W. Brandt. *Bose-Einstein Condensation of Excitons*. Physical Review **126**, 1691 (1962).
- [152] H. Deng, G. S. Solomon, R. Hey, K. H. Ploog and Y. Yamamoto. *Spatial Coherence of a Polariton Condensate*. Phys. Rev. Lett. **99**, 126403 (2007).
- [153] H. Deng, G. Weihs, D. Snoke, J. Bloch and Y. Yamamoto. *Polariton lasing vs. photon lasing in a semiconductor microcavity*. Proceedings of the National Academy of Science **100**, 15318 (2003).
- [154] H. Deng, D. Press, S. Götzinger, G. S. Solomon, R. Hey, K. H. Ploog and Y. Yamamoto. *Quantum Degenerate Exciton-Polaritons in Thermal Equilibrium*. Phys. Rev. Lett. **97**, 146402 (2006).
- [155] X. Zhu, P. B. Littlewood, M. S. Hybertsen and T. M. Rice. *Exciton Condensate in Semiconductor Quantum Well Structures*. Phys. Rev. Lett. **74**, 1633 (1995).
- [156] C. Zhang and Y. N. Joglekar. *Excitonic condensation of massless fermions in graphene bilayers*. Phys. Rev. B **77**, 233405 (2008).
- [157] J. Klärs, F. Vewinger and M. Weitz. *Thermalization of a two-dimensional Photon-Gas*. submitted (2010).
- [158] R. Y. Chiao and J. Boyce. *Bogoliubov dispersion relation and the possibility of superfluidity for weakly interacting photons in a two-dimensional photon fluid*. Phys. Rev. A **60**, 4114 (1999).
- [159] I. Hubeny and J. Cooper. *Redistribution of radiation in the presence of velocity-changing collisions*. Astrophysical Journal **305**, 852 (1986).
- [160] M. G. Raymer, J. L. Carlsten and G. Pichler. *Comparison of collisional redistribution and emission line shapes*. Journal of Physics B Atomic Molecular Physics **12**, L119 (1979).
- [161] C. Adams. *Laser cooling and trapping of neutral atoms*. Progress in Quantum Electronics **21**, 1 (1997).
- [162] S. Stenholm. *The semiclassical theory of laser cooling*. Reviews of Modern Physics **58**, 699 (1986).
- [163] R. W. Falcone, W. R. Green, J. C. White, J. F. Young and S. E. Harris. *Observation of laser-induced inelastic collisions*. Phys. Rev. A **15**, 1333 (1977).
- [164] J. Kestin, R. Paul, A. A. Clifford and W. A. Wakeham. *Absolute determination of the thermal conductivity of the noble gases at room temperature up to 35 MPa*. Physica A: Statistical and Theoretical Physics **100**, 349 (1980).
- [165] B. M. Rosenbaum, S. Oshen and G. Thodos. *Thermal Conductivity of Argon in the Dense Gaseous and Liquid Regions*. Journal of Chemical Physics **44**, 2831 (1966).
- [166] J. P. Tournier and M. S. El-Genk. *Properties of noble gases and binary mixtures for closed Brayton Cycle applications*. Energy Conversion and Management **49**, 469 (2008). Space Nuclear Power and Propulsion.
- [167] A. C. Boccara, D. Fournier, W. Jackson and N. M. Amer. *Sensitive photothermal deflection technique for measuring absorption in optically thin media*. Optics Letters **5**, 377 (1980).
- [168] J. D. Spear, R. J. Silva, G. L. Klunder and R. E. Russo. *Collinear photothermal deflection spectroscopy of liquid samples at varying temperature*. Applied Spectroscopy **47**, 1580 (1993).
- [169] J. R. Whinnery. *Laser measurement of optical absorption in liquids*. Accounts of Chemical Research **7**, 225 (1974).
- [170] M. Born and E. Wolf. *Principles of optics. Electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light* (Oxford: Pergamon Press, |c1965, 3rd (revised) ed., 1965).

- [171] D. Kivelson, S. A. Kivelson, X. Zhao, Z. Nussinov and G. Tarjus. *A thermodynamic theory of supercooled liquids*. Physica A Statistical Mechanics and its Applications **219**, 27 (1995).
- [172] A. Cavagna. *Supercooled liquids for pedestrians*. Physics Reports **476**, 51 (2009).
- [173] A. Fladerer and R. Strey. *Homogeneous nucleation and droplet growth in supersaturated argon vapor: The cryogenic nucleation pulse chamber*. Journal of Chemical Physics **124**, 164710 (2006).
- [174] B. Lindinger, R. Mettin, R. Chow and W. Lauterborn. *Ice Crystallization Induced by Optical Breakdown*. Phys. Rev. Lett. **99**, 045701 (2007).
- [175] V. I. Kalikmanov, J. Wölk and T. Kraska. *Argon nucleation: Bringing together theory, simulations, and experiment*. Journal of Chemical Physics **128**, 124506 (2008).
- [176] J. T. Bahns, W. C. Stwalley and P. L. Gould. *Laser cooling of molecules: A sequential scheme for rotation, translation, and vibration*. J. Chem. Phys. **104**, 9689 (1996).
- [177] J. I. Cirac and M. Lewenstein. *Cooling of atoms in external fields*. Phys. Rev. A **52**, 4737 (1995).
- [178] M. O. Scully, M. S. Zubairy, G. S. Agarwal and H. Walther. *Extracting Work from a Single Heat Bath via Vanishing Quantum Coherence*. Science **299**, 862 (2003).
- [179] M. Carleer, A. Jenouvrier, A. Vandaele, P. F. Bernath, M. F. Mérienne, R. Colin, N. F. Zobov, O. L. Polyansky, J. Tennyson and V. A. Savin. *The near infrared, visible, and near ultraviolet overtone spectrum of water*. Journal of Chemical Physics **111**, 2444 (1999).
- [180] R. Frey, F. Micheron and J. P. Pocholle. *Comparison of Peltier and anti-Stokes optical coolings*. Journal of Applied Physics **87**, 4489 (2000).
- [181] J. Parker, D. Mar, S. V. der Porten, J. Hankinson, K. Byram, C. Lee, M. K. Mayeda, R. Haskell, Q. Yang, S. Greenfield and R. Epstein. *Thermal links for the implementation of an optical refrigerator*. Journal of Applied Physics **105**, 013116 (2009).
- [182] S. R. Bowman. *Lasers without internal heat generation*. IEEE Journal of Quantum Electronics **35**, 115 (1999).
- [183] E. A. Cornell and M. J. Renn. *Optical cooling of solids*. Patent United States 5615558 (1997).
- [184] M. E. Carrera-Patino and R. S. Berry. *Entropy production in stopping atoms with laser light*. Phys. Rev. A **34**, 4728 (1986).
- [185] X. L. Ruan, S. C. Rand and M. Kaviany. *Entropy and efficiency in laser cooling of solids*. Phys. Rev. B **75**, 214304 (2007).
- [186] C. E. Mungan. *Radiation thermodynamics with applications to lasing and fluorescent cooling*. American Journal of Physics **73**, 315 (2005).
- [187] R. I. Epstein and M. Sheik-Bahae. *Optical Refrigeration* (ISBN: 978-3-527-40876-4. Wiley-VCH, 2009).
- [188] M. A. Weinstein. *Thermodynamic limitation on the conversion of heat into light*. Journal of the Optical Society of America (1917-1983) **50**, 597 (1960).
- [189] P. T. Landsberg and G. Tonge. *Thermodynamic energy conversion efficiencies*. Journal of Applied Physics **51**, 1 (1980).
- [190] G. Laufer. *Work and heat in the light of (thermal and laser) light*. American Journal of Physics **51**, 42 (1983).
- [191] R. V. Baltz. *Thermodynamic limitation on the conversion of heat into coherent radiation*. Zeitschrift für Physik **238**, 159 (1970).
- [192] J. E. Geusic, E. O. Schulz-Dubios and H. E. Scovil. *Quantum Equivalent of the Carnot Cycle*. Physical Review **156**, 343 (1967).

Literaturverzeichnis

Dann schlug eine Tür heftig ins Schloss, ein Riegel klirrte, (...) und in der Luft lag das Schweigen eines Punktes, der an der richtigen Stelle hinter einen Satz gesetzt worden ist.

Robert Musil, *Der Mann ohne Eigenschaften*.