

Experimente zur stoßinduzierten Redistributionslaserkühlung dichter atomarer Alkali-Edelgas-Mischungen und Simulationen der zu erwartenden Temperaturverteilung

Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades (Dr. rer. nat.)

der

Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der

Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

vorgelegt von

Anne Saß

aus

Göttingen

Bonn, Juni 2014

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

1. Gutachter: Prof. Dr. M. Weitz
2. Gutachter: Prof. Dr. D. Meschede

Tag der Promotion: 20. August 2014
Erscheinungsjahr: 2014

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

Zusammenfassung

Gegenstand dieser Arbeit sind Experimente zur stoßinduzierten Redistributionskühlung von dichten Gasmischungen. Der Fokus liegt hier auf Experimenten mit Rubidiumatomen in Argon-Puffergas bei hohen Drücken bis zu 230 bar, sowie hohen anfänglichen Gastemperaturen von bis zu 730 K. Für diese Gasmischungen wird eine punktuelle Kühlung von mehreren Hundert Kelvin erreicht.

Bei Betrachtung der Spektren der redistribuierten Fluoreszenz lassen sich die Effizienz dieses Verfahrens sowie die erreichbare Kühlleistung abschätzen; die Kühlleistung liegt hier mehrere Größenordnungen über der in Experimenten zur Dopplerkühlung dünner atomarer Gase beobachtbaren Werte. Die Effizienz des Prozesses liegt bei den hier durchgeführten Experimenten im einstelligen Prozentbereich.

Die optischen Übergänge der Alkaliatome werden durch die hohen Puffergasdrücke stark verbreitert, die Linienbreiten liegen im Bereich der thermischen Energie, betrachtet in Frequenzeinheiten, $k_B T / \hbar$. Im Bild der Alkali-Edelgas-Quasimoleküle lässt sich das Kühlprinzip geeignet beschreiben. Bei Einstrahlung von rot zu den Alkaliresonanzen verstimmt Licht wird die zur Anregung fehlende Energie durch Stöße des Alkaliatoms mit umgebenden Puffergasatomen ausgeglichen. Nach dem Stoß entfernen sich die beiden Kollisionspartner voneinander, und der angeregte Zustand zerfällt nach seiner natürlichen Lebensdauer. Die Energiedifferenz zwischen Grund- und angeregtem Zustand wird als Fluoreszenzphoton emittiert, dessen Energie im Mittel höher ist als die des zuvor absorbierten Photons: seine Frequenz liegt näher an den Frequenzen des Übergangs eines isoliert betrachteten Alkaliatoms. Die Wärmemenge in der Größenordnung $k_B T$ wird aus der Gasmischung entfernt, es tritt eine lokale Kühlung des Gases auf.

Messungen der thermischen Ablenkungsspektroskopie erlauben eine Berechnung der erzielten Temperaturänderung. Bei diesem Verfahren wird die durch die Temperaturänderung hervorgerufene Dichteänderung, die einer Änderung des Brechungsindex entspricht, durch einen nicht mit der Gasmischung resonanten Tasterstrahl untersucht. Dessen Ausbreitungsrichtung ändert sich infolge der Propagation durch die gekühlte Region der Gasmischung. Die Verteilung der Ablenkungswinkel als Funktion des Abstands zur Position des Kühllasers ermöglicht eine Berechnung der relativen Temperaturänderung im Gas.

Auch wird die Laserkühlung dieser Gasmischungen im Rahmen dieser Arbeit parameterabhängig hinsichtlich der eingestrahlten Leistung, sowie der Wellenlänge des Kühllasers, und des Puffergasdrucks experimentell untersucht. Daran anschließend wird die Verwendung der beiden schwereren Edelgase Krypton und Xenon und ihre Eignung als Puffergase thematisiert, da aufgrund ihrer geringeren Wärmeleitfähigkeit verglichen mit der von Argon, höhere relative Temperaturänderungen erwartet werden.

Die experimentellen Ergebnisse werden durch Simulationen zur erwarteten Temperaturverteilung und die daraus erfolgende Berechnung der Messgröße, der erwarteten Ablenkungswinkel, gestützt.

Abschließend erfolgt eine Darstellung der im Rahmen dieser Arbeit erstmalig realisierten Kühlung von Kaliumatomen in dichtem Argongas, sowie ein Ausblick über mögliche zukünftige Ansätze und Ziele von Experimenten zur Redistributionslaserkühlung.

Teile dieser Arbeit sind in folgenden Artikeln veröffentlicht worden:

1. A. Saß, U. Vogl, und M. Weitz, Laser cooling of a potassium-argon mixture using collisional redistribution of radiation. *Appl. Phys. B*, **102**:503, 2011.
2. U. Vogl, A. Saß, S. Haßelmann und M. Weitz, Collisional Redistribution Laser Cooling of a High Pressure Atomic Gas. *J. Mod. Opt.*, **58**:1300, 2011.
3. U. Vogl, A. Saß, F. Vewinger, M. Weitz, A. Solovev, Y. Mei, und O. G. Schmidt, Light confinement by a cylindrical metallic waveguide in a dense buffer-gas environment. *Phys. Rev. A*, **83**:053403, 2011.
4. U. Vogl, A. Saß, und M. Weitz, Laser cooling of dense rubidium-noble gas mixtures via collisional redistribution of radiation, in *Laser Refrigeration of Solids V*, R. I. Epstein and M. Sheik-Bahae, eds., *Proc. SPIE* **8275**, 2012.
5. P. Simon, P. Moroshkin, L. Weller, A. Saß, und M. Weitz, Towards redistribution laser cooling of molecular gases: production of candidate molecules SrH by laser ablation, in *Laser Refrigeration of Solids VI*, R. I. Epstein, D. E. Seletskiy, and M. Sheik-Bahae, eds., *Proc. SPIE* **8638**, 2013.
6. P. Moroshkin, L. Weller, A. Saß, J. Klaers, und M. Weitz, Kennard-Stepanov relation connecting absorption and emission spectra in an atomic gas. *Phys. Rev. Lett.*, **113**:063002, 2014.
7. A. Saß, R. Forge, S. Christopoulos, K. Knicker, P. Moroshkin, und M. Weitz, Laser cooling of dense atomic gases by collisional redistribution of radiation and spectroscopy of molecular dimers in a dense buffer gas environment, in *Laser Refrigeration of Solids VII*, R. I. Epstein, D. E. Seletskiy, and M. Sheik-Bahae, eds., *Proc. SPIE* **9000**, 2014.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Systemcharakteristika dichter atomarer Alkali-Edelgasmischungen	5
2.2	Spektrallinienformen und Verbreiterungsmechanismen	6
2.2.1	Stoßverbreiterung von Spektrallinien: Impakt-Näherung	7
2.2.2	Stoßverbreiterung von Spektrallinien: Quasi-statische Näherung	8
2.2.3	Verallgemeinerte Theorie der Stoßverbreiterung	10
2.2.4	Sättigungsverbreiterung	12
2.3	Atom-Licht-Wechselwirkung: Dichtematrixformalismus & optische Blochgleichungen	14
2.4	Kollisionsinduzierte Redistribution von Strahlung	15
2.5	Prinzip der Redistributionslaserkühlung	16
2.6	Wärmetransportgleichung	18
3	Experimenteller Aufbau und Messmethodik	21
3.1	Die Hochdrucksichtzellen	21
3.1.1	Selbst konstruierte Zellen	21
3.1.2	Kommerzielle Sichtzellen mit einer optischen Achse	23
3.1.3	Kommerzielle Sichtzelle mit zwei optischen Achsen	25
3.1.4	Elektrische Heizung der Zellen	27
3.2	Das Lasersystem	27
3.2.1	Titan:Saphir-Laser	27
3.2.2	Diodenlaser	27
3.3	Fluoreszenzspektroskopie	28
3.4	Thermische Ablenkungsspektroskopie	29
4	Experimente zur Laserkühlung dichter atomarer Gase	35
4.1	Messungen zur Fluoreszenzredistribution	35
4.2	Kühllexperimente mit dichten Rubidium-Edelgas-Mischungen	39
4.2.1	Kühlung dichter Rubidium-Argon-Mischungen	39
4.2.2	Experimente mit den schwereren Puffergasen Krypton & Xenon	43
4.2.3	Messungen zur Parameterabhängigkeit des Kühleffekts	44
4.2.4	Experimente mit einem Diodenlaser hoher Ausgangsleistung als Kühllaser	51
4.3	Laserkühlung dichter Kalium-Argon-Mischungen	52
4.4	Laserkühlung einer dichten Caesium-Argon-Mischung	54
5	Simulationen zur Temperaturverteilung in dichten Gasen	57
5.1	Simulationen zur erwarteten Temperaturverteilung	57
5.2	Winkelablenkung aus simulierten Temperaturprofilen	61
5.3	Simulationen zu Rubidium-Argon-Mischungen	61
5.3.1	Simulationen für Rubidiumatome in 160 bar Argon-Puffergas	62
5.3.2	Simulationen für Rubidiumatome in 220 bar Argon-Puffergas	66
6	Ausblick	73

A Experimente zur Redistribution in molekularen Gasen	77
A.1 Ansatz zur Kühlung dichter Alkalidimer-Edelgas-Mischungen	77
A.2 Experimente zur Redistribution an Wasserdampf	78
B Ablenkwinkelberechnung aus simuliertem Temperaturprofil	81
C Berechnung der Skalierungsexponenten für die Simulationen zur temperaturabhängigen Absorption	83
D Simulationen für Rubidiumatome in 60 bar Argon-Puffergas	85
Literaturverzeichnis	87

1 Einleitung

Die Idee, Licht zur Kühlung von Materie zu verwenden, wurde erstmalig von P. Pringsheim 1929 formuliert [1] und ist damit deutlich älter als die erste experimentelle Realisierung des Lasers [2], die wiederum den Grundstein für Experimente zu verschiedenen Techniken der Laserkühlung legte. Die wohl bekannteste Technik ist die der Dopplerkühlung [3–5], experimentell erstmals 1985 realisiert [6] und wesentlich für Experimente mit dünnen atomaren Gasen für das Erreichen von Bose-Einstein-Kondensationen zahlreicher Spezies in den letzten Jahren seit 1995 [7, 8], sowie in neueren Experimenten für erstmalige Laserkühlung einer molekularen Spezies [9]. Dieses Verfahren basiert darauf, dass Atome mit einem rot-verstimmten Laser durch die Dopplerverschiebung aufgrund ihrer Eigengeschwindigkeit resonant angeregt werden. Eine Abbremsung erfolgt durch die Aufnahme des Photonenimpulses bei Absorption und anschließende, isotrope Emission von Fluoreszenz, sodass im Mittel netto kein Impulsübertrag erfolgt und die kinetische Energie verringert wird.

Ein anderer Ansatz besteht in der Anti-Stokes-Kühlung in Mehr-Niveau-Systemen, beispielsweise der von Festkörpern, insofern das jeweilige System hinreichend separierte Energiebänder aufweist. Der erste Vorschlag zur experimentellen Fluoreszenzkühlung stammt aus dem Jahr 1950 [10]. Bei Einstrahlen eines Strahlungsfelds erfolgt eine Absorption der Photonen, und damit eine Anregung aus den energetisch-höchsten Zuständen des niederenergetischeren Bandes in die niedrigeren Niveaus des energetisch höheren Bandes. Die höheren Niveaus dieses Bandes werden im Anschluss daran durch thermische Anregung besetzt, bevor eine Relaxation des Systems in das energetisch niedrigere Band unter Emission von Photonen erfolgt. Die Energie der emittierten Photonen ist im Mittel höher als die der zuvor absorbierten, dieser Energieverlust führt daher netto zu einer Kühlung des betrachteten Systems. Erstmals experimentell realisiert wurde diese Technik 1981 an CO_2 sowie an CO_2 -Xenon-Mischungen [11], in jüngster Vergangenheit zeigten sich Experimente zur Kühlung von u.a. mit Ytterbium dotierten Schwermetallfluoridgläsern erfolgreich [12, 13].

Im Rahmen dieser Arbeit wird das Verfahren der stoßinduzierten Redistributionslaserkühlung in dichten Gasmischungen untersucht. Redistribution von Fluoreszenz ist in Experimenten mit in magnetooptischen Fallen gefangenen ultrakalten Atomen als hauptsächlicher Grund für Fallenverluste bekannt [5]. Im Bereich von atomaren Kollisionen bei Raumtemperatur gilt Fluoreszenzredistribution als natürliche Konsequenz von Linienverbreiterungseffekten durch kollisionsunterstützte Anregung („collisional aided excitation“) [14]. Theoretisch wurde das hier untersuchte Kühlverfahren in einer ersten Idee von Berman und Stenholm 1978 [15] formuliert: Durch kollisionsunterstützte Anregung müsse es möglich sein, eine Kühlung oder Aufheizung des betrachteten Zwei-Niveau-Systems zu erreichen. Experimentell wurde diese Technik erstmals für Rubidiumatome umgeben von Argon bei 230 bar realisiert [16, 17], bei denen eine relative Kühlung um 66 K erreicht wurde, die Experimente in dieser Arbeit schließen daran an.

In geeigneten Rezipienten werden die optischen Übergänge der Alkaliatome durch Anwesenheit der hohen Edelgasdrücke stark verbreitert. Die Linienbreiten und die thermische Energie in Frequenzheiten liegen dann in der gleichen Größenordnung, $k_B T / \hbar$. Um das Kühlprinzip für dieses System geeignet zu beschreiben, bietet sich das Bild von Alkali-Edelgas-Quasimolekülen an. Wird rot zu den Alkaliresonanzen verstimmtes Licht in die mit der Gasmischung gefüllte Hochdrucksichtzelle eingestrahlt, kann die für die Anregung des Alkaliatoms fehlende Energie durch Stöße mit umgebenden Puffergasatomen erreicht werden. Nach der jeweiligen Kollision entfernen sich die beiden Stoßpartner wieder von einander, der angeregte Zustand zerfällt innerhalb sei-

ner natürlichen Lebensdauer unter Emission eines Photons. Die Energie des Fluoreszenzphotons ist im Mittel höher als die Energie des eingestrahlt und zuvor absorbierten Photons, somit entfernt das Photon die Differenz aus dem System. Die mittlere Frequenz des beobachteten Fluoreszenzspektrums liegt deutlich näher an den Übergangsfrequenzen des isoliert betrachteten Alkaliatoms. Es tritt eine lokale Kühlung des Gases an der Stelle des eingestrahlt Lasers auf.

Im Folgenden wird nach einigen theoretischer Grundlagen (Kapitel 2) zur Druckverbreiterung von Spektrallinien, zum betrachteten Kühlprozess, sowie zum Wärmetransport in Gasen der experimentelle Aufbau in Kapitel 3 skizziert. Ein besonderes Augenmerk liegt hierbei auf den verwendeten, in ihrem Aufbau und dem jeweiligen Dichtungsprinzip unterschiedlichen Hochdrucksichtzellen. Die Technik der thermischen Ablenkungsspektroskopie, die wesentlich zur Bestimmung der erzielten relativen Temperaturänderung in den Gasmischungen dient, wird im Anschluss daran erläutert.

Kapitel 4 behandelt die im Rahmen dieser Arbeit erzielten experimentellen Ergebnisse. Die notwendige Voraussetzung für die Anwendung des Kühlprinzips, die im Fluoreszenzspektrum beobachtbare Redistribution von Strahlung, wird spektral untersucht und ermöglicht so die Abschätzung von Kühlleistung und Effizienz der Kühlexperimente.

Der Schwerpunkt liegt auf Experimenten mit Rubidium als optisch anregbarer Spezies; hier werden insbesondere zwei Ergebnisse vorgestellt, die mit unterschiedlichen eingestrahlt Intensitäten bei deutlich unterschiedlichen optischen Dichten der Gasmischungen durchgeführt wurden. Die auf einigen vereinfachenden Annahmen basierende Auswertung dieser Messdaten deutet auf eine Kühlung in der Größenordnung mehrerer Hundert Kelvin in den Bereich des absoluten Temperaturnullpunkts bei einer anfänglichen Temperatur der Gasmischung von 680 K hin. Im Anschluss daran wird die beobachtete Kühlung parameterabhängig unter Variation des Puffergasdrucks, der eingestrahlt Laserwellenlänge, sowie der Kühllaserintensität untersucht. Erste Überlegungen deuten auf einen optimalen Parametersatz für zukünftige Experimente hin. Erste Messungen mit den schwereren Edelgasen Krypton und Xenon als Puffergase stellen eine Variation der Wärmeleitfähigkeit der Gasmischungen dar; dies bietet sich aufgrund der inversen Proportionalität zwischen Temperaturänderung und Wärmeleitfähigkeit anhand der Wärmetransportgleichung an.

Der Einstieg in die Experimente im Rahmen dieser Arbeit lag bei der erstmalig realisierten Kühlung dichter, atomarer Kalium-Argon-Mischungen, die hier erzielten Ergebnisse, sowie ein kurzer Abriss anderer in Vergangenheit realisierter Ansätze beschließen Kapitel 4.

Die Auswertung der mittels thermischer Ablenkungsspektroskopie gewonnenen Messdaten erfolgt unter mehreren Annahmen, u.a. hinsichtlich einer konstanten Absorption entlang der Ausbreitungsrichtung des Kühllasers. Folglich bietet es sich an, mithilfe von Simulationen des unter experimentellen Bedingungen zu erwartenden Temperaturprofils und einer daran anschließenden Berechnung der daraus resultierenden Ablenkwinkel einen Vergleich zu den gemessenen Ablenkwinkel, sowie den daraus berechneten relativen Temperaturänderungen zu ziehen. Dies ist Gegenstand von Kapitel 5. Es zeigt sich, dass die Temperaturänderung, die im Rahmen der Auswertung der experimentellen Daten gewonnen wird, umso deutlicher von der simulierten Temperaturänderung abweicht, je höher die (gemessene) Absorption in der Gasmischung ist. Die maximale Temperaturänderung, die in den zuvor vorgestellten Experimenten erreicht wurde, liegt gemäß der Simulationen dazu in der Größenordnung einiger Hundert Kelvin, es wird eine lokale Endtemperatur erreicht, die knapp über Raumtemperatur liegt.

Zukünftig sind Experimente denkbar, in denen das Verfahren der stoßinduzierten Redistributivlaserkühlung auf dichte, molekulare Gasmischungen angewendet wird. Hier wurden in den vergangenen Jahren Experimente mit zwei unterschiedlichen Ansätzen begonnen, die vielversprechend erscheinen: die Erzeugung zweiatomiger Moleküle durch Laserablation, sowie der an die hier beschriebenen Experimente angelehnte Ansatz, die in einer heißen Alkali-Edelgasmischung natürlich vorkommenden zweiatomigen Alkalimoleküle hinsichtlich einer potentiellen Fluoreszenzredistribution als Eignung für eine Laserkühlung zu untersuchen.

Im Hinblick auf das System dichter atomarer Gasmischungen sind sowohl Modifikationen hinsichtlich der Messmethodik, als auch der Rezipienten denkbar. Ziel könnte es sein, eine Alkali-Xenon-Gasmischung unterhalb des kritischen Punktes zu kühlen, und eine Kondensation des Edelgases unter der alleinigen Verwendung von Laserkühlverfahren zu beobachten. Dies ist Gegenstand des diese Arbeit beschließenden Kapitels 6.

2 Theoretische Grundlagen

Die Experimente zur Redistributionslaserkühlung im Rahmen dieser Arbeit werden auf Grundlage dichter atomarer Alkali-Edelgasmischungen durchgeführt. Im Folgenden sollen daher einige Systemcharakteristika dieser Mischungen (Abschnitt 2.1) und sich daraus ergebene Eigenschaften, beispielsweise hinsichtlich der dominierenden Verbreiterungsmechanismen der Spektrallinien (Abschnitt 2.2) benannt und diskutiert werden. Im Abschnitt 2.3 erfolgt mittels des Dichtematrixformalismus, sowie der optischen Blochgleichungen eine Abschätzung hinsichtlich der Sättigung der betrachteten Übergänge anhand der eingestrahlten Laserintensitäten, um die Verbreiterungsmechanismen der beobachteten Fluoreszenzspektren, die in Abschnitt 4.1 gezeigt werden, identifizieren zu können.

Daran anschließend erfolgt eine Erläuterung des Prinzips der Fluoreszenzredistribution (Abschnitt 2.4), sowie des Prinzips der Redistributionslaserkühlung (Abschnitt 2.5) anhand der Potentialkurven eines Alkali-Edelgas-Quasimoleküls, sowie weitergehende Überlegungen zum Wärmetransport in den betrachteten Gasmischungen (Abschnitt 2.6), als Grundlage für die in Kapitel 5 vorgestellten Simulationen zu den durchgeführten Experimenten.

2.1 Systemcharakteristika dichter atomarer Alkali-Edelgasmischungen

Der Schwerpunkt dieser Arbeit liegt auf Experimenten mit dichten Rubidium-Argon-Mischungen.¹ Ebenfalls wurde im Rahmen dieser Arbeit erstmalig die Kühlung einer dichten Kalium-Argon-Mischung untersucht, daher erfolgt neben der Darstellung der für die Experimente wichtigen Eigenschaften von Rubidiumatomen parallel dazu eine Auflistung der Eigenschaften von Kaliumatomen. Die Experimente werden mit Alkaliatomen im natürlichen Isotopengemisch durchgeführt.

Beide verwendeten Alkalispezies befinden sich unter Normalbedingungen im festen Zustand, die Schmelzpunkte liegen bei 39°C für Rubidium und bei 63,7°C für Kalium [18]. Wie in Abschnitt 2.5 dargestellt, bedarf es hoher optischer Dichten der optisch adressierten (Alkali-)Atome, um eine deutliche Temperaturänderung beobachten zu können, daher wurden die Experimente unter Heizen der Gasmischungen durchgeführt, um signifikante Teilchenzahldichten zu erzielen.

Mit den empirischen Gleichungen für die Dampfdrücke für Rubidium [19, 20]:

$$\log_{10}(p) = 13,7111 - \frac{4463,4}{T} - 2,1307 \cdot \log_{10}(T) - 7,2787 \cdot 10^{-5}T + 1,8422 \cdot 10^{-7}T^2 \quad (2.1)$$

bzw. für Kalium [20–22]:

$$\log_{10}(p) = 10,8410 - \frac{4693,4}{T} - 1,1916 \cdot \log_{10}(T) + 1,5875 \cdot 10^{-4}T + 1,7454 \cdot 10^{-17}T^2 \quad (2.2)$$

und der idealen Gasgleichung $pV = Nk_{\text{B}}T$ (N Teilchenanzahl, V betrachtetes Volumen, k_{B} Boltzmannkonstante und T absolute Temperatur) lassen sich die Teilchenzahldichten $n = N/V$ für beide betrachteten Alkalispezies als Funktion der Temperatur bestimmen. Die Gleichgewichtsdampfdruckkurven für beide experimentell verwendeten Alkalispezies sind in Abbildung 2.1 dargestellt. Aufgrund des niedrigeren Schmelzpunkts von Rubidium im Vergleich zu Kalium lässt sich mit steigender Temperatur eine etwas höhere Teilchenzahldichte dieser Spezies erzielen. Bei einer Temperatur der Gasmischung von ca. 680 K, bei der viele der Experimente durchgeführt wurden, sind - je nach Spezies - ($10^{16} - 10^{17}$)/cm³ Alkaliatome mit 10^{21} /cm³ Edelgasatomen im Rezipienten vorhanden.

¹Im Rahmen dieser Arbeit wird der Druck des Puffergases bzw. der betrachteten Gasmischung in Bar angegeben, obwohl die SI-Einheit Pascal ist, 1 bar = 10^5 Pa, dies ist intuitiver.

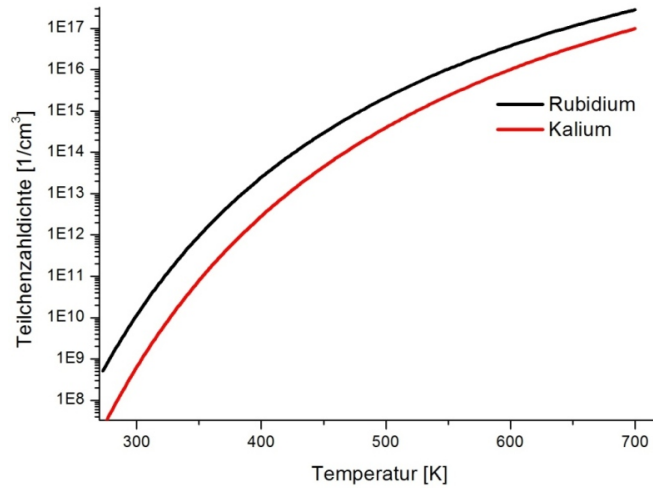


Abbildung 2.1: Teilchenzahldichten der beiden in den Experimenten zur Laserkühlung verwendeten Alkaliatomspezies, Rubidium und Kalium, in gesättigtem Dampfdruck als Funktion der Temperatur.

Für ein Gas lässt sich die mittlere freie Weglänge λ über den Wirkungsquerschnitt σ mit stoßenden, umgebenden Atomen, sowie die Teilchenzahldichte n abschätzen:

$$\lambda = \frac{1}{n\sigma}. \quad (2.3)$$

Wie zuvor dargestellt, liegt die Teilchenzahldichte in der Größenordnung $10^{21}/\text{cm}^3$. Setzt man für den Wirkungsquerschnitt den geometrischen Stoßquerschnitt πd^2 an, wobei d den Durchmesser eines Edelgasatoms bezeichnet und mit ca. $3,76 \cdot 10^{-10}$ m, entsprechend des doppelten van-der-Waals - Radius von Argon [23], angenommen wird, erhält man eine mittlere freie Weglänge $\lambda \approx 2,3$ nm. Ferner lässt sich aus der mittleren freien Weglänge und der Geschwindigkeit der Edelgasatome die Stoßrate abschätzen. Die wahrscheinlichste Geschwindigkeit ergibt sich aus der Boltzmann-Verteilung mit $\bar{v} = (2k_B T/m)^{1/2}$ für Argonatome mit Masse $m = 39,948\text{u}$ [24] zu $\bar{v} = 532$ m/s. Angenommen wurde hier eine in den Experimenten übliche Temperatur $T = 680$ K. Aus $1/t = \bar{v}/\lambda$ ergibt sich dann eine Stoßrate von $2,4 \cdot 10^{11}/\text{s}$.

Abschließend sollen nun noch die in den Experimenten betrachteten atomaren Übergänge dargestellt werden, bevor im nächsten Abschnitt auf die Verbreiterungsmechanismen eingegangen wird.

In den Experimenten mit Rubidium-Edelgasmischungen werden die D_2 bzw. D_1 - Übergänge bei 780 nm bzw. 795 nm [25] adressiert; als Kühlübergänge bei den Experimenten mit dichten Kalium-Argon-Gasmischungen werden ebenfalls die D-Resonanzen bei 766 nm (D_2) und 770 nm (D_1) [26] angesprochen. Die hier angegebenen Werte entsprechen denen des jeweils „ungestörten“ bzw. isoliert betrachteten Alkaliatoms; die im dichten atomaren Gasgemisch auftretenden spektralen Verschiebungen aufgrund von Stößen mit den umgebenden Puffergasatomen sind Gegenstand des folgenden Abschnitts 2.2.

2.2 Spektrallinienformen und Verbreiterungsmechanismen

Aufgrund der hohen Teilchenzahldichten und Drücke in den Experimenten werden schwerpunktartig verschiedene Ansätze zur Stoßverbreiterung der Spektallinien erläutert. Die Darstellung erfolgt im Wesentlichen in Anlehnung an [27–30].

Näherungsweise wird in der folgenden Betrachtung das aktive, emittierende Alkaliatom als Zwei-Niveau-System behandelt.

Erste Betrachtungen zur Druckverbreiterung von Spektrallinien formulierte Michelson bereits im 19. Jahrhundert [31]: Jeder Einfluss auf ein strahlendes bzw. absorbierendes Atom beeinflusst die Spektrallinie des betrachteten Übergangs. Aufgrund der endlichen Breite der beteiligten Niveaus tritt eine natürliche Linienbreite auf. Der Einfluss durch die eigene thermische Bewegung des Atoms bewirkt zudem eine statistische Verbreiterung, die Doppler-Verbreiterung. Die plötzliche Störung der atomaren Strahlung durch Kollisionen mit benachbarten Atomen bewirkt ebenfalls eine Verbreiterung der beobachteten Spektrallinie. Diese Stoß- bzw. Druckverbreiterung ist dichteabhängig und in unserem Fall größer als die natürliche Linienbreite und Dopplerverbreiterung, die daher in den folgenden Betrachtungen vernachlässigt werden.

Lorentz [32] betrachtete das strahlende Atom als gedämpften harmonischen Oszillator. Plötzliche Störungen durch Kollisionen mit umgebenden Atomen bewirken eine zusätzliche Dämpfung der Schwingung. Die sich aus dieser Betrachtungsweise ergebende Linienform soll im Folgenden kurz hergeleitet werden.

Im Falle von Absorption respektive (spontaner) Emission von elektromagnetischer Strahlung in einem atomaren Zweiniveausystem mit den Zuständen $|i\rangle, |f\rangle$, die zu einer Änderung hinsichtlich der Besetzung der beiden beteiligten Niveaus führt, ist die Übergangsfrequenz ω_{if} zwischen den beiden beteiligten Energiezuständen nicht monochromatisch, sondern es tritt eine frequenzabhängige Intensitätsverteilung auf. Diese spektrale Verteilung lässt sich über eine Betrachtung des angeregten Elektrons unter der Annahme berechnen, dass das Elektron aus seiner Gleichgewichtslage ausgelenkt wurde und nun harmonische Schwingungen um den Atomrumpf vollführt. Es erfolgt somit eine Betrachtung im Modell des klassischen gedämpften harmonischen Oszillators (Frequenz ω , Masse m , Rückstellkonstante k):

$$\ddot{x} + \gamma\dot{x} + \omega_0^2x = 0, \quad (2.4)$$

wobei $\omega_0 = (k/m)^{1/2}$ die Frequenz des ungedämpften Oszillators bezeichnet. Für kleine Dämpfungen, $\gamma \ll \omega$, ist

$$x(t) = x_0 e^{-(\gamma/2)t} \cos(\omega_0 t) \quad (2.5)$$

die Lösung von Gleichung 2.4. Aus der Fouriertransformation von Gl. 2.5 ergeben sich die frequenzabhängigen Amplituden $A(\omega)$ der gedämpften Schwingung, aus denen sich mittels $I(\omega) \propto A(\omega)A^*(\omega)$ das normierte Lorentz-förmige Intensitätsprofil berechnen lässt:

$$I(\omega - \omega_0) = I_0 \cdot \frac{\gamma/2\pi}{((\omega - \omega_0))^2 + (\gamma/2)^2}. \quad (2.6)$$

Die Halbwertsbreite dieser Verteilung entspricht der inversen Lebensdauer des angeregten Zustands, $\gamma = 1/\tau_0$. Gleichung 2.6 stellt die Linienform ohne Berücksichtigung der Druckverbreiterung dar, eine Erweiterung dessen wird in den folgenden Abschnitten besprochen. Im Folgenden soll dieser Einfluss von Stößen auf die zu beobachtende spektrale Intensitätsverteilung genauer diskutiert werden.

2.2.1 Stoßverbreiterung von Spektrallinien: Impakt-Näherung

In einer der frühesten Arbeiten zur Stoßverbreiterung behandelt Michelson [31] die Stoßpartner wie Billardkugeln, die „harte“ Kollisionen ausführen, wenn ihr Abstand geringer ist als die Summe ihrer mittleren atomaren Durchmesser. Die Zeit zwischen zwei Kollisionen τ ist ebenfalls die Zeit, während der eine Emission von Strahlung erfolgt, die Stöße erfolgen instantan. Betrachtet werden Wellenzüge finiter Länge $c\tau$ (c Lichtgeschwindigkeit) und gleicher Phase mit Amplitude

$$f(t) = \Re[f_0 \exp(-i\omega_0 t) \Theta(\tau - |t/2|)]. \quad (2.7)$$

Hierbei ist $\{\Theta(x) = 1 (x > 0), = 0 \text{ sonst}\}$ die Heaviside-Funktion. Für die Intensitätsverteilung ergibt sich:

$$I(\omega) \propto \left[\frac{\sin[\tau(\omega - \omega_0)/2]}{(\omega - \omega_0)/2} \right]^2. \quad (2.8)$$

Die Breite dieser Verteilung ist invers proportional zur Zeit τ zwischen den Kollisionen. Der Linienschwerpunkt ist unverschoben zur natürlichen Frequenz.

Betrachtet man Wellenzüge unterschiedlicher, endlicher Ausdehnung wie in [32], so ergibt sich eine Intensitätsverteilung, die von der mittleren Zeit zwischen den Kollisionen, τ_c abhängig ist:

$$I(\omega) \propto \frac{1}{(\omega - \omega_0)^2 + (1/\tau_c)^2}, \quad (2.9)$$

das bekannte Lorentz-Profil, analog zu Gl. 2.6. Die Linienverbreiterung in diesem Modell erfolgt durch quasi instantane Kollisionen, die Kollisionsdauer t_0 ist kurz verglichen mit der Zeit zwischen zwei Stößen τ_c (Adiabasis-Annahme) [33], d.h. $t_0 \ll \tau_c$. Die Kollisionsdauer bzw. Dauer der Störung t_0 kann über die Geschwindigkeit v des jeweiligen Störatoms, sowie den Stoß- bzw. Impaktparameter ρ_c abgeschätzt werden: $t_0 = \rho_c/v$.

Gleichung 2.9 beschreibt eine symmetrische Intensitätsverteilung um die Resonanzfrequenz. Diese Betrachtungsweise liefert somit jedoch keine Erklärung für die beobachtbare Verschiebung der Linie, sowie für eine eventuell auftretende Asymmetrie. Es bedarf einer Erweiterung dieses Modells um eine Phasenverschiebung aufgrund von Stößen zwischen dem strahlenden Atom und den umgebenden Störatomen [34–37].

Man spricht von Impakt-Näherung, da aufgrund der Adiabasis-Annahme der Frequenzschub nahezu instantan erfolgt. Die Berücksichtigung der Phasenverschiebung lässt sich über eine Zerlegung der Frequenz $\omega(t)$ in den „ungestörten“ Anteil ω_0 und einen die Phasenänderung berücksichtigenden Anteil realisieren:

$$\omega(t) = \omega_0 + \frac{d\eta}{dt}. \quad (2.10)$$

Für die frequenzabhängige Intensitätsverteilung ergibt sich dann ein verschobenes Lorentzprofil:

$$I(\omega) \propto \frac{\gamma}{(\omega - \omega_0 - \sigma)^2 + \gamma^2}. \quad (2.11)$$

Die Verschiebung σ , sowie die Halbwertsbreite γ werden durch die Phasenverschiebung(en) bestimmt. Die Halbwertsbreite γ ist hierbei proportional zur Teilchenzahldichte n und zur Geschwindigkeit v der Störatome, sowie zum Streuquerschnitt des jeweilig betrachteten Stoßes q , $\gamma \propto n \cdot v \cdot q$ [38].

Im Allgemeinen beeinflussen Kollisionen den Strahlungsprozess auf zwei verschiedene Arten [39], neben der Phasenänderung der emittierten Strahlung kann es auch zur „Löschung“ der Strahlung/Fluoreszenz („Quenching“, siehe Abschnitt 2.5) kommen. Wird die Anregungsenergie des höher-energetischen Zustands des Zwei-Niveau-Atoms durch Kollisionen mit Fremdatomen partiell oder vollständig in innere Energie des Stoßpartners umgewandelt, tritt keine Emission von Strahlung auf.

2.2.2 Stoßverbreiterung von Spektrallinien: Quasi-statische Näherung

Ein gegensätzlicher Ansatz zur Beschreibung der Stoßverbreiterung bzw. -verschiebung von Spektrallinien besteht in der quasi-statischen Näherung [40–43]. Hinsichtlich der Impakt-Näherung

sind viele der experimentellen Ergebnisse inkonsistent, beispielsweise innerhalb der linearen Abhängigkeit der Halbwertsbreite von der Teilchenzahldichte, die man durch die Phasenverschiebungsannahme erhält. Diese Diskrepanz ist bei hohen Dichten ausgeprägter, da dort Vielkörperinteraktionen über die Zweikörperwechselwirkungen dominieren. Ferner sagt die Impaktnäherung symmetrische Linienprofile voraus, dies stimmt jedoch mit experimentellen Ergebnissen, insbesondere im Bereich der Linienflügel bei höheren Drücken, nicht überein.

Bei dem im folgenden beschriebenen Ansatz der quasi-statischen Näherung befindet sich das betrachtete Zwei-Niveau-Atom anders als bei der Impakt-Näherung dauerhaft im „Einflussbereich“ eines Störatoms und nicht nur eine als kurz angenommene Dauer der jeweiligen Kollision. Das betrachtete Atom befindet sich näherungsweise in Ruhe, die relative Bewegung zwischen dem Zwei-Niveau-Atom und den umgebenden Störatomen wird als unendlich langsam, also quasi-statisch angesehen. Das strahlende Atom emittiert eine Frequenz $\omega_0 + \Delta\omega$. Diese Frequenz wird festgelegt durch die Energiedifferenz der beteiligten Zustände $|i\rangle, |f\rangle$:

$$\omega_0 + \Delta\omega = (E_i - E_f)/\hbar = \omega_0 + \Delta V/\hbar. \quad (2.12)$$

Durch die Störung des strahlenden Atoms durch die umgebenden Atome sind die beteiligten Niveaus im Allgemeinen zu denen eines „ungestörten“ Atoms verschoben und abhängig von dem Abstand zu den Störatomen, der kleiner ist als die jeweiligen interatomaren Abstände, weshalb das System aus Zwei-Niveau-Atom und den umgebenden Atomen auch als Quasi-Molekül betrachtet wird.

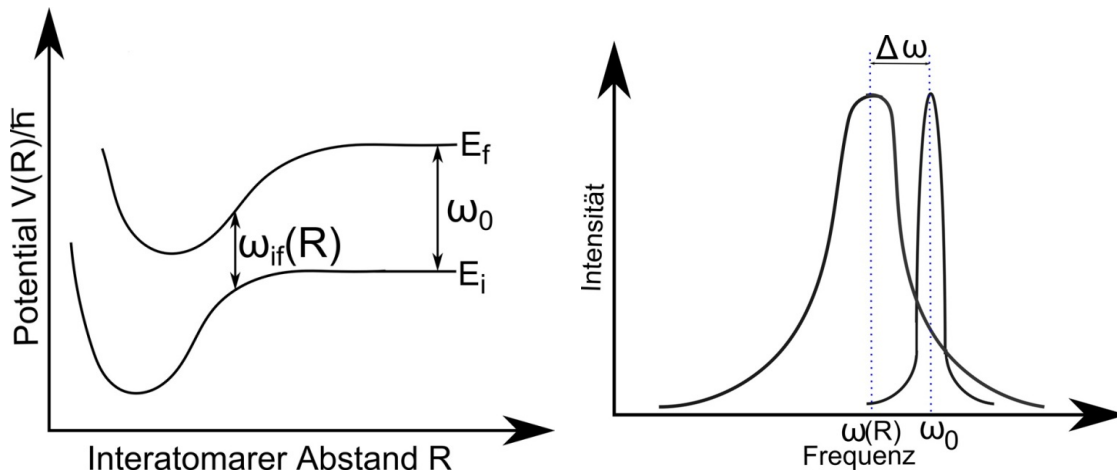


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Potentialkurven eines Stoßpaares als Funktion des interatomaren Abstands R (linke Abb.), sowie der Linienverbreiterung und -verschiebung aufgrund der Stöße des betrachteten strahlenden Zwei-Niveau-Atoms mit umgebenden Atomen (rechte Abb.). Bei großen Abständen entspricht die abstandsabhängige Frequenz der „ungestörten“ Frequenz ω_0 , für kleinere Abstände ist dies abhängig von der Gestalt des Wechselwirkungspotentials. Gegenüber der ungestörten Intensitätsverteilung ist die stoßverbreiterte Spektrallinie im Frequenzraum betrachtet zu kleineren Frequenzen verschoben und außerdem verbreitert. Eine eventuell auftretende Asymmetrie dieser stoßverbreiterten Spektrallinie ist hier der Übersichtlichkeit halber nicht dargestellt.

Das Potential ΔV lässt sich als Funktion der Position aller betrachteten Störatome bzw. ihres Abstands R_j zum strahlenden Atom ausdrücken, $\Delta V = \Delta V(R_j)$.

Die Intensitätsverteilung ist proportional zur Wahrscheinlichkeit, ein Störatom zwischen R und

$R + dR$ zu finden, hierbei bezeichnet n die Teilchenzahldichte der Störatome:

$$I(\Delta\omega) |d\omega| \propto n \cdot 4\pi R^2 |dR| \quad (2.13)$$

$$\Rightarrow I(\Delta\omega) \propto n \cdot 4\pi R^2 \left| \frac{d\omega}{dR} \right|^{-1} \quad (2.14)$$

$$\propto n \cdot 4\pi R^2 \left| \frac{d\Delta V}{dR} \right|^{-1} \hbar \quad (2.15)$$

Die Strahlung im Linienflügel resultiert aus dem Zeitpunkt der Kollision, die Gestalt des Linienkerns resultiert aus „ungestörten“ Strahlung zwischen den Kollisionen.

Als Beispiel für ein Wechselwirkungspotential bietet sich ein Ansatz gemäß des repulsiven Anteils des Lennard-Jones-Potentiales $V(R) = C_p R^{-p}$ an, somit lässt sich für die Intensitätsverteilung durch Einsetzen in Gleichung 2.15 schreiben:

$$I(\Delta\omega) = \left(\frac{4\pi}{p} \right) n \left(\frac{C_p}{\hbar} \right)^{3/p} (\Delta\omega)^{-[(p+3)/p]}. \quad (2.16)$$

Für eine Van-der-Waals-Wechselwirkung, ($p = 6$), ergibt sich:

$$I(\Delta\omega) \propto \Delta\omega^{-3/2}. \quad (2.17)$$

Die quasi-statische Näherung liefert eine gute Beschreibung der Intensitätsverteilung im Linienflügel, das Auftreten von Satellitenresonanzen, Resonanzen aufgrund nicht-monotoner Wechselwirkungspotentiale in verbreiterten Linienflügeln, eingeschlossen, wohingegen die Impakt-Näherung eine bessere Beschreibung für den Bereich nahe des „ungestörten“ Linienkerns liefert. In diesem Bereich versagt die quasi-statische Näherung, da die Bewegung der Störatome im Ansatz vernachlässigt wurde. Im folgenden wird eine beide Ansätze als Grenzfälle vereinende Theorie dargestellt, was relevant für die Berechnung des vollständigen Linienprofils bei höheren Drücken ist.

2.2.3 Verallgemeinerte Theorie der Stoßverbreiterung

Um das Verbreiterungsverhalten bzw. die Linienform sowohl im Linienkern, als auch im Linienflügel möglichst exakt beschreiben zu können, bedarf es einer Theorie, die die Ergebnisse aus Impakt- und quasi-statischer Näherung vereint. Diesbezüglich gibt es mehrere Ansätze, beispielsweise [44–49], im Folgenden wird der Ansatz nach [49] dargestellt.

Sei ω die emittierte Frequenz in einem Zwei-Niveau-System wie bisher. Dann lässt sich mittels einer zeitabhängigen Korrelationsfunktion $\varphi(\tau)$:

$$\varphi(\tau) = \left\langle \exp[-i \int_0^\tau \Delta\omega(R) dt'] \right\rangle_t^N \quad (2.18)$$

unter Verwendung der Anzahl der Störatome N , des Abstands R zwischen Zwei-Niveau-Atom und Störatom, sowie der Störung der Frequenz $\Delta\omega(R) = -(\gamma/R^p)$ die Intensitätsverteilung der betrachteten Spektrallinie ausdrücken. Der Koeffizient γ ist abhängig sowohl vom strahlenden Zwei-Niveau-Atom, als auch vom jeweiligen Störatom.

$$I(\omega) \propto \frac{1}{\pi} \Re \int_0^\infty \varphi(\tau) \exp(i\omega\tau) d\tau. \quad (2.19)$$

Die Kollisionen des betrachteten Zwei-Niveau-Atoms mit den umgebenden Atomen werden als isotrop und von einander unabhängig betrachtet. Die Korrelationsfunktion aus Gleichung 2.18

lässt sich unter der Annahme, dass die stoßenden Atome sich mit Geschwindigkeit \bar{v} auf geraden Trajektorien bewegen, als Funktion des betrachteten Volumens ausdrücken. Hierzu wird das Volumen V des betrachteten Systems durch die generalisierten Koordinaten ρ , x_0 beschrieben:

$$V = 2\pi \int \rho d\rho \int dx_0. \quad (2.20)$$

Einsetzen der Gleichung 2.20 in Gleichung 2.18 unter Verwendung von $R^2 = (x_0 + \bar{v}t')^2 + \rho^2$ ergibt einen Ausdruck für die Korrelationsfunktion:

$$\begin{aligned} \varphi(\tau) &= \left(\frac{1}{V} \int dV \exp \left[-i \int_0^\tau \Delta\omega(R) dt' \right] \right)^N \\ &= \left(1 - \frac{2\pi}{V} \int_0^\infty \rho d\rho \int_{-\infty}^\infty dx_0 \cdot \left(1 - \exp \left[-i \int_0^\tau dt' \Delta\omega(\sqrt{(x_0 + \bar{v}t')^2 + \rho^2}) \right] \right) \right)^N \\ &= \left[1 - \frac{V'(\tau)}{V} \right]^N \end{aligned} \quad (2.21)$$

Für den Fall einer großer Teilchenanzahl N , ($N \rightarrow \infty$), bei konstanter Teilchendichte n ergibt sich der folgende Ausdruck für die Korrelationsfunktion:

$$\varphi(\tau) = \exp[-nV'(\tau)] \quad (2.22)$$

Für den Fall einer geringen bzw. verschwindenden Geschwindigkeit \bar{v} der Störatome ergibt sich der Grenzfall der quasi-statischen Näherung wie in Abschnitt 2.2.2 beschrieben. Ferner liefern die obigen Gleichungen auch eine gültige Beschreibung für den Fall $\tau \rightarrow 0$, dies ist der Grenzfall hoher Drücke.

Für große mittlere Geschwindigkeiten \bar{v} der Umgebungsatome und eine geringe Dichte ergibt sich aus Gleichung 2.22 die Impakt-Näherung.

Um den Bereich zwischen den beiden Grenzfällen zu betrachten, bietet sich eine Darstellung mit folgenden Variablen an:

$$u = x_0 + \bar{v}\tau; \quad R_0 = \frac{\gamma}{\bar{v}^{1/(p-1)}} \quad (2.23)$$

$$\rho = R_0 r; \quad x = R_0 z \quad (2.24)$$

$$n = \frac{h}{R_0^3}; \quad \Delta\omega = \frac{\bar{v}\Delta\omega'}{R_0} \quad (2.25)$$

$$t = \frac{R_0 u}{\bar{v}}; \quad \tau = \frac{R_0 y}{\bar{v}} \quad (2.26)$$

Die Korrelationsfunktion (Gleichung 2.22) lässt sich dann über obige Variablen sowie der Phasenverschiebung $\Theta(y)$

$$\Theta(y) = \int_0^y du [(z+u)^2 + r^2]^{-p/2} \quad (2.27)$$

und des umgeschriebenen Volumenelements $\psi(y)$:

$$\psi(y) = \int_0^\infty r dr \int_{-\infty}^\infty dz (1 - \exp(i\theta)) \quad (2.28)$$

ausdrücken:

$$\varphi(R_0 y / \bar{v}) = \exp(-h\psi(y)). \quad (2.29)$$

Die Intensitätsverteilung lässt sich dann wie folgt schreiben:

$$I(\bar{v}\Delta\omega'/R_0) = \frac{R_0}{2\pi\bar{v}} \int_{-\infty}^\infty dy \exp[i\Delta\omega'y - h\psi(y)]. \quad (2.30)$$

Bei Betrachtung von Gleichung 2.30 fällt auf, dass die Intensitätsverteilung wesentlich durch den Parameter h , $h = nR_0^3 = n\gamma/\bar{v}^{3/(p-1)}$, bestimmt wird; die Größenordnung dieses Parameters bestimmt somit die Gültigkeit der Grenzfälle Impakt- bzw. statischer Näherung respektive den Zwischenbereich. Die Berechnung der Linienform reduziert sich somit auf die Berechnung von Gleichung 2.28. Eine Möglichkeit [49] besteht in der Berechnung für kleine, sowie für große Werte y und einer Interpolation für den Zwischenbereich. Für kleine Werte y ergibt sich:

$$\psi(y) = i^{-1/2} \frac{4\pi}{3} \Gamma\left(\frac{1}{2}\right) y^{1/2} + i^{-1/6} \frac{5\pi}{18} \Gamma\left(\frac{5}{6}\right) y^{13/6} \quad (2.31)$$

sowie für große Werte y :

$$\psi(y) = \frac{2\pi}{5} i^{-2/5} \left(\frac{3\pi}{8}\right)^{-3/5} \Gamma\left(\frac{2}{5}\right) y + 1,91 + 2,63i \quad (2.32)$$

In beiden Gleichungen (2.31), (2.32) bezeichnet $\Gamma(\dots)$ die Gammafunktion.

Numerisch lässt sich nun mit diesen beiden Grenzfällen für $p = 6$ die Intensitätsverteilung (Gleichung 2.30) für beliebige Drücke berechnen. Es kann jedoch kein allgemeingültiger, analytischer, Ausdruck angegeben werden.

Abschließend soll an dieser Stelle noch der Vollständigkeit halber auf das Phänomen der stoßinduzierten Einengung von Spektrallinien eingegangen werden. Im Mikrowellen- und infraroten Spektralbereich kann statt einer Stoßverbreiterung unter bestimmten Bedingungen eine stoßinduzierte Verkleinerung der Linienbreite beobachtet werden, das sogenannte „Dicke narrowing“ [50].

Für den Fall, dass die Lebensdauer des angeregten Zustands des betrachteten, strahlenden Übergangs deutlich länger ist als die Zeit zwischen zwei aufeinanderfolgenden Kollisionen, ändert das Atom seine Geschwindigkeit und Richtung vielfach während der Emission oder Absorption eines Photons. Die mittlere Geschwindigkeit ist somit geringer als für den Fall, dass es keine Kollisionen gäbe. Dies führt zu einer schmaleren Doppler-Breite.

Ist die Doppler-Breite größer als die Druckverbreiterung, ergibt sich eine Einengung der Linienbreite, wenn die mittlere freie Weglänge des Atoms deutlich kleiner als die Wellenlänge des betrachteten Übergangs ist.

Die Linienbreite nimmt in einem speziesabhängigen Bereich mit steigendem Druck ab, bis die Druckverbreiterung die stoßinduzierte Einengung wieder ausgleicht, und die Linienbreite wieder ansteigt. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente behandeln Gasmischungen bei Drücken, bei denen die Verbreiterung aufgrund der hohen Puffergasdrücke dominiert. „Dicke narrowing“ spielt dagegen nur in Druckbereichen unterhalb weniger Bar Druck eine Rolle [30].

2.2.4 Sättigungsverbreiterung

Ein weiterer Spektrallinienverbreiterungsmechanismus, der in den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten eine Rolle spielen kann, resultiert aus den durch Laserstrahlung realisierbaren hohen Intensitäten, die sogenannte Sättigungsverbreiterung [30].

Um einen Ausdruck für die spektrale Intensitätsverteilung ähnlich derer in den Betrachtungen zur Stoßverbreiterung herzuleiten, wird erneut ein Zwei-Niveau-System betrachtet. N_1 und N_2 bezeichnen im Folgenden die Besetzungsdichten der beteiligten Niveaus. Mit $R_i(\omega)$ wird die Relaxationsrate des entsprechenden Niveaus bezeichnet, $P(\omega)$ ist die Pumprate durch Absorption. Unter Annahme, dass die Summe der Besetzungsdichten konstant ist, $N_1 + N_2 = N = \text{const.}$, lassen sich aus der Ratengleichung

$$\frac{dN_1}{dt} = -\frac{dN_2}{dt} = -P(\omega)N_1 - R_1(\omega)N_1 + P(\omega)N_2 + R_2(\omega)N_2 \quad (2.33)$$

die Besetzungsdichten als Funktion der Relaxations- und der Pumprate ausdrücken:

$$N_1 = \frac{N(P(\omega) + R_2(\omega))}{2P(\omega) + R_1(\omega) + R_2(\omega)}. \quad (2.34)$$

Im Grenzfall $P(\omega) \gg R_i(\omega)$ konvergiert der Ausdruck in Gleichung 2.34 gegen $N/2$. In diesem Fall sind die Besetzungsdichten der beteiligten Niveaus gleich, es tritt keine Absorption mehr auf.

Betrachtet man ein Zwei-Niveau-System, das keinem Strahlungsfeld ausgesetzt wird ($P = 0$), sind die Besetzungsdichten im thermischen Gleichgewicht:

$$N_{1,0} = N \frac{R_2(\omega)}{R_1(\omega) + R_2(\omega)} \quad \text{und} \quad N_{2,0} = N \frac{R_1(\omega)}{R_1(\omega) + R_2(\omega)}. \quad (2.35)$$

Mit den Besetzungsdifferenzen $\Delta N_0 = N_{1,0} - N_{2,0}$ und $\Delta N = N_1 - N_2$ lässt sich über

$$\Delta N = \frac{\Delta N_0}{1 + 2P(\omega)/(R_1(\omega) + R_2(\omega))} = \frac{\Delta N_0}{1 + S} \quad (2.36)$$

ein Sättigungsparameter $S(\omega)$ definieren, der das Verhältnis aus Pumprate $P(\omega)$ und der Relaxationsraten beschreibt:

$$S(\omega) = \frac{2P(\omega)}{R_1(\omega) + R_2(\omega)}. \quad (2.37)$$

Eine analoge Beziehung lässt sich für den Absorptionskoeffizienten α unter Berücksichtigung des Absorptionskoeffizienten an der Stelle ω_0 , $\alpha_0 = \alpha(\omega_0)$, finden:

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 + S}. \quad (2.38)$$

Das Intensitätsprofil einer betrachteten Spektrallinie ist sensitiv auf die Besetzungszahländerung als Folge von Absorption und stimulierter Emission unter Anwesenheit eines Strahlungsfelds. Die einfallende Strahlung kann eine teilweise oder vollständige Sättigung bewirken und somit zu einer zusätzlichen Verbreiterung des Linienprofils führen.

Bei Betrachtung eines homogenen Linienprofils ist der Sättigungsparameter $S(\omega)$ durch ein Lorentz-Profil wie in Gleichung 2.6 gegeben:

$$S(\omega) = S_0 \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2}, \quad S_0 = S(\omega_0). \quad (2.39)$$

Mit Gleichung 2.39 lässt sich die Absorptionsrate des gesättigten Übergangs berechnen:

$$\alpha_S(\omega) = \alpha_0(\omega_0) \cdot \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma_S/2)^2}. \quad (2.40)$$

Gleichung 2.40 ist erkennbar Lorentz-förmig, die Linienbreite $\gamma_S = \Delta\omega_S$ ist jedoch im Vergleich mit der „ungestörten“ Linienbreite ω_0 um einen Faktor $(1 + S_0)^{1/2}$ größer:

$$\Delta\omega_S = \Delta\omega_0 \sqrt{1 + S_0}. \quad (2.41)$$

Wird der Übergang also gesättigt, d.h. die Besetzungszahl des angeregten Zustands beträgt $1/2$, findet eine Verbreiterung der Linie statt. Bei entsprechender Pumprate können mehr Photonen an den Flügeln der betrachteten Spektrallinie absorbiert werden, was zur Verbreiterung führt.

2.3 Atom-Licht-Wechselwirkung: Dichtematrixformalismus & optische Blochgleichungen

Für einige der Experimente wie in Kapitel 4 beschrieben ist es sinnvoll, abzuschätzen, ob durch die eingestrahlte Intensität des jeweilig verwendeten Lasers bereits eine Sättigung der angesprochenen atomaren Übergänge eintritt, respektive ob die betrachteten Spektrallinien neben der Druck- auch eine Sättigungsverbreiterung erfahren. Hierzu bietet sich der Dichtematrixformalismus (Dichtematrix ρ) und daraus folgend die optischen Blochgleichungen an, um einen Ausdruck für die Besetzung des angeregten Zustands des betrachteten Zwei-Niveau-Atoms in Abhängigkeit der eingestrahlten Intensität, sowie anderer Parameter zu erhalten.

Anhand des Dichtematrixformalismus und der Gleichgewichtslösungen der optischen Blochgleichungen lässt sich ein Ausdruck für die Besetzung des angeregten Zustands in einem Zwei-Niveau-System herleiten [51,52]. Unter der Annahme, dass die Besetzungsinversion, entsprechend der Differenz aus der Besetzung von Grund- ($\tilde{\rho}_{11}$) und angeregtem Zustand ($\tilde{\rho}_{22}$), $w = \tilde{\rho}_{22} - \tilde{\rho}_{11}$ stationär ist, ergibt sich für die Besetzung des angeregten Zustands $\tilde{\rho}_{22}$:

$$\tilde{\rho}_{22} = \frac{K}{\Gamma_{\parallel} + 2K} \quad \text{mit} \quad K = \frac{\Gamma_{\perp}}{\delta^2 + \Gamma_{\perp}^2} \cdot \frac{\Omega^2}{2} \quad (2.42)$$

Γ_{\parallel} ist die inverse longitudinale Relaxationszeit des angeregten Zustands $|a\rangle$ und entspricht der Lebensdauer dieses Zustands ($\Gamma_{\parallel} = \gamma = 1/\tau$). Γ_{\perp} bezeichnet die inverse transversale Relaxationszeit, also die Zeit, in der die Kohärenz zerfällt, ($\delta = \omega - \omega_0$) ist die Verstimmung des Lichtfeldes zur Resonanzfrequenz ω_0 .

Für die Abschätzung zur Sättigung des betrachteten Übergangs bietet es sich an, Gleichung 2.42 durch experimentelle Größen zu vereinfachen; es liegt nahe, die Rabi-Frequenz Ω , die ein Maß für die Oszillation der Besetzung der beiden Zustände darstellt, über die einfallende Intensität I und die Sättigungsintensität des betrachteten Übergangs bei resonant eingestrahlt Licht, I_S auszudrücken:

$$\frac{I}{I_S} = 2 \frac{\Omega^2}{\Gamma_{\parallel}}. \quad (2.43)$$

Aus Gleichung 2.42 ergibt sich somit unter Verwendung der Gleichung 2.43, sowie der Tatsache, dass die Besetzungszahl $\rho_{22} = n_a$ des angeregten Zustand bei Sättigung gleich 1/4 ist:

$$I(\omega) = \frac{4(\delta^2 + \Gamma_{\perp}^2)\rho_{22}}{\Gamma_{\parallel}\Gamma_{\perp}(1 - 2\rho_{22})} I_S \quad (2.44)$$

$$= 2\tau \frac{\delta^2 + \Gamma_{\perp}^2}{\Gamma_{\perp}} I_S \quad (2.45)$$

ein Ausdruck, der es erlaubt, die Sättigung eines Übergangs abhängig von der Frequenz ω des eingestrahlten Lichts abzuschätzen.

Da der Schwerpunkt dieser Arbeit auf Experimenten mit Rubidiumatomen im dichten Edelgas liegt, wird nun für einen Beispielparametersatz abgeschätzt, bei welchen eingestrahlten Intensitäten die adressierten D-Resonanzen gesättigt werden. Die Werte für die druckverbreiterte Linienbreite wurden aus [53] entnommen, die Werte für die Sättigungsintensitäten der D-Resonanzen stammen aus [25]. Für den Fall von Rubidiumatomen in 50 bar Argon ergeben sich für die eingestrahlte Laserwellenlänge $\lambda = 810$ nm die Werte der Intensitäten, die eingestrahlt werden müssten, um die Übergänge zu sättigen: $I(D1) = 1,08 \cdot 10^8$ mW/cm², $I(D2) = 1,76 \cdot 10^8$ mW/cm². Diese Intensitäten liegen mehr als eine Größenordnung über den mit dem vorhandenen Titan:Saphir-

Lasersystem erreichbaren Intensitäten, mit denen die Experimente zur Laserkühlung durchgeführt wurden; die dort verwendeten Strahltaillen liegen typischerweise im Bereich einiger hundert Mikrometer. Für die Messungen der Fluoreszenz im konfokalen Aufbau wie in 3.3 erläutert, wurde der eingestrahelte Laser deutlich stärker fokussiert; für diese Messungen wurde daher die Sättigungsintensität erreicht, sodass in Abschnitt 4.1 gezeigte Fluoreszenzspektren auch durch Sättigung verbreiterte Spektrallinien zeigen.

2.4 Kollisionsinduzierte Redistribution von Strahlung

Gegenstand dieses Abschnitts ist eine qualitative Erklärung des Prozesses der Kollisionsinduzierten Redistribution von (Laser-)Strahlung, siehe [54], im Hinblick auf die Darstellung des Kühlprinzips, wie im folgenden Abschnitt 2.5 erläutert.

Kollisionsinduzierte Redistribution von Strahlung beruht auf der Wechselwirkung eines eingestrahelten Lichtfelds mit einem Atom, das von Fremdatomen umgeben ist und mit ihnen stößt; einer Stoßverbreiterung, die vor allem im Impakt-Regime, wie in Abschnitt 2.2.1, gut beschrieben werden kann [55].

Durch Kollisionen werden die beteiligten atomaren Zustände verschoben, es wird eine Absorption bzw. Emission von Strahlung möglich, die von einem freien Atom, das nicht von Fremdatomen umgeben wird, nicht möglich wäre.

Experimentell wurde dieser Effekt erstmalig spektral aufgelöst in Strontiumdampf bei niedrigen Puffergasdrücken beobachtet [56], eine theoretische Vorhersage erfolgte zuvor von Huber, sowie Omont et al. [57, 58].

Die Photonen des eingestrahelten Lichtfelds haben die Energie $\hbar\omega_L$. Die Differenz zwischen der Übergangsenergie der beteiligten Zustände des (Zwei-Niveau-)Atoms, $\hbar\omega_0$, und der Photonenenergie sei im Folgenden vergleichbar oder kleiner als die thermische Translationsenergie der Störatome, $k_B T$. Die Photonen können dann gestreut werden (sog. Rayleigh-Streuung), oder aber absorbiert und als Fluoreszenz wieder reemittiert werden, wenn die Energiedifferenz durch einen Übertrag der Energie eines oder mehrerer stoßender Störatome „überbrückt“ wird. Abbildung 2.3 zeigt schematisch den Redistributionsprozess eines Zwei-Niveau-Atoms nach Kollision mit einem umgebenden Atom. Nach Einstrahlen der Laserfrequenz ω_L kommt es entweder nach einem elastischen Stoß zu Rayleigh-Streuung mit der Frequenz ω_R , oder aber, nach einer inelastischen Kollision mit Energieübertrag durch den Stoßpartner, zu Emission eines Fluoreszenzphotons mit Frequenz ω_{Fl} .

Betrachtet man statt zwei beteiligter Niveaus ein Atom mit mehreren Niveaus, so ist durch den beschriebenen Prozess eine Anregung in Zustände durch Absorption möglich, die für ein freies Atom aufgrund der großen Laserverstimmung hinsichtlich der Resonanz ebenfalls nicht möglich wären.

Erklärbar wird dieser Prozess im Bild einer Quasimolekülbildung. Durch die Stöße bildet sich ein Quasimolekül aus dem (strahlenden) Atom und einem Stoßpartner-Atom, das beispielsweise im Moment der Kollision Licht absorbiert und angeregt wird, und bei größeren Abständen zwischen strahlendem Atom und Fremdatom wieder dissoziiert, und die Energiedifferenz zwischen Grund- und angeregtem Zustand des strahlenden Atoms als Fluoreszenz emittiert. Die Intensität dieser Fluoreszenz ist proportional zur eingestrahelten Laserintensität und der Störatomteilchendichte für geringe Intensitäten und Drücke. Für große Intensitäten und Drücke tritt jedoch eine Sättigung ein [55].

Im folgenden Abschnitt soll dieses Quasimolekülbild der Erklärung des den in Kapitel 4 beschriebenen Experimenten zugrundeliegenden Kühlprinzips dienen.

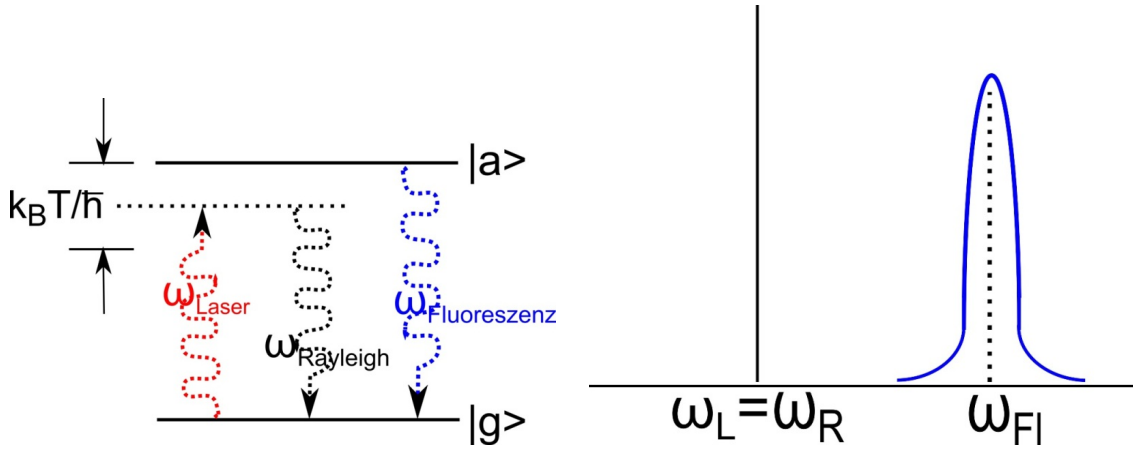


Abbildung 2.3: Redistributionsprozess in einem Zwei-Niveau-Atom. Je nachdem, ob das betrachtete Atom elastisch oder inelastisch mit einem umgebenden Fremdatom stößt, tritt entweder Rayleigh-Streuung bei der eingestrahnten Frequenz auf, oder es wird Fluoreszenz mit einer von der Laserfrequenz verschiedenen Frequenz emittiert.

2.5 Prinzip der Redistributionslaserkühlung

Das den Experimenten zur Laserkühlung dichter Gasmischungen zugrundeliegende Kühlprinzip soll im Folgenden dargestellt werden.

Wie im vorherigen Abschnitt 2.4 lässt sich der Prozess der Redistribution von Strahlung gut im Quasimolekülbild erklären. In den Experimenten tritt eine starke Verbreiterung der Linien aufgrund des hohen Puffergasdrucks auf, die die Absorption der rotverstimmt eingestrahnten Laserstrahlung ermöglicht. Die radiative Lebensdauer der angeregten Zustände für Rubidium bzw. Kalium liegt bei 27 ns (Rb) bzw. 28 ns (K) [25, 26]. Das ist deutlich länger als die Dauer einer Kollision (verglichen mit der Abschätzung zur Stoßrate in Abschnitt 2.1), sodass der Zerfall des angeregten Zustands durch Emission eines Fluoreszenzphotons bei großem Abstand zwischen Alkali- und Edelgasatom erfolgt. Somit ist die Wellenlänge des Fluoreszenzphotons deutlich kleiner als die des eingestrahnten Lasers. Energie wird aus der dichten Gasmischung extrahiert: Es findet eine Kühlung statt.

Schematisch ist dieser Prozess in Abbildung 2.4 für den Fall von Rubidiumatomen in dichtem Argongas dargestellt. Die dargestellten Potentialkurven beruhen auf einer Rechnung [59] zu den entsprechenden Rb-Ar-Van-der-Waals-Komplexen, anhand von $[\text{Rb}^+]$ und $[\text{e}^- - \text{Ar}]$ -Pseudopotentialen.

Die erwartete Kühlleistung P_K lässt sich aus der mittleren auftretenden Frequenz der Fluoreszenz, ν_{fl} , der eingestrahnten Frequenz ν , der eingestrahnten optischen Leistung P_{opt} und der Absorptionswahrscheinlichkeit der dichten Gasmischung, $a(\nu)$ abschätzen:

$$P_K = a(\nu) P_{\text{opt}} \frac{\nu_{\text{fl}} - \nu}{\nu}. \quad (2.46)$$

Unter typischen experimentellen Bedingungen konnten Kühlleistungen von bis zu 100 mW beobachtet werden [16, 17, 60–62]. Experimentell ist es wichtig, eine Verstimmung zu wählen, bei der die Absorptionswahrscheinlichkeit $a(\nu)$ ausreichend hoch ist, hier spielt die Stoßverbreiterung der Spektrallinien eine entscheidende Rolle.

Auf das genaue Messprinzip der redistribuierten Fluoreszenz wird in Abschnitt 3.3 eingegangen, in den Abschnitten 4.1 und 4.3 werden gemessene Fluoreszenzspektren gezeigt und diskutiert.

Das hier präsentierte Kühlverfahren wurde theoretisch erstmalig von Berman und Stenholm im

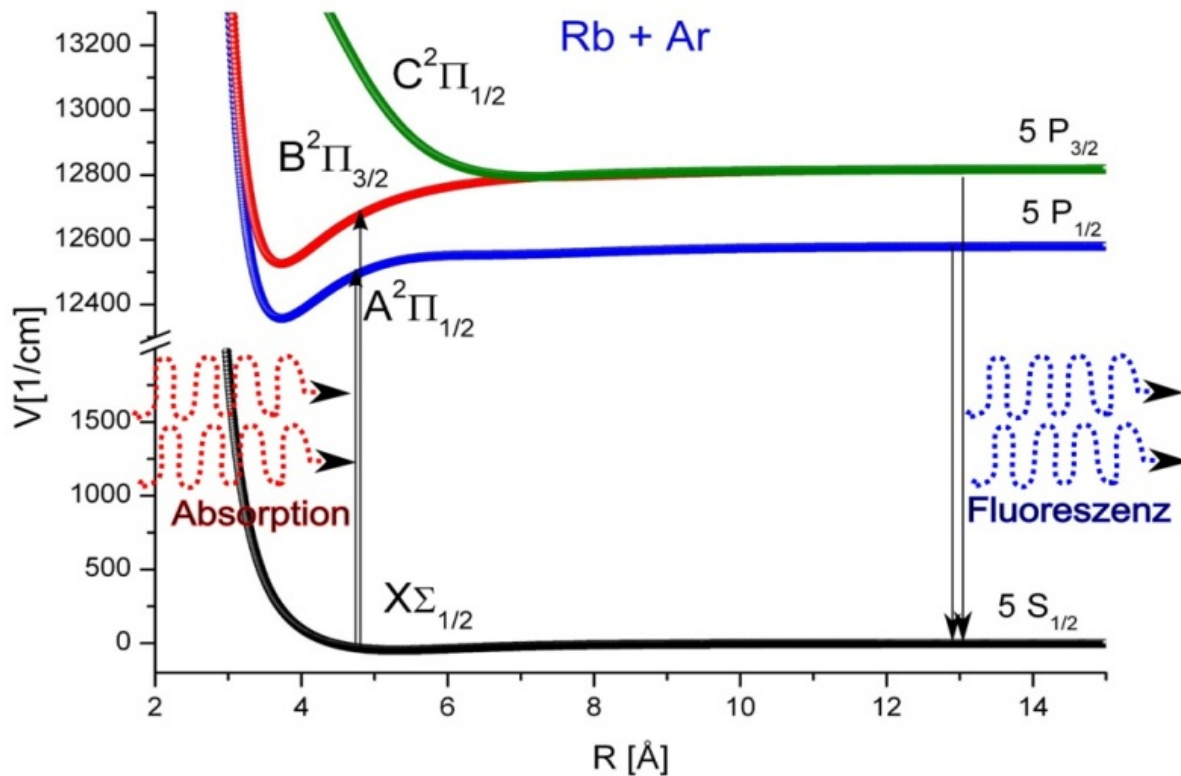
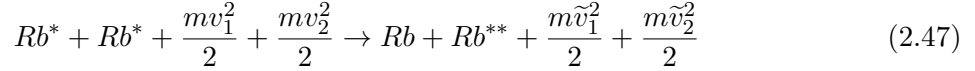


Abbildung 2.4: Kühlprinzip für den Fall einer dichten Rubidium-Argon-Mischung mit den berechneten Quasimolekül-Potentialen gemäß [59]. Stößt ein Argonatom mit einem Rubidiumatom, ist die Absorption rotverstimmt eingestrahelter Photonen möglich. Das Alkaliatom wird angeregt und Fluoreszenz tritt näher zu den ungestörten D-Resonanzen auf, hat also eine kürzere Wellenlänge als das eingestrahelte Licht. Es tritt eine Kühlung auf.

Jahr 1978 vorgeschlagen [15]. In dieser Veröffentlichung wird das Heizen- oder Kühlen eines atomaren Zwei-Niveau-Systems basierend auf dem Energieverlust während kollisionsinduzierter Anregung von Atomen diskutiert. Unmittelbar daran anschließende Experimente mit moderaten Puffergasdrücken konnten zu diesem Zeitpunkt jedoch keine Kühlung, sondern nur Heizung für blau-verstimmt eingestrahelte Laserstrahlung beobachten [63]. In diesen Experimenten wurden Gase von vergleichsweise moderatem Druck (6 – 40 mbar) verwendet. Experimentell erstmals beobachtet wurde eine Redistributionslaserkühlung im Jahr 2009 [16]. Dabei wurden Puffergasdrücke im Bereich von 230 bar verwendet, bei denen die Druckverbreiterung in Frequenzeinheiten im Bereich der thermischen Energie $k_B T$ liegt.

Hinsichtlich der als Puffergase verwendeten Edelgase spielt deren Reinheit für die Experimente eine entscheidende Rolle, wie sich experimentell gezeigt hat; die meisten Experimente wurden daher mit Argon mit Reinheit 6.0, entsprechend einer Reinheit von 99,99990 Volumenprozent, durchgeführt, um Fluoreszenzlöschung, das sog. Quenching, weitestgehend zu vermeiden. Bei diesem zum untersuchten Kühlprozess auftretenden, konkurrierenden Heizprozess wird die Anregungsenergie eines Atoms durch Stöße auf ein Fremdatom oder -molekül übertragen [64–66]. Es tritt somit ein strahlungsloser Übergang in den Grundzustand, mitunter über Zwischenniveaus, auf, und die thermische Energie verbleibt im System, es kommt zu einer Aufheizung. Wird weniger reines Edelgas verwendet, steigt die Anzahl der Verunreinigungen durch Stickstoff (N_2), sowie einiger Kohlenwasserstoffe, und ein vollständiges Erlöschen des Laserkühlprozesses ist möglich.

Ein weiterer, konkurrierender Heizprozess besteht im stoßinduzierten Energietransfer, engl. „energy pooling“. Bei diesem Vorgang stoßen zwei sich im $5P$ -Zustand befindende, angeregte Alkaliatome, woraufhin ein Atom abgeregt und das zweite in den $6P$ -Zustand angeregt wird [67]. Die Relaxation dieses Atoms in den Grundzustand zeigt sich im Experiment als deutlich sichtbare, blaue Fluoreszenzstrahlung bei einer Wellenlänge von $\lambda \approx 420$ nm für den Fall von Rubidiumatomen. Die vollständige Reaktionsgleichung für diesen Prozess lautet:



Die Summe der Energien der einfach angeregten Rubidiumatome vor dem Stoß ist höher als die des höher angeregten Atoms, die überschüssige Energie wird somit als kinetische Energie von beiden Stoßpartnern aufgenommen und verbleibt im System [68].

2.6 Wärmetransportgleichung

In diesem Abschnitt liegt der Fokus auf dem Verständnis des Wärmetransports anhand von Wärmeleitung. Ferner wird die Wärmetransportgleichung als Grundlage für die Simulationen zur Temperaturänderung in dichten atomaren Gasen, die in Kapitel 5 dargestellt werden, präsentiert.

Als Wärme bezeichnet man im Allgemeinen die bei einem Temperaturgradienten fließende Energie. Die hauptsächlichen Mechanismen der Wärmeübertragung sind Wärmeleitung/Konduktion, Konvektion, und Wärmestrahlung [69, 70]. Bei den betrachteten hohen Drücken dominiert der Prozess der Wärmeleitung.

Wärmeleitung bezeichnet den diffusen Energietransport durch Bewegung der Atome/Moleküle in Flüssigkeiten und Gasen, bzw. der Phononen in Festkörpern. Es findet kein Massentransport statt, obwohl der Wärmeübertrag mit der Anwesenheit von Materie verknüpft ist. Es soll hier die Wärmetransportgleichung angewendet werden, was eine Simulation der bei gegebener Kühlleistung erwarteter Temperaturänderung im Gas erlauben soll. Als Vorbereitung für das Verständnis der Wärmetransportgleichung soll nun das Fourier'sche Gesetz der Wärmeleitung anhand der Betrachtung einer Platte der Dicke Δx und der Fläche A , an deren gegenüberliegenden Seiten unterschiedliche Temperaturen $T_{1,2}$ auftreten, hergeleitet werden. Abbildung 2.5 zeigt die entsprechende Anordnung. Während der Zeit Δt fließt die Wärmemenge Q durch die Platte. Man beobachtet, dass die Wärmemenge proportional ist zur Differenz der Temperaturen $T_{1,2}$, zur Fläche, zur Zeit, sowie zur inversen Plattendicke:

$$Q \propto (T_1 - T_2) \frac{A}{\Delta x} \Delta t. \quad (2.48)$$

Experimentell kann man mit dieser Anordnung ebenfalls beobachten, dass die Wärmemenge vom Material der verwendeten Platte abhängig ist. Die Proportionalitätskonstante κ zu Gleichung 2.48 wird allgemein als Wärmeleitfähigkeit bezeichnet, sie ist ebenfalls temperaturabhängig:

$$Q = \kappa(T) \cdot (T_1 - T_2) \frac{A}{\Delta x} \Delta t. \quad (2.49)$$

Pro Zeiteinheit wird somit ein Wärmestrom \dot{Q} übertragen:

$$\dot{Q} := \frac{dQ}{dt} = \kappa(T) \cdot (T_1 - T_2) \frac{A}{\Delta x} \quad (2.50)$$

Betrachtet man den Wärmefluss $d\dot{Q}/dA$ in x -Richtung für den Grenzübergang $\Delta x \rightarrow 0$, ergibt sich das Fourier'sche Gesetz [70]:

$$\left(\frac{d\dot{Q}}{dA} \right)_x = -\kappa(T) \cdot \frac{\partial T}{\partial x} \quad (2.51)$$

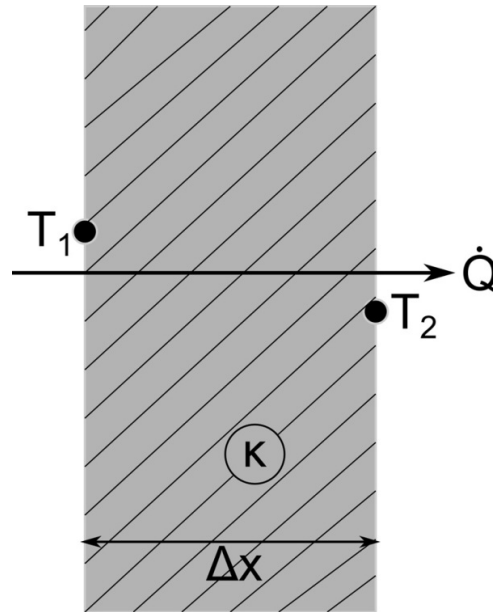


Abbildung 2.5: Stationäre Wärmeleitung durch eine Platte mit thermischer Leitfähigkeit κ . Durch das Temperaturgefälle von T_1 zu T_2 tritt ein Wärmestrom \dot{Q} durch die Platte auf.

Hierbei wird vorausgesetzt, dass die Wärmeleitfähigkeit κ nicht anisotrop ist, und somit nicht durch einen Tensor ausgedrückt werden muss. Dies ist für Gase erfüllt.

Aus diesem Gesetz (2.51) lässt sich unter Annahme der Energieerhaltung die Wärmeleitungsgleichung zu

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} - \nabla(\kappa \nabla T) = Q \quad (2.52)$$

herleiten, ρ bezeichnet hier die Dichte, C_p ist die Wärmekapazität bei konstantem Druck.

Die stationäre Form der Wärmeleitungsgleichung 2.52 lässt sich ebenfalls über Analogiebetrachtungen zu den Grundgleichungen der Elektrostatik herleiten [71].

Schreibt man die beiden Maxwell-Gleichungen für den elektrostatischen Fall mit Dielektrizitätskonstante ϵ :

$$\vec{\nabla} \cdot (\epsilon \vec{E}) = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (2.53)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = 0 \quad (2.54)$$

in anderer mathematischer Form:

$$\vec{E} = -\vec{\nabla} \phi \quad (2.55)$$

$$\vec{\nabla} \cdot (\epsilon \vec{\nabla} \phi) = -\frac{\rho}{\epsilon_0}, \quad (2.56)$$

so lässt sich der Wärmefluss wie in Gleichung 2.51 als Analogon zur elektrischen Feldstärke \vec{E} verstehen, der Temperatur T wird das elektrostatische Potential ϕ zugeordnet. Der Wärmeleitfähigkeit κ entspricht die Dielektrizitätskonstante ϵ . Gegenübergestellt ergibt sich:

$$\vec{E} = -\vec{\nabla} \phi \Leftrightarrow \left(\frac{d\vec{Q}}{dA} \right) = -\vec{\nabla} T \quad (2.57)$$

$$\vec{\nabla} \cdot (\epsilon \vec{\nabla} \phi) = -\frac{\rho}{\epsilon_0} \Leftrightarrow \vec{\nabla} \cdot (\kappa \vec{\nabla} T) = -Q \quad (2.58)$$

Es ist somit möglich, Lösungen für die statische Wärmetransportgleichung analog zu den Lösungen für die elektrostatischen Gleichungen 2.56 zu finden und sich entsprechend zu veranschaulichen.

Mithilfe der Wärmetransportgleichung 2.52 und einem Ausdruck für die Wärmequelle/-senke Q , der von verschiedenen Experimentparametern sowie ortsabhängig, $Q = Q(r, z)$, abhängig ist, lässt sich die Temperaturverteilung infolge der Redistributionslaserkühlung im dichten Gas simulieren. Dies ist Gegenstand von Kapitel 5 und wird dort sowohl zeitabhängig, als auch in stationärer Form genauer dargestellt.

3 Experimenteller Aufbau und Messmethodik

In diesem Kapitel werden die in den Experimenten verwendeten Hochdrucksichtzellen (Abschnitt 3.1) und die verwendeten Laser (Abschnitt 3.2) beschrieben, sowie die beiden experimentellen Aufbauten erläutert, die der spektroskopischen Messung der Fluoreszenzredistribution dienen (Abschnitt 3.3). Eine Beschreibung der zur Temperaturverteilungsmessung verwendeten Technik der thermischen Ablenkungsspektroskopie erfolgt in Abschnitt 3.4 dieses Kapitels.

3.1 Die Hochdrucksichtzellen

Im Hinblick auf Experimente zur Laserkühlung dichter atomarer Gase bedarf es geeigneter Rezipienten, um die Voraussetzungen hoher Puffergasdrücke und hoher Alkaliatomdichten zu gewährleisten. Im Folgenden sollen daher die für die Experimente verwendeten, unterschiedlichen Hochdrucksichtzellen vorgestellt und ihre Vor- und Nachteile dargestellt werden. Es handelt sich um zwei kommerziell gefertigte Sichtzellen der Firma Sitec Sieber Engineering, und zwei Hochdrucksichtzellen, die in der Feinmechanikwerkstatt des Instituts für Angewandte Physik angefertigt wurden. Von beiden Zellenkonzepten gab es zu Beginn der dieser Arbeit zugrunde liegenden Experimente je eine Version. Jeweils eine weitere Version für die Zellen dieser „zweiten“ Generation wurde anhand eigener Vorschläge weiterentwickelt und verbessert. Somit standen für die in Kapitel 4 beschriebenen Experimente schließlich vier geeignete Rezipienten zur Verfügung. Bei allen vier Sichtzellen werden Saphirfenster verwendet, da sich die Alkaliatome an Quarzglasfenstern bei Temperaturen oberhalb von ungefähr 150°C ablagern würden bzw. in das Glas hinein diffundieren. Saphir kann in den erforderlichen Temperaturbereichen den Alkalidämpfen ausgesetzt werden und besitzt außerdem genügend mechanische Stabilität, um hohen Puffergasdrücken ausgesetzt zu werden.

Zum Ende dieser Arbeit erfolgte die Fertigstellung einer nach eigenen, aufgrund experimenteller Anforderungen entstandenen Ideen und durch die Firma Nova Swiss hergestellten Hochdrucksichtzelle, die anders als die vier zuvor verwendeten Rezipienten vier optische Sichtzugänge besitzt, sodass eine der beiden senkrecht zueinander stehenden optischen Achsen von der anderen komplett 'eingesehen' werden kann. Der Aufbau dieser Zelle wird in Abschnitt 3.1.3 genauer beschrieben.

3.1.1 Selbst konstruierte Zellen

Die erste Version der selbst konstruierten Zelle wurde im Rahmen einer Diplomarbeit [72] im Jahr 2008 entworfen und durch die Feinmechanische Werkstatt des Instituts für Angewandte Physik gefertigt. Eine schematische Darstellung dieser Zelle ist in Abbildung 3.1 gezeigt.

Gefertigt wurden beide Zellen dieser Art aus hochwarmfestem Stahl (Werkstoffnummer 1.7335), der einen Betrieb bei hohen Temperaturen und hohen Puffergasdrücken erlaubt. Durch zwei gegenüberliegende Saphirfenster wird ein optischer Zugang gewährleistet. Senkrecht dazu befindet sich das Reservoir für mit Alkalimetallen gefüllte Glasampullen. Hier ist die Zelle auf einer Länge von mehreren Zentimetern entsprechend verjüngt, sodass durch getrenntes elektrisches Heizen des Reservoirs anhand von Heizbändern die Temperatur dieses Bereichs begrenzt unabhängig von der Betriebstemperatur des umliegenden Zellkörpers realisiert werden kann, um einen für die Experimente ausreichenden Alkalidampfdruck - wie in Abschnitt 2.1 theoretisch berechnet und dargestellt - zu gewährleisten. (Eine genauere Beschreibung des Heizens der Zellen erfolgt in Abschnitt 3.1.4.) In das Reservoir wird jeweils eine Glasampulle, die ein Gramm des jeweiligen Alkalimetalls enthält, eingeführt.

Verschlossen wird das Reservoir, wie auch die gegenüberliegende Öffnung, durch die beispielsweise ein Probenhalter wie für die Experimente mit Wellenleitern, in die Zelle integriert werden

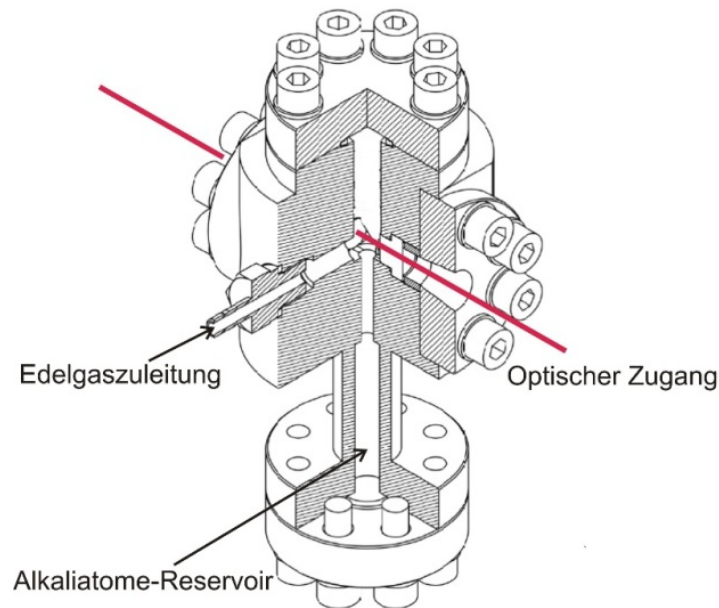


Abbildung 3.1: Schematische Ansicht des Designs der selbst konstruierten Zellen aus dem Jahr 2008 nach [73].

kann [74]², mit einem Blindflansch. Ursprünglich wurden beide Blindflansche unter Verwendung von CF-Dichtringen an den Zellkörper geschraubt und gedichtet. Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten stellte sich jedoch heraus, dass durch die dauerhaft hohen Betriebstemperaturen der Zelle von über 300°C die Kupferinge schnell weich und die Zellen somit undicht wurden, sodass sie durch Nickelringe ersetzt wurden. Hiermit ließen sich längere Laufzeiten im Hinblick auf die Dichtigkeit der Zellen realisieren. Ähnliche Beobachtungen wurden im Bereich der Dichtungen an den Fenstern gemacht. Die 5 mm dicken Saphirfenster mit einem Sichtfelddurchmesser von 10 mm werden jeweils auf einen versilberten Nickel-C-Dichtring aus Inconel X-750³ in die Aussparungen des Zellkörpers gelegt. Von der anderen Seite wurde anfänglich mit einem Dichtring aus Kupfer gedichtet, der vom entsprechenden Flansch auf das Saphirfenster gedrückt wurde. Auch hier zeigte sich jedoch die bessere Langzeitstabilität von Nickelringen, sodass ebenfalls ein Materialwechsel stattfand. Seither kann eine Dichtigkeit dieser Zellen von mehreren Wochen erreicht werden. Mit den hinsichtlich ihrer Geometrie einfachsten Fenstern besitzen die beiden Zellen eine innere optische Weglänge von 20 mm. Durch Verwendung von gestuften Fenstern mit einem T-förmigen Querschnitt lässt sich diese Weglänge auf bis zu 4 mm verkürzen. Ein solches gestuftes Fenster ist in Abbildung 3.2 gezeigt. Somit lassen sich größere Alkaliatomdichten gemessen am reduzierten Zellvolumen erreichen.

Das Befüllen dieser Hochdrucksichtzellen mit einem Edelgas erfolgt über einen Einschraubadapter⁴ wie in Abb. 3.1 dargestellt. Mittels eines T-Stücks kann hier auch ein Rohrfederanometer⁵ an den Zellkörper angeschlossen werden, sodass die Dichtigkeit der Zellen im Verlauf der jewei-

²Für Experimente mit Wellenleitern wurde bei der selbst konstruierten Zelle der zweiten Generation die Position des Gaszufuhreinschraubadapters etwas zur Seite versetzt, um die Wellenleiter keinem senkrechten Gasstrom beim Befüllen der Zelle auszusetzen.

³Inconel ist der Name einer Reihe von korrosionsbeständigen Nickel-Legierungen, die sich besonders für Hochtemperaturwendungen eignen.

⁴Firma Hoke, Artikelnr. 6CM4-316/MMRS-ITA

⁵Firma Manometer-Preiss Empeo



Abbildung 3.2: Seitenansicht eines gestuften Saphirfensters zur Reduktion der optischen Weglänge in den selbstkonstruierten Zellen.

ligen Experimente überprüft werden kann.

Ein Vorteil dieser Hochdrucksichtzellen besteht in der einfachen Handhabbarkeit im Hinblick auf das Auswechseln und Erneuern von Dichtungen und Fenstern, und die Möglichkeit, die Dicht- und Auflageflächen regelmäßig in der Institutsfeinmechanikwerkstatt nachbessern bzw. polieren zu lassen. Trotz der Tatsache, dass die Zellen auf Temperaturen bis 500°C und Drücken bis 500 bar ausgelegt sind, zeigte sich, dass ein längeres, kontinuierliches Arbeiten nur bei Temperaturen von bis zu 350°C und Drücken von ungefähr 250 bar möglich war, da bei höheren Temperaturen und Drücken zumeist das Dichtprinzip im Bereich der Saphirfenster dahingehend versagte, dass eines oder beide Fenster brachen. Deshalb wurden diese Zellen zumeist eingesetzt, um verschiedene Tests durchzuführen, etwa die Eignung anderer Edelgase für das Kühlverfahren (Abschnitt 4.2.2) im Hinblick auf ihre geringere Reinheit als das in den ersten Experimenten [16] verwendete Argon 6.0, wohingegen für die meisten Messungen zur Laserkühlung dichter atomarer Gase die im folgenden beschriebenen, kommerziellen Zellen mit einer optischen Achse verwendet wurden, die eine wesentlich höhere Stabilität bei höheren Temperaturen aufweisen.

3.1.2 Kommerzielle Sichtzellen mit einer optischen Achse

Neben den beiden selbst konstruierten Hochdrucksichtzellen stehen für die Experimente zwei Sichtzellen zu Verfügung, die von der Schweizer Firma Sitec Sieber Engineering ebenfalls aus hochwarmfesten Stahl (Werkstoffnummer 1.4980) gefertigt wurden. Der optische Zugang wird hier ebenfalls durch zwei gegenüberliegende Saphirfenster realisiert, Unterschiede gibt es jedoch hinsichtlich des Dichtprinzips; hier findet das Bridgman-Dichtverfahren [75] Anwendung. Die Saphirfenster (Sichtfelddurchmesser 18 mm) werden vom Hersteller am Rand mit Metall bedampft, um im Anschluss daran stabiler in Metallstopfen eingespannt werden zu können, auf die oberhalb des jeweiligen Fensters je zwei Dichtringe aus Silber und einer aus Graphit angebracht werden, wie in Abb. 3.3 schematisch dargestellt. Diese Stopfen werden in die entsprechenden Aussparungen des Zellkörpers eingelegt und durch eine oberhalb aufliegenden Druckschraube angepresst. Im Inneren des Zellkörpers beträgt die optische Weglänge 10 mm.

Beide Zellen besitzen an der Oberseite eine Möglichkeit, einen Adapter für die Gaszufuhr bzw. ein Manometer anzuschrauben, sowie an der Unterseite eine Öffnung mit Gewinde, um ein Reservoir aus gleichem Material anzuschrauben, das eine mit dem jeweiligen Alkalimetall befüllte Ampulle enthält. Somit kann dieses Reservoir, ähnlich wie bei den selbst konstruierten Zellen, unabhängig vom restlichen Zellkörper beheizt werden, um geeignete Partialdrücke der Alkalimetalle zu gewährleisten. Enthielt die kommerzielle Zelle der ersten Generation noch zusätzlich zwei seitliche Öffnungen, durch die beispielsweise ein Probenhalter oder Temperaturfühler in die Zelle

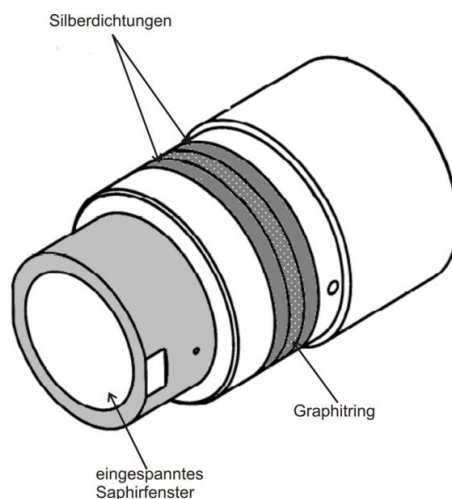


Abbildung 3.3: Schematische Ansicht eines Fensterstopfens der kommerziellen Zellen gemäß [76]. Der Rand des Saphirfensters ist metallisch bedampft und an der Vorderseite des Stopfens eingespannt. Oberhalb dessen werden die drei Dichtungen auf den Stopfen aufgebracht, die beim Einlegen und Anpressen den Zellkörper dichten.

eingebraucht werden konnten, wurde bei der Zelle der zweiten Generation auf diese zusätzlichen, vormals selten verwendeten Zugänge verzichtet, um mögliche Undichtigkeiten auszuschließen und den Zellkörper homogener heizen zu können (Vgl. Abschnitt 3.1.4). Eine Messung eines lasergekühlten Gases mittels eines Temperaturfühlers bot sich nicht an, da sich die Rubidiumatome stets am Fühler agglomerierten und dort während des Experimentbetriebs nicht mehr abzulösen waren, sodass der Fühler schließlich entfernt wurde.

Die neuere Zelle ist schematisch in Abbildung 3.4 dargestellt. Im Vergleich zur „älteren“ Zelle wurde bei dieser Sichtzelle auch der Zugang vom Reservoir in den Zellkörper bewusst im Durchmesser vergrößert, um das Risiko einer zuvor einige Male aufgetretenen Verstopfung durch angelagerte Alkaliatome deutlich zu reduzieren und somit eine verlässlichere Diffusion des Alkalidampfs in das Zellvolumen zwischen den Sichtfenster zu gewährleisten.

Die Zelle ist ausgelegt auf Drücke bis zu 1000 bar und Temperaturen bis 450°C. Bei Drücken von bis zu 230 bar und Temperaturen bis 450°C konnten bei diesen Zellen Dichtigkeiten von mehreren Monaten beobachtet werden. Die höheren Betriebstemperaturen erlauben eine ca. sechsfach höhere Teilchenzahldichte (siehe Abschnitt 2.1) der jeweiligen Alkalispezies, sodass diese beiden Sichtzellen vorrangig für Experimente zur Laserkühlung eingesetzt wurden.

Nachteilig an dem beschriebenen Dichtprinzip ist die Tatsache, dass es aufgrund der Beschaffenheit der Dichtringe auf dem Fensterstopfen kaum möglich ist, Dichtungen und Fenster selbst zu wechseln, sodass nach mehreren Experimentphasen die jeweilige Zelle zum Hersteller eingeschickt werden musste, um dort nachgebessert bzw. repariert zu werden. Der Hersteller empfiehlt zur längeren Haltbarkeit der Dichtungen, die Fensterstopfen nicht zu demontieren, um feine Beschädigungen des Graphittrings zu vermeiden, was eine Reinigung des Zellkörpers im Ultraschallbad somit ausschließt. Zwischen den Experimentierzeiten ist es jedoch notwendig, die Zellkörper gründlich zu reinigen, um Verunreinigungen zu reduzieren. Ferner ist aufgrund der Bridgmandichttechnik ein Ausheizen bei gleichzeitigem Evakuieren der Zelle auf Unterdrücke kaum möglich; bei Drücken von bis zu 10^{-2} mbar kann die Zelle nur auf 85°C geheizt werden, um die Stabilität der Befestigung der Saphirfenster auf dem Zellstopfen nicht dauerhaft zu beschädigen. Eine ausreichende Zellreinigung ist somit erst nach wesentlich längerer Zeit realisierbar.

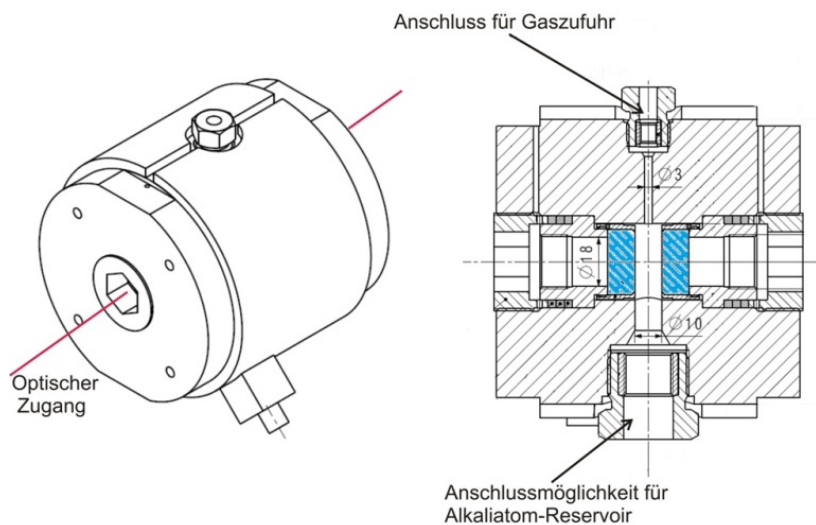


Abbildung 3.4: Schematische Ansicht der Zelle der zweiten Generation der Firma Sitec, Darstellung nach [76]. Links im Bild ist die Zelle mit einer konfektionierten Heizmanschette abgebildet, rechts ist ein vertikaler Schnitt durch den Zellkörper dargestellt. In blau unterlegt sind die Saphirfenster.

3.1.3 Kommerzielle Sichtzelle mit zwei optischen Achsen

Während des Experimentierens mit den verschiedenen Hochdrucksichtzellen zeigte sich, dass es von Vorteil wäre, mit einem Rezipienten zu arbeiten, der zwei optische Achsen besitzt. Dies würde beispielsweise eine Temperaturmessung mittels thermischer Ablenkungsspektroskopie (wie in Abschnitt 3.4 beschrieben wird) bei gleichzeitiger Messung der Fluoreszenz im konfokalen Aufbau wie nachfolgend im Abschnitt 3.3 erläutert, ermöglichen, sowie, bei geeigneter Orientierung der beiden optischen Achsen zueinander, eine vollständige Einsicht in die Kühlregion erlauben. Ferner kann es bei der Suche nach alternativen Methoden zur Temperaturbestimmung, beispielsweise durch optische Tomographie [77–81], sinnvoll sein, senkrecht zur Richtung des Kühllaserstrahles zusätzlich einen Laserstrahl einstrahlen zu können, um zusätzliche Informationen zu gewinnen.

Mit diesen und Vorgaben hinsichtlich Temperatur-, Druck- und Alkalidampf-Beständigkeit entstand in enger Kollaboration mit der Firma Nova Swiss eine entsprechende Hochdrucksichtzelle. Die beiden optischen Achsen stehen senkrecht zueinander, und die Durchmesser der Saphirfenster sind so gewählt, dass eine der beiden optischen Weglängen zwischen den Fenstern senkrecht dazu komplett eingesehen werden kann. Ebenso wie die beiden Zellen der Firma Sitec besitzt diese Zelle ein einschraubbares Reservoir für die Ampulle mit der jeweiligen Alkalispezies, sowie einen Zugang für das Einfüllen des Edelgases bzw. Befestigen von Manometer und geeignetem Ventil. Abbildung 3.5 zeigt die Zelle aus einer Seitenansicht, sowie von oben. Abbildung 3.6 zeigt eine schematische Darstellung der Anordnung der vier Saphirfenster zueinander. Wird der Kühllaserstrahl durch eines der schmaleren (6 mm Sichtfelddurchmesser) Saphirfenster eingestrahlt, kann die Kühlregion durch eines der beiden breiteren (15 mm Sichtfelddurchmesser) Fenster beispielsweise mit einer Kamera oder durch das Einstrahlen eines zweiten Lasers und Detektion mit einer Photodiode vollständig eingesehen werden.

Das Dichtsystem im Bereich der Fenster unterscheidet sich von dem der anderen Zellen: bei diesem Zellentyp liegt das jeweilige Fenster auf einem dünnen Nickelring mit Aussparung für das Sichtfeld, von der anderen Seite wird es mit einem aufliegenden Hohlzylinder aus dem gleichen Material wie die Zelle fixiert und schließlich durch eine mit definiertem Drehmoment anziehbare

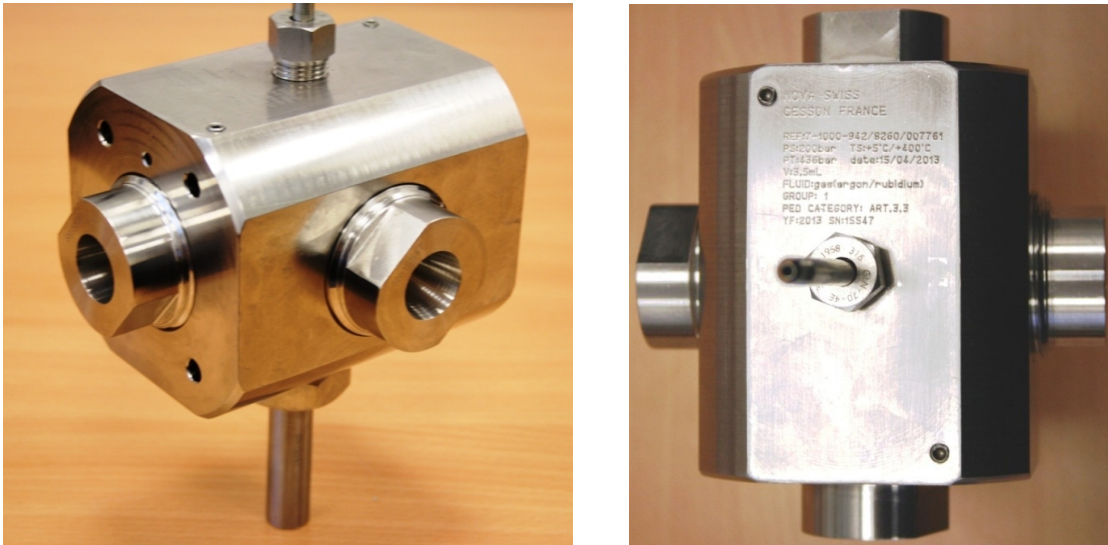


Abbildung 3.5: Zwei Ansichten der Hochdrucksichtzelle mit zwei optischen Achsen. Von unten kann das Reservoir in den Zellkörper geschraubt werden, oben am Zellkörper kann die Gaszufuhr mit Ventil und Manometer eingeschraubt werden. Senkrecht zueinander stehen die beiden optischen Achsen mit den vier Saphirfenstern. Die Fenster werden von Druckschrauben im Zellkörper fixiert.

Druckschraube (wie in Abbildung 3.5 zu erkennen) im Zellkörper gehalten.

Der Arbeitsbereich dieser Zelle liegt bei Temperaturen bis 400°C und Drücken bis 230 bar. Bei ersten Tests dieser Zelle zeigte sich eine vollständige Dichtigkeit im zugelassenen Druck- und Temperaturbereich, sodass zukünftige Experimente möglich sind.

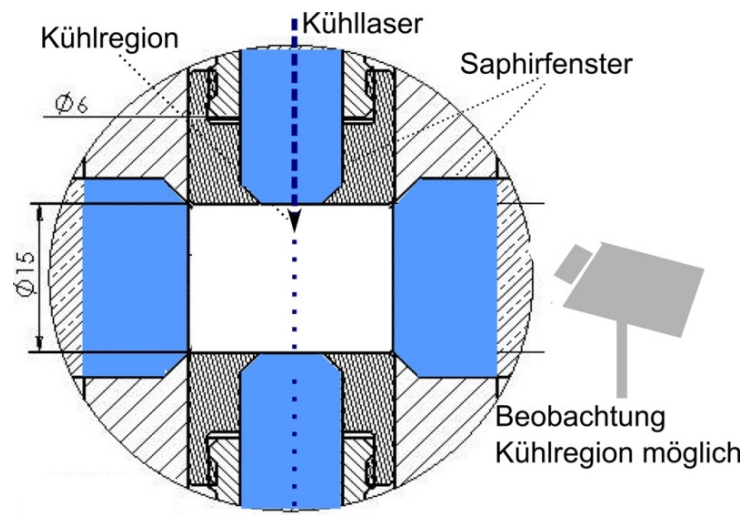


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der Konfiguration der vier Saphirfenster, blau unterlegt, in der Sichtzelle gemäß [82]. Bei Einstrahlen des Kühllaserstrahls durch eines der beiden schmaleren Fenster kann die direkt hinter dem Eintrittsfenster lokalisierte Kühlregion senkrecht dazu durch die beiden breiteren Saphirfenster beobachtet werden.

3.1.4 Elektrische Heizung der Zellen

Das Heizen der Zellen erfolgt mittels elektrischen Heizbändern sowie Heizpatronen bzw. die für die beiden Zellen der Firma Sitec verwendeten keramischen, passgenau konfektionierten Heizmanschetten, die mitsamt Temperaturfühler an einen Mehrkanalheizregler⁶ angeschlossen werden. Die Verwendung dieses Reglers ermöglicht ein homogenes Aufheizen des Zellkörpers über das Einstellen einer gleichmäßigen Erhöhung der Temperatur für jeden einzelnen Kanal, um mechanische Spannungen zu reduzieren und somit Beschädigungen im Bereich der Saphirfenster zu vermeiden. Das getrennte Aufheizen von Zellkörper und jeweiligem Reservoir durch Verwenden mehrerer Heizbänder und Temperaturfühler wird derart durchgeführt, dass der Bereich der Fenster nicht am kältesten ist, da sich dort ansonsten Alkaliatome niederschlagen und weiteres Experimentieren mit der entsprechenden Zelle ohne vorherige Grundreinigung unmöglich würde.

3.2 Das Lasersystem

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente wurden zwei verschiedene Laser verwendet, um sowohl die Vorteile spektral weiter Durchstimmbarkeit, als auch die Möglichkeit, mit hoher Leistung bei fester Wellenlänge zu experimentieren, ausnutzen zu können. Für Messungen von Fluoreszenz- und Absorptionsspektren ist es essentiell, mit unterschiedlichen eingestrahlten Wellenlängen zu arbeiten und somit einen in der Wellenlänge verstimmbaren Laser zu verwenden. Dies wurde mit einem Titan:Saphir-Laser realisiert, wie in Abschnitt 3.2.1 genauer erläutert. Für Messungen zur Laserkühlung mit Rubidiumatomen und verschiedenen Puffergasen wurden neben den Messungen, die mit dem Titan:Saphir-Laser durchgeführt wurden, auch Messungen mit einem Diodenlaser mit fester Wellenlänge und einer optischen Ausgangsleistung von 25 W als Kühllaser durchgeführt. Dieser Laser wird mitsamt des verwendeten optischen Aufbaus, an den bedingt durch die Strahlcharakteristik andere Anforderungen an die verwendeten Optiken gelten, in Abschnitt 3.2.2 dargestellt.

3.2.1 Titan:Saphir-Laser

Die oben genannten Anforderungen hinsichtlich der Durchstimmbarkeit, sowie einer geeignet hohen Ausgangsleistung erfüllt der verwendete Titan:Saphir-Laser⁷, der von einem Diodengepumpten Festkörperlaser⁸ mit maximal 18 W gepumpt eine Ausgangsleistung von bis zu 3,5 W liefert. Der Titan:Saphir-Laser ist über das Drehen eines Lyot-Filters, sowie unter Verwendung verschiedener Auskoppelspiegel des Ringresonators in einem Wellenlängenbereich von 700 nm bis zu ca. 950 nm durchstimmbar.

3.2.2 Diodenlaser

Um die Kühlung von Rubidiumatomen in unterschiedlichen Puffergasen bei hohen Leistungen zu untersuchen, wurde ein fasergekoppelter Diodenlaser⁹ bei einer festen Wellenlänge von 808 nm mit einer Ausgangsleistung von 25 W angeschafft. Messungen mit dem Titan:Saphir-Laser zeigen, dass bei dieser Wellenlänge und entsprechenden experimentellen Bedingungen die Temperaturänderung gut zu beobachten ist. Der aus der Faser (Faserdurchmesser 200 μm , numerische Apertur 0,22) austretende Strahl ist sehr divergent und besitzt kein Gauß'sches Intensitätsprofil (Die die Strahlqualität beziffernde Beugungsmaßzahl M^2 beträgt entsprechenden Messungen zufolge ungefähr 100), weshalb sich das Fokussieren des Strahls auf geeignete Durchmesser anfänglich

⁶Fa. Horst, Typ HT60

⁷MBR 110, Fa. Coherent

⁸Verdi V18, Fa. Coherent

⁹MINI, Firma Dilas

als schwierig erwies. Aufgrund der Geometrie der Zelle, insbesondere hinsichtlich der Fensterdicken, und der Tatsache, dass die Sichtzellen stark geheizt werden, ist es wünschenswert, einen hinreichend großen Arbeitsabstand zwischen der Fokussieroptik und der Zelle zu realisieren. Ließ sich der Laserstrahl auf sehr kurze Distanzen (ca. 75 mm) geeignet fokussieren, konnte dies für wünschenswerte Abstände (ca. 30 cm) weder mit Plankonvex-Linsen, Kondenserlinsen, noch mit Achromatenpaaren erreicht werden. Mittels speziell angefertigter, silberbeschichteter Kupferparabolspiegel ließ sich der Laserstrahl schließlich in einem (2:1)-Teleskopaufbau bestehend aus zwei Parabeln (Durchmesser $d = 100 \text{ mm}$) mit Brennweiten $f = 200 \text{ mm}$ und $f = 400 \text{ mm}$ auf einen Durchmesser von $450 \mu\text{m}$ fokussieren. Eine schematische Darstellung dieses Aufbaus ist in Abbildung 3.7 gezeigt; die mit diesem Laser durchgeführten Messungen werden in Abschnitt 4.2.4 dargestellt und erläutert.

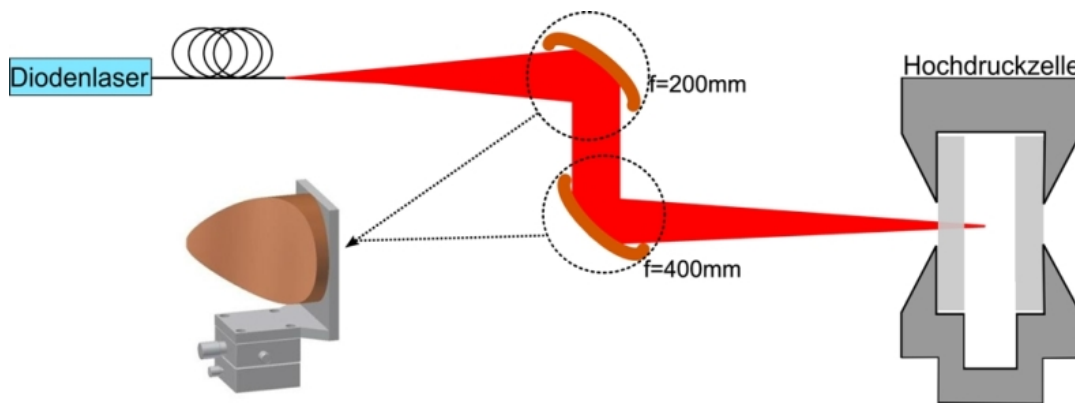


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung des Aufbaus mit den verwendeten Kupferparabolspiegeln zur Fokussierung des Faser-gekoppelten Diodenlasers. Aufgrund der Masse der Parabolspiegel von ungefähr 4 kg werden selbst konstruierte Aluminium-Halter und je zwei Goniometer verwendet, um den Spiegel geeignet verkippen zu können. Unter Verwendung eines (2:1)-Teleskopaufbaus wird ein Fokusedurchmesser von ungefähr $450 \mu\text{m}$ erreicht.

3.3 Fluoreszenzspektroskopie

In den Abbildungen 3.8 und 3.9 sind schematisch zwei unterschiedliche, im Rahmen der Arbeit verwendete Aufbauten zur Messung von Fluoreszenzspektren gezeigt, bei denen die Wellenlänge des eingestrahlteten Lasers variiert wurde, um beispielsweise die Redistribution der Fluoreszenz zu beobachten. Eine genauere Erläuterung dieser Messungen und ihrer Ergebnisse erfolgt in Abschnitt 4.1.

Der in Abbildung 3.8 skizzierte konfokale Aufbau erlaubt die Detektion atomarer Fluoreszenz mit einer hohen Tiefenschärfe, da sowohl der stark fokussierte, in die Zelle eingestrahltete Laserstrahl, wie auch die Fluoreszenz in Rückrichtung mittels konfokaler Lochblenden räumlich sehr stark gefiltert werden. Derartiges Filtern der Fluoreszenz reduziert Streulicht, beispielsweise durch Reflexionen am Eintrittsfenster der Hochdrucksichtzelle. Das Fluoreszenzsignal wird im Anschluss an das räumliche Filtern mittels eines optischen Spektrometers aufgenommen. Ein auf diese Weise aufgenommenes Fluoreszenzspektrum ist im nachfolgenden Kapitel 4.1 zu sehen. Dieser Aufbau erlaubt jedoch keine gleichzeitige Messung der Temperaturänderung durch das hauptsächlich angewendete Verfahren der thermischen Ablenkungsspektroskopie (siehe Abschnitt 3.4), da eine Variation der Abstände zwischen Kühl- und nicht-resonantem Tastlaserstrahl durch die Verwendung des Achromaten zur Fokussierung des Kühlaserstrahls direkt vor der Zelle ver-

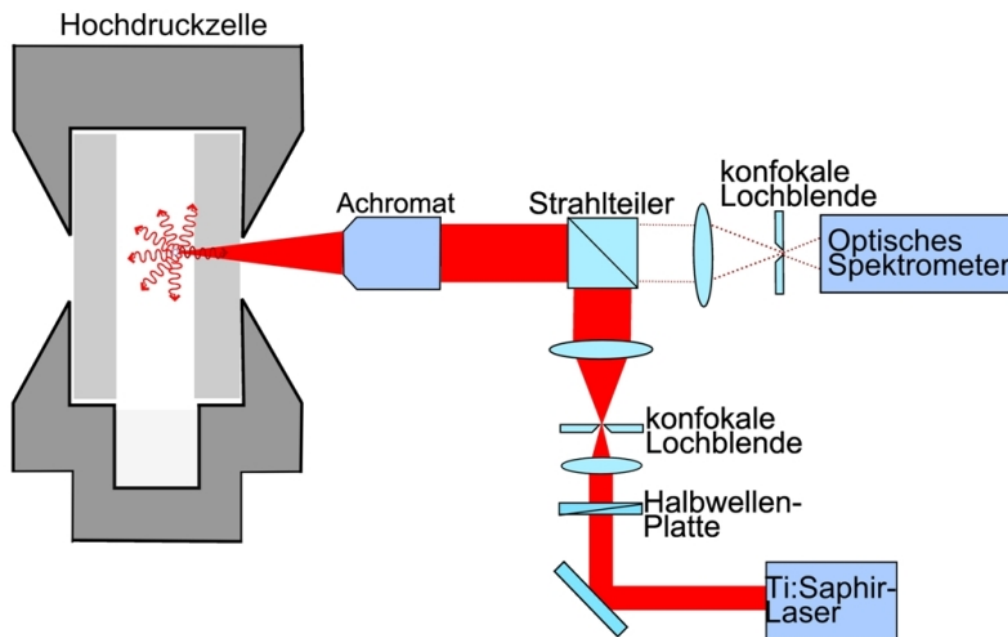


Abbildung 3.8: Schematische Ansicht des konfokalen Aufbaus zur Detektion atomarer Fluoreszenz. Eine hohe Tiefenschärfe der mittels eines optischen Spektrometers aufgenommenen atomaren Fluoreszenz wird durch starkes räumliches Filtern mit konfokalen Lochblenden sowohl des eingestrahlichten Laserlichtes, als auch der in Rückrichtung betrachteten Fluoreszenz erreicht.

hindert wird. Für solche „gleichzeitigen“ Messungen von Temperaturänderung und Fluoreszenz in der gekühlten Region wird ein Aufbau verwendet wie in Abbildung 3.9 dargestellt.

Der weniger stark als im konfokalen Aufbau fokussierte Kühlaser wird in die Hochdrucksichtzelle eingestrahlt. Die Fluoreszenz wird nun nicht mehr in exakter Rückrichtung, sondern unter einem flachen Winkel zum eingestrahlichten Laser mithilfe eines konkaven Spiegels auf eine Lochblende fokussiert. Diese ermöglicht eine ausreichende räumliche Filterung des Fluoreszenzsignals, das anschließend ebenfalls mit einem optischen Spektrometer detektiert und aufgezeichnet wird. Dieser Aufbau wurde vor allem für eine qualitative Fluoreszenzdetektion zur Überprüfung der Redistribution verwendet, Fluoreszenzspektren mit besserem Signal-zu-Untergrund-Verhältnis lieferte einzig der konfokale Aufbau.

Eine Messung der Fluoreszenz in Transmission bietet sich bei hohen optischen Dichten aufgrund von Reabsorptionsprozessen nicht an. Die in der Kühlregion emittierten Fluoreszenzphotonen werden beim Durchgang durch die dichte Gasmischung reabsorbiert. Hinter der Zelle kann daher nur Licht detektiert werden, das mehrfach absorbiert wurde und dem tatsächlichen Fluoreszenzspektrum der dichten Gasmischung nicht entspricht.

3.4 Thermische Ablenkungsspektroskopie

Um die Temperaturänderung in dichten Gasen quantitativ zu bestimmen, wird die Technik thermischer Ablenkungsspektroskopie [83–85] verwendet. Die Grundidee dieser Technik besteht darin, dass sich durch die Absorption des Laserstrahls im Gas und der daraus resultierenden Temperaturänderung (Heizen oder Kühlen) eine lokale Dichteänderung ausbildet, die mit einer Änderung des Brechungsindexprofils einher geht. Wird nun ein zweiter, nicht-resonanter Laserstrahl (nachfolgend auch als Taststrahl bezeichnet) parallel zum absorbierten Laserstrahl in das Gas eingestrahlt, erfährt dieser infolge des veränderten Brechungsindex eine messbare

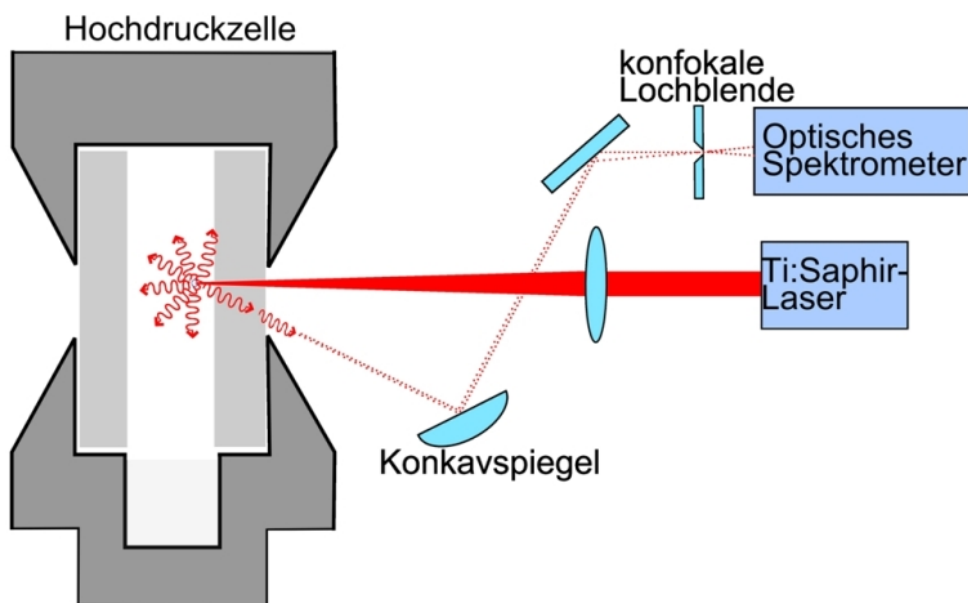


Abbildung 3.9: Schematische Ansicht des Aufbaus zur Detektion atomarer Fluoreszenz, der eine gleichzeitige Messung der Temperaturänderung mittels thermischer Ablenkungsspektroskopie erlaubt (Zur besseren Übersichtlichkeit ist der nicht-resonante Taststrahl nicht eingezeichnet.). Der Kühllaser wird in die Hochdrucksichtzelle eingestrahlt, die Fluoreszenzphotonen, die unter einem flachen Winkel zur Rückrichtung aus der Zelle austreten, werden mit einem konkaven Spiegel auf eine Lochblende fokussiert und anschließend mit einem optischen Spektrometer detektiert.

Winkeländerung bezüglich seiner ursprünglichen Ausbreitungsrichtung, wie in Abbildung 3.10 schematisch dargestellt.

Wird der Abstand zwischen den beiden Laserstrahlen variiert, kann das Ablenkprofil in radiale Richtung vollständig gemessen werden, und damit zusammenhängend auf die Temperaturverteilung geschlossen werden. Im Fall der hier durchgeführten Experimente kann diese Ablenkung mit einer Positions-sensitiven Photodiode hinter der Hochdrucksichtzelle gemessen werden.

Im Folgenden wird der Zusammenhang zwischen dem messbaren Ablenkwinkel und der daraus zu berechnenden Temperaturverteilung orientiert an [84] dargestellt. Betrachtet man die Ausbreitung eines Laserstrahls mit Gauß'schem Intensitätsprofil durch ein räumlich veränderliches Brechungsindexprofil, ergibt sich die Änderung hinsichtlich der ursprünglichen Ausbreitungsrichtung z wie folgt:

$$\frac{d}{dz} \left(n_0 \frac{d\vec{r}}{dz} \right) = \nabla_{\perp} n(\vec{r}, t). \quad (3.1)$$

r bezeichnet hier die senkrechte Ablenkung des Taststrahls von seiner ursprünglichen Propagationsrichtung, n_0 ist der Brechungsindex des Gases unter Normalbedingungen, $\nabla_{\perp} n(\vec{r}, t)$ ist der Gradient des Brechungsindex senkrecht zur Strahlrichtung [86]. Die einmalige Integration von Gleichung 3.1 entlang der Ausbreitungsrichtung z (siehe Skizze 3.10) liefert einen Zusammenhang zwischen dem (messbaren) Ablenkwinkel φ und der räumlichen Änderung des Brechungsindex:

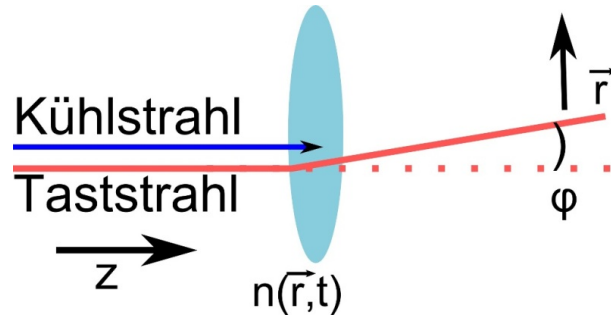


Abbildung 3.10: Skizze zur Verdeutlichung der Änderung seiner Ausbreitungsrichtung um den Winkel φ eines Taststrahles aufgrund der Propagation durch ein räumlich veränderliches Brechungsindexprofil.

$$\varphi = \frac{d|\vec{r}|}{dz} \quad (3.2)$$

$$= \frac{1}{n_0} \int \nabla_{\perp} n(\vec{r}, t) dz \quad (3.3)$$

$$= \frac{1}{n_0} \int \frac{dn}{dr} dz \quad (3.4)$$

Betrachtet wird hier der Fall kleiner Ablenkwinkel φ in radiale Richtung r , da der Ausdruck gemäß $dr/dz = \tan \Phi \approx \Phi$ genähert wurde. Um die Gleichung für den Ablenkwinkel als Funktion der Temperaturänderung zu betrachten, wird Gleichung 3.4 entsprechend weiter umgeformt:

$$\varphi = \frac{1}{n_0} \int \frac{dn}{dr} dz \quad (3.5)$$

$$= \frac{1}{n_0} \int \frac{dn}{dT} \frac{dT}{dr} dz. \quad (3.6)$$

Betrachtet man Gleichung 3.6, bietet es sich an, den Ausdruck dn/dT noch zu vereinfachen, um einen Ausdruck für die Temperaturänderung zu erhalten, der nur von experimentellen Parametern bzw. Messgrößen abhängig ist. Da zu dn/dT nur zwei Mechanismen beitragen können [83], thermische Ausdehnung, sowie thermisch bedingte Verschiebungen der Absorptionsbänder des Mediums, und letzteres durch geeignete Wahl des Tastlasers abseits von starken Absorptionsbändern ausgeschlossen werden kann, lässt sich der Ausdruck gemäß der Lorentz-Lorenz-Beziehung [87]

$$\frac{1}{\rho} \left(\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right) = \text{const.} \quad (3.7)$$

weiter vereinfachen. ρ bezeichnet hier die Dichte des betrachteten Mediums. Für ideale Gase lässt sich unter der Annahme, dass der Brechungsindex n näherungsweise gleich Eins ist, über die Vereinfachung der Ableitung nach der Temperatur von Gleichung 3.7 der folgende Ausdruck für dn/dT erhalten:

$$\frac{dn}{dT} \approx -\frac{(n-1)}{T}. \quad (3.8)$$

Eingesetzt in Gleichung 3.6 ergibt sich damit:

$$\varphi = - \int \frac{(n-1)}{T} \frac{dT}{dr} dz. \quad (3.9)$$

Für eine grobe Abschätzung zur Auswertung der Messdaten wird im Folgenden die starke Vereinfachung gemacht, dass der erste Bruch in Gleichung 3.9, $(n - 1)/T$, eine Konstante ist und sich entlang der Ausbreitungsrichtung z der eingestrahlenen Laser nicht ändert:

$$\varphi = -\frac{(n - 1)}{T} \int \frac{dT}{dr} dz. \quad (3.10)$$

Diese Annahme wird für eine erste, einfache Abschätzung der Temperaturänderung gemacht; eine gute Näherung ist dies nur für den Fall, dass die durch die Kühlung erreichte Temperaturänderung viel kleiner ist als die absolute Temperatur ist. Eine genauere Betrachtung erfolgt im Rahmen der Simulationen in Kapitel 5, wo anstatt der Näherung aus Gleichung 3.8 die vollständige Temperaturverteilung in die Berechnung der relativen Temperaturänderung eingeht, bzw. wie im Rahmen der Simulationen erläutert, die erwartete Winkelverteilung aus einer mit den experimentellen Parametern simulierten Temperaturänderung berechnet wird.

Unter der Annahme, dass der Kühllaserstrahl ein Gauß'sches Intensitätsprofil besitzt und dass die thermische Energie mit einer Rate ähnlich der seiner Intensitätsverteilung abgetragen wird, ergibt sich für die relative Temperaturänderung $\Delta T(r, z)$:

$$\Delta T(r, z) = \Delta T(r, 0) \cdot \exp(-\alpha z). \quad (3.11)$$

Mit einer Umformung von Gleichung 3.10 ergibt sich dann für die relative Temperaturänderung ΔT_{exp} als Funktion experimenteller Parameter:

$$\Delta T(r, z) = \frac{T}{(n - 1)} \cdot \frac{\alpha \exp(-\alpha z)}{(1 - \exp(-\alpha L))} \cdot \int_r dr' \varphi(r'). \quad (3.12)$$

r bezeichnet hier den transversalen Strahlversatz zwischen Kühl- und Tastlaserstrahl, L ist die innere Länge in der jeweiligen Hochdrucksichtzelle, T die anfängliche Temperatur der Gasmischung, und n bezeichnet den Brechungsindex des Edelgases unter experimentellen Bedingungen für die Wellenlänge des verwendeten Tastlasers. Über die Lorentz-Lorenz-Beziehung (3.7) lässt sich eine Proportionalität von $(n - 1)$ zur Teilchenanzahl pro Volumen erkennen. Mit der idealen Gasgleichung $pV = Nk_B T$ und der Annahme einer konstanten Teilchenanzahl, ergibt sich die Relation zwischen dem Brechungsindex n unter experimentellen Bedingungen als Funktion des Brechungsindex n_0 unter Normalbedingungen ($p_0 = 1$ bar, $T_0 = 273$ K) zu:

$$(n - 1) = (n_0 - 1) \frac{pT_0}{p_0T}. \quad (3.13)$$

Die sich so ergebenden Werte für den Brechungsindex sind verträglich mit einer Berechnung über Virialkoeffizienten [88–91].

Ferner wird angenommen, dass der Kühllaserstrahl Absorption mit konstantem Absorptionskoeffizient α erfährt.

Gleichung 3.11 setzt voraus, dass der Wärmetransport hauptsächlich in radialer Richtung stattfindet. Da das Eintrittsfenster der Zelle aus Saphir wie ein thermischer Kurzschluss fungiert, gilt dies nur, wenn die Absorptionslänge $1/\alpha$ wesentlich größer als die Strahltaile des Lasers w_0 im Fokus ist. Für Messungen, bei denen die Temperaturänderung im Bereich der Größenordnung der absoluten Temperatur liegt, ist es erforderlich, den Absorptionskoeffizienten α ebenfalls als Funktion der Temperatur zu betrachten, auch das wird im Rahmen der Simulationen realisiert.

Abbildung 3.11 zeigt ein Schema des verwendeten experimentellen Aufbaus zur Messung des Ablenkwinkels des Taststrahls als Funktion des Abstands zwischen den beiden eingestrahlenen Laserstrahlen. Für die Experimente hier wurde als Taststrahl ein Helium-Neon-Laser mit einer Wellenlänge $\lambda = 632,8$ nm verwendet, der nichtresonant zu den untersuchten dichten Gasmischungen ist [92]. Ferner wurden auch Experimente mit einem Tastlaser bei einer Wellenlänge

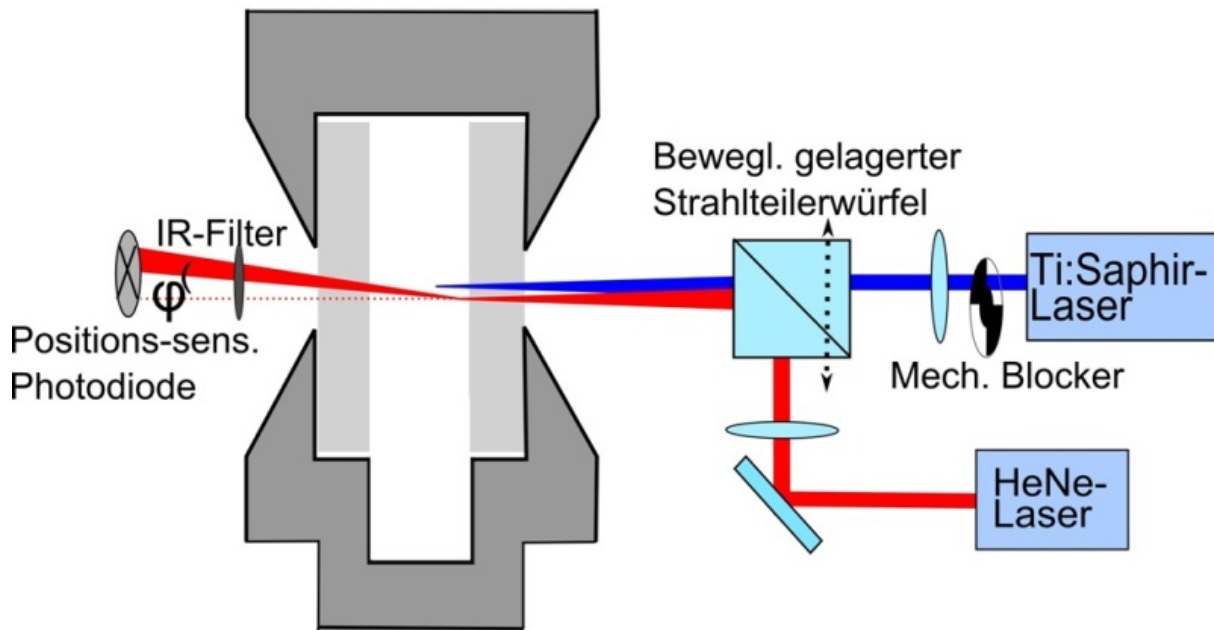


Abbildung 3.11: Schema der experimentellen Anordnung zur Messung der Winkeländerung aufgrund der sich ausbildenden thermischen Linse als Funktion des Abstands der beiden eingestrahnten Laser zueinander zur Bestimmung der Temperaturänderung. Kühl- und Tastlaserstrahl werden an einem beweglich gelagerten Strahlteilerwürfel überlagert und kollinear in die Zelle eingestrahlt. Die laterale Beweglichkeit des Strahlteilerwürfels ermöglicht die Veränderung des Abstands zwischen den beiden Laserstrahlen: während der Kühllaserstrahl (und somit die Kühlregion) an fester Position bleiben, wird der Tastlaserstrahl bewegt, um die Kühlregion vollständig abzurastern, damit aus dem vollständigen Profil der Winkelverteilung auf die Temperaturänderung geschlossen werden kann. Der Ablenkwinkel φ wird mit einer Positions-sensitiven Photodiode gemessen, vor der ein Filter nur das Licht des Helium-Neon-Lasers transmittiert, um Verfälschungen aufgrund von transmittiertem Licht des Kühllasers sowie Fluoreszenz zu vermeiden. Periodisches Unterbrechen des Kühllasers mit einem mechanischen Blocker ermöglicht die genaue Messung der Ablenkung aus der Nulllage.

von $\lambda = 1064 \text{ nm}$ durchgeführt, um sicherzustellen, dass die aus den gemessenen Ablenkungen berechnete Temperaturänderung nicht von der Wahl des nichtresonanten Tastlasers abhängig ist. Die Wahl eines Tastlasers mit einer Wellenlänge im sichtbaren Spektralbereich bietet sich aus Gründen der so vereinfachten Justage an.

Überlagert werden die beiden Strahlen mithilfe eines beweglich gelagerten Strahlteilerwürfels, und im Folgenden parallel in die Zelle eingestrahlt. Der Strahlteilerwürfel ist auf einem manuellen oder motorisierten Verschiebetisch¹⁰ gelagert, sodass der Abstand zwischen den beiden Laserstrahlen in nahezu beliebig kleinen Schritten variiert werden kann, um die Kühlregion vollständig und genau abzutasten. Zumeist wurde das entstehende Brechungsindexprofil über eine Breite einiger Millimeter in Schritten von $(50 - 100) \mu\text{m}$ abgetastet, wie auf den Messkurven in den nachfolgenden Kapiteln erkennbar ist. Experimente zur Laserkühlung wurden sowohl mit kollimierten, als auch mit fokussierten Strahlen durchgeführt, die Abbildung zeigt den Fall fokussierter Strahlen. Der Durchmesser des Taststrahls wurde stets kleiner gewählt als der des Kühllasers, um die Kühlregion geeignet abtasten zu können.

¹⁰In anfänglichen Experimenten wurde mit einem manuellen Verschiebetisch gearbeitet; später erfolgte eine Automatisierung der Messung mithilfe eines motorisierten Verschiebetisches und der Software LabVIEW [93].

Unter Verwendung eines mechanischen Blockers zur periodischen Unterbrechung des Kühllaserstrahls wurde gewährleistet, dass die Position des unabgelenkten Tastlaserstrahls von der Positions-sensitiven Photodiode¹¹ detektiert werden konnte, um den systematischen Fehler bei der Berechnung der Winkeländerung möglichst gering zu halten. Zwischen dem Austrittsfenster der Hochdrucksichtzelle und dem verwendeten Detektor wurden ein oder mehrere Kurzpassfilter montiert, damit transmittiertes Licht des Kühllasers geblockt und ausschließlich Licht des Taststrahls transmittiert und detektiert wird.

In den folgenden Abschnitten 4.2, 4.3 werden Messungen erläutert, die mit dem hier beschriebenen Verfahren der thermischen Ablenkungsspektroskopie durchgeführt wurden.

¹¹Erste Experimente [16,60] wurden unter Verwendung einer Quadrantenphotodiode durchgeführt. Diese wurde jedoch im Rahmen der Experimente, die dieser Arbeit zugrunde liegen, ersetzt, da es für die Auswertung der mit der Quadrantenphotodiode aufgenommenen Signale notwendig war, den Durchmesser des Taststrahls auf dem Detektorchip genau zu kennen/messen. Dies war jedoch schwierig zu realisieren, da das Strahlprofil nach Durchgang durch die Zelle leicht deformiert war aufgrund der erfahrenen Temperaturänderung.

4 Experimente zur Laserkühlung dichter atomarer Gase

In diesem Kapitel werden die Messungen zur Laserkühlung dichter atomarer Gase beschrieben und diskutiert; der Schwerpunkt liegt hier auf der Betrachtung dichter atomarer Rubidium-Edelgasmischungen. Zuerst werden Messungen zur Fluoreszenzredistribution gezeigt (Abschnitt 4.1), anschließend erfolgt eine Betrachtung unterschiedlicher Messungen zur Laserkühlung einer Rubidium-Edelgasmischungen hinsichtlich verschiedener experimenteller Parameter, sowie die Betrachtung der Ergebnisse von Experimenten mit einer Kalium-Argon-Mischung. Um das Kühlverfahren der redistributionsbasierten Laserkühlung dichter Gase auf eine andere Alkalispezies anzuwenden, wurden zu Beginn dieser Arbeit Experimente mit Kaliumatomen in bis zu 230 bar Argon durchgeführt, da der $4s \leftrightarrow 4p$ - Übergang des Kaliumatoms ohne Änderungen am Resonator des verwendeten Titan:Saphir-Lasers sowohl resonant, wie auch rot- und blauverstimmt angesprochen werden kann. Ferner ist die Lebensdauer des angeregten Zustands ($\tau = 28$ ns) vergleichbar [26] mit der Lebensdauer des angeregten Zustands von Rubidium, sodass ähnliche Kollisionsraten angenommen werden können.

4.1 Messungen zur Fluoreszenzredistribution

Als Vorbereitung auf Messungen zur Laserkühlung einer dichten atomaren Gasmischung wurde die Redistribution der atomaren Fluoreszenz als Voraussetzung mittels eines konfokalen Aufbaus, wie in Abschnitt 3.3 skizziert, überprüft. Abbildung 4.1 zeigt ein gemessenes Fluoreszenzspektrum von Rubidiumatomen umgeben von 160 bar Argon-Puffergas. Die verwendete Hochdruckzelle wurde hier auf eine Temperatur $T = 580$ K geheizt, um eine ausreichende Rubidium-Teilchenzahldichte zu erzielen. Rot-verstimmt zu den Rubidium-Resonanzen wurde Licht des Titan:Saphir-Lasersystems bei einer Wellenlänge $\lambda = 810$ nm und mit einer optischen Leistung von circa 100 mW eingestrahlt, die mit einem Achromaten auf eine Strahltaile von ungefähr $2w_0 \approx 10 \mu\text{m}$ fokussiert wurde. Mit einem Spektrometer wurde die atomare Fluoreszenz detektiert.

Eine deutliche Redistribution in Richtung höherer Energien hinsichtlich der D-Resonanzen des Rubidiumatoms wird beobachtet. Die im Spektrum ebenfalls sichtbare Signatur von Streulicht des eingestrahlenen Lasers bei der Laserwellenlänge resultiert aus nicht-perfekter räumlicher Filterung im konfokalen Aufbau. Die beobachteten Resonanzen sind sowohl Druck- als auch Sättigungsverbreitert, wie sich durch Lorentz-Anpassungen sowie der Abschätzung der eingestrahelten Intensität ($I_{\text{Laser}} = 1,27 \cdot 10^8 \text{ mW/cm}^2$) verglichen mit der Sättigungsintensität bei verstimmt eingestrahlt Licht der Übergänge nach Gleichung 2.45 ergibt, $I_{\text{D1}} = 5,3 \cdot 10^7 \text{ mW/cm}^2$, $I_{\text{D2}} = 8,8 \cdot 10^7 \text{ mW/cm}^2$. Unterlägen die Resonanzen nur dem Effekt der Druckverbreiterung, würde man gemäß [53] und der Extrapolation aus diesen Daten für höhere Drücke Linienbreiten von $\Delta\nu(\text{D1}) = 1,43$ THz, $\Delta\nu(\text{D2}) = 1,97$ THz erwarten, die aus Anpassungen an die Messdaten erhaltenen Linienbreiten sind jedoch größer, $\Delta\nu'(\text{D1}) = 3,4$ THz, $\Delta\nu'(\text{D2}) = 5,9$ THz.

Ebenfalls ist eine Verschiebung der Linienschwerpunkte aufgrund des hohen Puffergasdrucks hin zu größeren Wellenlängen beobachtbar. Verglichen mit den Positionen der „ungestörten“ Resonanzen, $\lambda(\text{D1}) = 795$ nm, $\lambda(\text{D2}) = 780$ nm sind die Schwerpunkte der beiden Resonanzen hier um jeweils ungefähr fünf Nanometer zu höheren Wellenlängen hin verschoben, $\lambda'(\text{D1}) \approx 800$ nm, $\lambda'(\text{D2}) \approx 785$ nm.

Unterhalb der beiden scharfen D-Resonanzen sind zwei breite spektrale Flügel zu erkennen, das Spektrum ist deutlich asymmetrisch hinsichtlich der Mittenwellenlänge der emittierten Fluoreszenz. Der Flügel im Bereich höherer Wellenlängen ist deutlich langreichweitiger als der im Bereich kürzerer Wellenlängen. Dies ist konsistent mit Rechnungen im Rahmen des quasi-statischen Ansatzes zur Druckverbreiterung bei Betrachtung von Rubidium-Argon-Quasimolekülen. Die

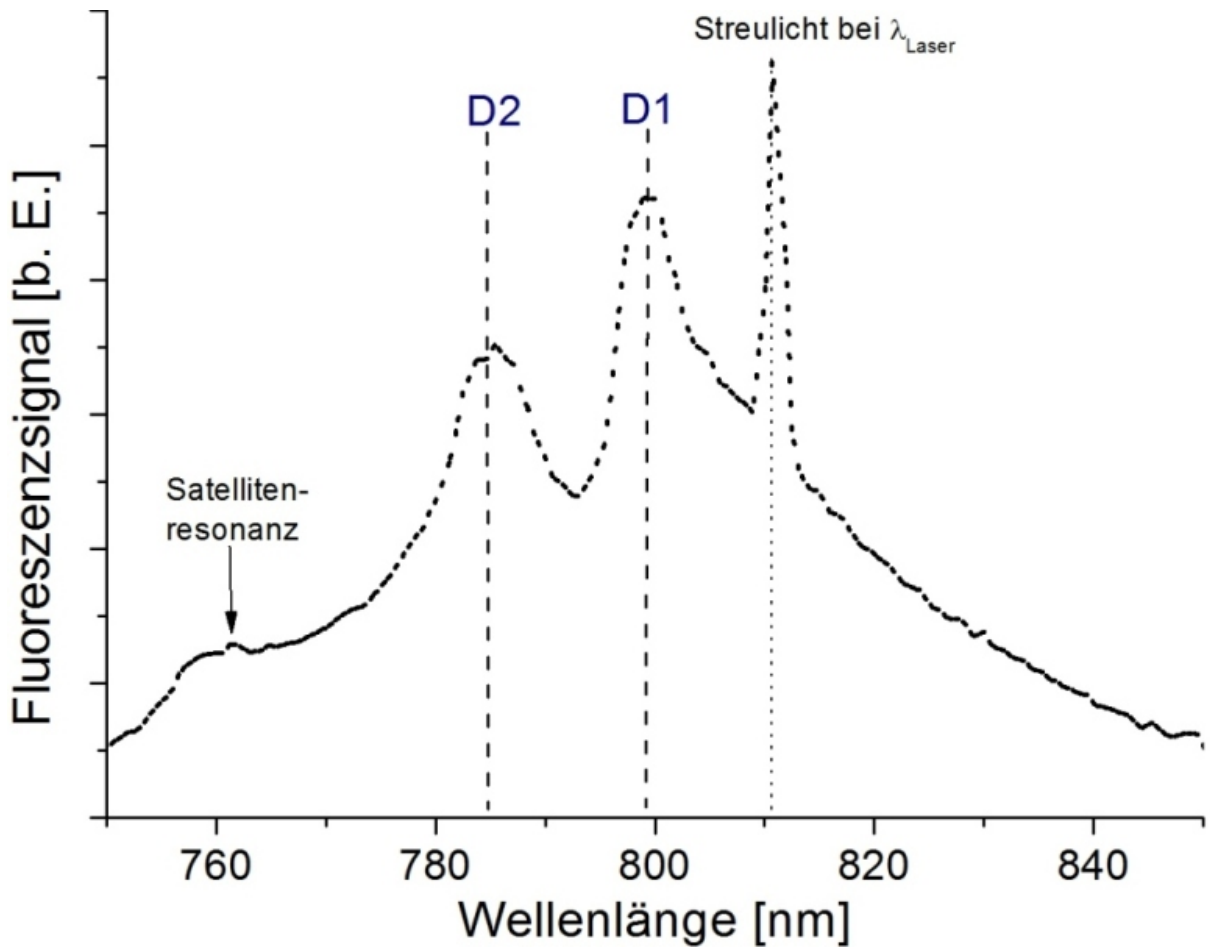


Abbildung 4.1: Detektierte Fluoreszenz von Rubidiumatomen als Funktion der Wellenlänge in 160 bar Argon-Puffergas bei einer Temperatur $T = 580$ K. Die atomaren D-Resonanzen können spektral aufgelöst werden, wohingegen wegen des hohen Drucks keinerlei Hyperfeinstruktur-Übergänge sichtbar sind. Die Resonanzen sind deutlich druckverbreitert und -verschoben und ebenso sättigungsverbreitert. Eine Redistribution hinsichtlich der beiden D-Linien ist erkennbar. Die vertikale, gestrichelte Linie zeigt die spektrale Position des eingestrahlichten Laserlichtfelds, es wird aufgrund nicht-perfekter räumlicher Filterung auch dessen Streulicht beobachtet.

Satellitenresonanz bei einer Wellenlänge von ca. $\lambda \approx 760$ nm resultiert aus dem quasimolekularen Übergang $B^2\Sigma_{1/2} \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}$. Der Flügel im Bereich größerer Wellenlängen relativ zu den Resonanzen betrachtet resultiert aus dem Übergang $A^2\Pi_{3/2} \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}$. Für Experimente mit schwereren Edelgasen ist diese Satellitenresonanz deutlich ausgeprägter [94,95], wie die in der folgenden Abbildung 4.2 dargestellte Messung mit Xenon als Puffergas zeigt.

Analog zur vorherigen Messung mit dem leichteren Argon-Puffergas wurde die Fluoreszenz einer Rubidium-Xenon-Mischung bei einem Puffergasdruck von 40 bar für zwei unterschiedliche Laserwellenlängen bei gleicher Eingangsleistung gemessen. Einstrahlen von Laserlicht rot ($\lambda = 810$ nm) und blauverstimmt ($\lambda = 760$ nm) bei einer Leistung $P_{\text{in}} = 500$ mW zu den atomaren Rubidium-Resonanzen und anschließende Detektion der Fluoreszenz zeigt, dass in beiden Fällen eine Redistribution der Strahlung zu den D-Resonanzen auftritt. Wie zuvor sind die Linien deutlich verbreitert und verschoben, eine Asymmetrie hinsichtlich der Mittenwellenlänge der emittierten Fluoreszenz tritt hier ebenfalls auf. Für den Fall rotverstimmt Lichts ist auch die Satellitenresonanz bei ca. $\lambda \approx 760$ nm erkennbar, im Fall der blauen Verstimmung überdeckt das

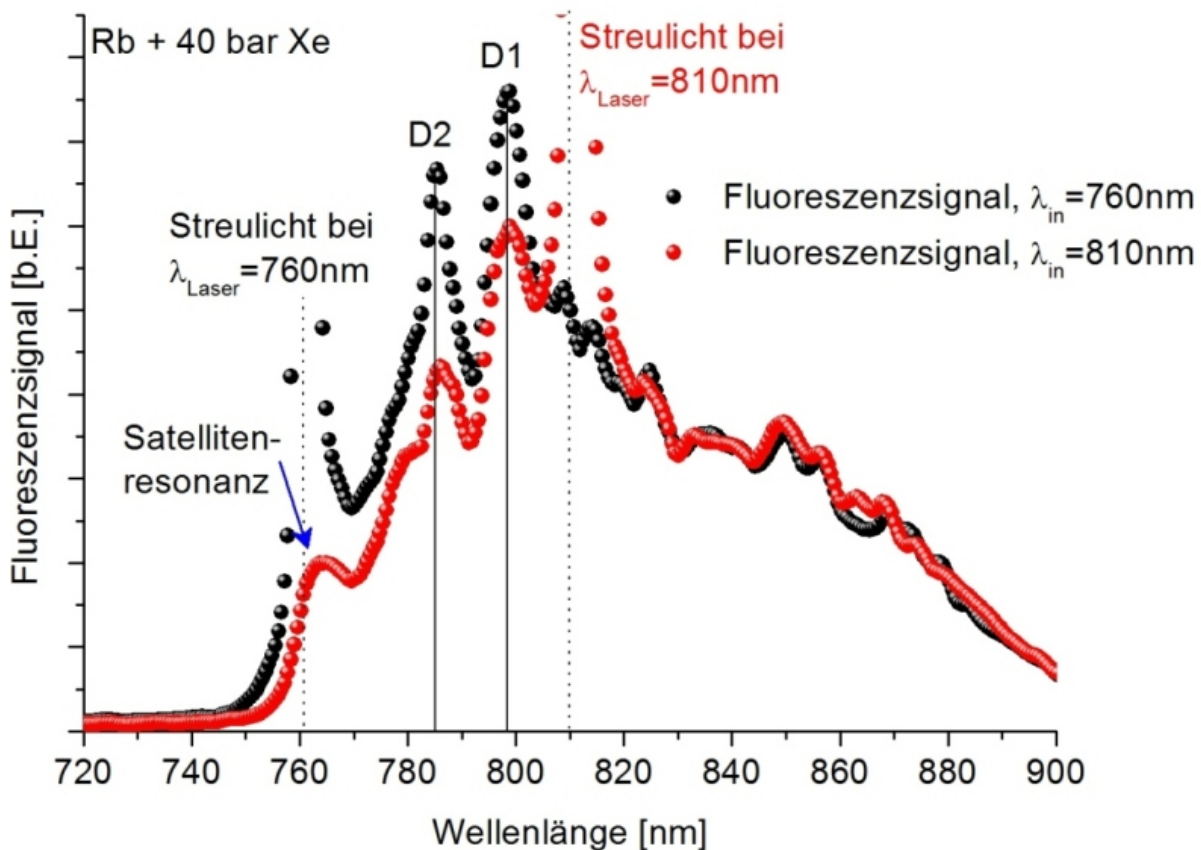


Abbildung 4.2: Zwei Messungen der Fluoreszenz einer dichten Rubidium-Xenon-Mischung für unterschiedliche Verstimmungen hinsichtlich der D-Resonanzen. Neben der Redistribution der Strahlung ist eine Satellitenresonanz blau zu den Alkaliressonanzen erkennbar.

Streulicht des Lasers diese Resonanz. Beide Messungen zeigen eine Signatur von Streulicht bei der eingestrahlt Laserwellenlänge aufgrund imperfekter räumlicher Filterung. Diese Messdaten wurden mit dem in Abb. 3.9 gezeigten Aufbau zur Fluoreszenzdetektion aufgenommen, um bei erkennbarer Redistribution gleichzeitig die Temperaturänderung in einer dichten Rubidium-Xenon-Mischung, wie in Abschnitt 4.2.2 beschrieben wird, zu bestimmen.

In weiteren Messungen wurden Fluoreszenzspektren für unterschiedliche Puffergasdrücke von Rubidium-Argon-Mischungen untersucht. Diese Spektren dienen im späteren Verlauf dieser Arbeit auch dazu, im Rahmen der Simulationen aus den jeweiligen Schwerpunktfrequenzen der Fluoreszenz die Kühlleistung berechnen zu können. Für die Messungen wurde als einziger Parameter der Puffergasdruck verringert und das Fluoreszenzsignal detektiert, die Temperatur der Gasmischung betrug für die Messungen $T = 573 \text{ K}$. Abbildung 4.3 zeigt die Ergebnisse einer Messung für fünf unterschiedliche Puffergasdrücke im Bereich zwischen 40 bar und 160 bar. Wie zuvor wurde hier bei einer Wellenlänge $\lambda = 810 \text{ nm}$ Licht des Titan:Saphir-Lasers eingestrahlt, die Leistung war für jede Messung konstant und betrug ca. 100 mW.

Die Redistribution des eingestrahlt Laserlichts zu den atomaren Rubidiumresonanzen ist wie bei der zuvor gezeigten Messung deutlich sichtbar, ebenso wie die aufgrund nicht ausreichender räumlicher Filterung auftretende Signatur von Streulicht bei der eingestrahlt Laserwellenlänge. Auch lässt sich eine Verschiebung der Resonanzen mit steigendem Druck erkennen. In Abbildung 4.4 ist eine analog durchgeführte Messung der atomaren Fluoreszenz zu sehen, bei

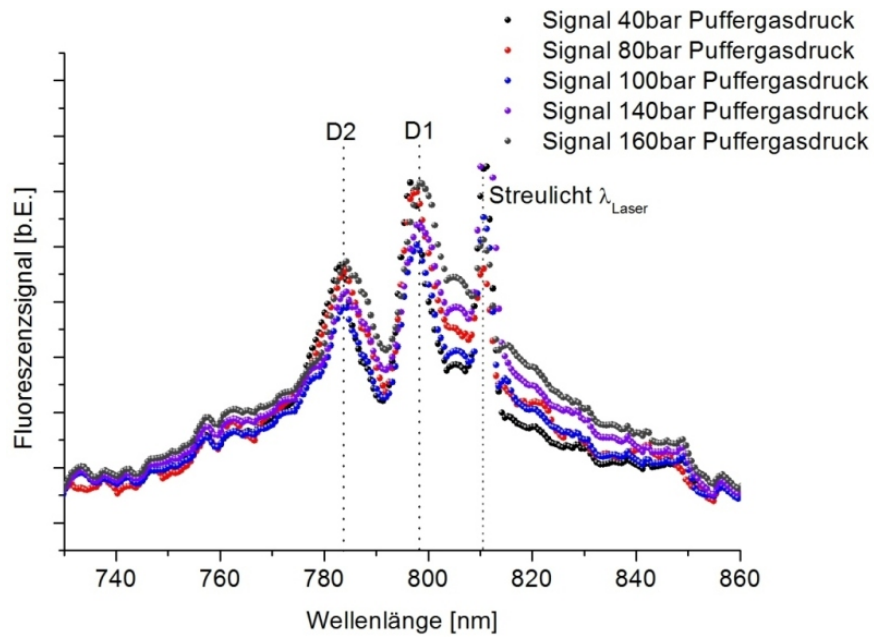


Abbildung 4.3: Messung der atomaren Fluoreszenz der dichten Rubidium-Argon-Gasmischung für unterschiedliche Puffergasdrücke im Bereich zwischen 40 bar und 160 bar. Redistribution der eingestrahlt Laserstrahlung zu den D-Resonanzen hin ist erkennbar; ebenso eine druckabhängige Rotverschiebung der Resonanzen mit steigendem Druck.

dieser Messung wurde das Fluoreszenzsignal für eine annähernd konstante Intensität bei eingestrahelter Laserleistung von ca. 100 mW in einem kleineren spektralen Bereich aufgenommen.

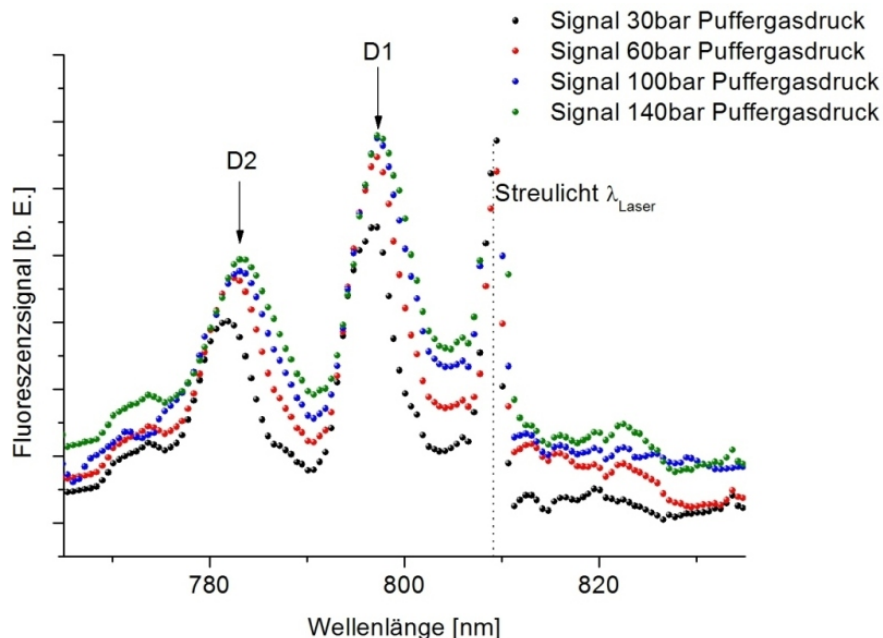


Abbildung 4.4: Messung des Fluoreszenzsignals für Gasmischungen unterschiedlichen Puffergasdrucks zwischen 30 bar und 140 bar bei konstant eingestrahelter Leistung und Laserwellenlänge. Im Vergleich zu den vorherigen Messungen wird hier ein schmalerer spektraler Bereich betrachtet. Neben der Redistribution der Strahlung wird hier die druckabhängige Verschiebung deutlich.

Wie zuvor ist eine klare Redistribution sichtbar, außerdem zeigt der geringere, spektrale Ausschnitt des Spektrums die druckabhängige Verschiebung der Resonanzen noch deutlicher. Fluoreszenzredistribution ist eine notwendige Voraussetzung für den untersuchten Kühlprozess, jedoch kann es durchaus sein, dass die Kühleffizienz pro Photon von Quenchingraten und/oder unerwünschten Absorptionen an in der Zelle befindlichen Verunreinigungen kompensiert oder sogar überkompensiert wird. Es bedarf also einer Untersuchung der erzielten Temperaturänderung, beispielsweise mit dem Verfahren der thermischen Ablenkungsspektroskopie, das im Abschnitt 3.4 beschrieben wird, um festzustellen, dass tatsächlich eine Kühlung der dichten Gasmischung auftritt, und um zu bestimmen, wie groß die relative Temperaturänderung ausfällt.

4.2 Kühlexperimente mit dichten Rubidium-Edelgas-Mischungen

Beide untersuchten Alkalispezies haben ihre Kühlübergänge spektral nah beieinander (siehe Abschnitt 2.1), jedoch weist Rubidium eine höhere Teilchenzahldichte bei gleicher Temperatur als Kalium auf. Außerdem liegt das Maximum der Ausgangsleistung des verwendeten Titan:Saphir-Lasers bei circa 800 nm, was für eine rot-verstimmte Einstrahlung hinsichtlich der Rubidium-D-Resonanzen geeignet ist. Dies begründet die Schwerpunktsetzung der Experimente auf Untersuchungen von Rubidium in dichten Edelgasen, die im Folgenden vorgestellt werden.

Für alle Experimente mit dichten Gasmischungen zeigte sich im Verlauf dieser Arbeit, wie auch schon aus vorherigen Arbeiten bekannt [17] war, dass kontinuierliches Experimentieren mit den verwendeten Rezipienten durch Lecks und/oder den Kühlprozess auslöschenden Verunreinigungen oft unterbrochen wurde. Generell zeigte sich - wie erwartet - eine deutliche Sensitivität des Kühlprozesses auf Verschmutzungen der Zelle bzw. auf Verunreinigungen des Puffergases. Neben der Dichtigkeit der Rezipienten ist auch die optische Dichte sehr sensitiv gegenüber jeglicher Veränderung experimenteller Parameter (Druck, anfängliche Temperatur der Gasmischung), sodass gerade hinsichtlich der Untersuchungen zur Parameterabhängigkeit des Kühleffekts (Abschnitt 4.2.3) nur wenige Messreihen über einen weiten Bereich des Puffergasdrucks durchgeführt werden konnten.

4.2.1 Kühlung dichter Rubidium-Argon-Mischungen

In diesem Abschnitt werden beispielhaft zwei typische Messungen zur Laserkühlung dichter Rubidium-Argon-Mischungen präsentiert, die sich hinsichtlich einiger experimenteller Parameter unterscheiden. Nachfolgend wird zuerst eine Messung bei geringerer Starttemperatur und damit zusammenhängend geringerer optischer Dichte der Alkaliatome betrachtet, bevor im Anschluss daran der Fokus auf der Betrachtung einer Messung bei hoher Anfangstemperatur, sowie hoher Absorption liegt, bei der eine deutlichere Temperaturänderung beobachtet wurde.

Im Zusammenhang mit der im vorherigen Kapitel dargestellten Messung der atomaren Fluoreszenz einer dichten Rubidium-Argon-Mischung wurden mehrere Messungen zur thermischen Ablenkungsspektroskopie durchgeführt, um die Temperaturänderung zu bestimmen. Für eine Messung wurde die Position des Kühllaserstrahls (und somit der gekühlten Region der Gasmischung) konstant gelassen, und die Position des Tastlasers relativ zum Kühllaser schrittweise verändert. Bei einigen Messungen wurde an den Rändern des Temperaturprofils aufgrund der geringen Änderung der Ausbreitungsrichtung mit größerer Schrittweite gearbeitet als im Bereich starker Temperaturänderung. Der Tastlaserstrahl wurde an die Position des Kühllaserstrahls angenähert, bis beide Strahlen überlagert eingestrahlt wurden, bevor der Abstand zwischen beiden Strahlen wieder vergrößert wurde, um das erzeugte Temperaturprofil vollständig in radialer Richtung zu untersuchen. Aus dem Photodiodensignal wurde für jede Position des Tastlasers der Ablenkwinkel relativ zur ursprünglichen Ausbreitungsrichtung gemessen. Die Ablenkungen werden als Funktion des Abstands der beiden Laserstrahlen zueinander aufgetragen.

Bei exakt paralleler Justage der Strahlen ist ein symmetrisches Profil zu erwarten. Es zeigte sich, dass bereits kleine Abweichungen von der beabsichtigten kollinearen Ausrichtung beider Strahlen zueinander zu einer mitunter sehr stark asymmetrischen Winkelverteilung führen. Aus diesem Grund bietet es sich an, einen theoretischen Verlauf an die Verteilung der Ablenkungswinkel anzupassen, um daraus die relative Temperaturänderung abzuschätzen. Aus der Wärmeleitungsgleichung für den Temperaturgradienten ergibt sich gemäß [96]:

$$\frac{dT}{dr} \propto \left(\exp\left(-\frac{2r^2}{w_0^2}\right) - \exp\left(-\frac{2r^2}{8Dt + w_0^2}\right) \right) \quad (4.1)$$

Die Proportionalitätskonstante dieser Gleichung 4.1 setzt sich aus der Kühlleistung P_K und der Wärmeleitfähigkeit κ zusammen, D bezeichnet die thermische Diffusivität des Edelgases, sowie t die Zeit. Die Anpassung an die gemessenen Ablenkungen wurde gemäß

$$\frac{dT}{dr} = f(r) = \left(\frac{a}{r-b} \right) \left(\exp\left(-\frac{2(r-b)^2}{w^2+d}\right) - \exp\left(-\frac{2(r-b)^2}{w^2}\right) \right) \quad (4.2)$$

mit a , b und d sowie der Strahltaile w als Anpassungsparametern durchgeführt. Integration dieses Verlaufs liefert dann die relative Temperaturänderung gemäß des im Abschnitt 3.4 dargestellten Zusammenhangs mit dem Ablenkungswinkel $\varphi(r)$.

Da im Rahmen dieser Herleitung einige Näherungen gemacht wurden, wurde für die nachfolgend dargestellten Messungen bei der Berechnung der Temperaturänderung auf eine Fehlerrechnung verzichtet, da der systematische Fehler aufgrund der Annahmen höher einzuschätzen ist als der Fehler durch Messunsicherheiten hinsichtlich der experimentellen Parameter. Für die Position des Tastlasers im Abstand zur Kühlregion wurde anhand der Skalen des jeweilig verwendeten Verschiebetisches ein Fehler angenommen (für die nachfolgend gezeigten Messungen wurde der Fehler zu $\pm 10 \mu\text{m}$ geschätzt), der Fehler der Ablenkungswinkel berechnet sich mit Gauß'scher Fehlerfortpflanzung aus den Fehlern der Abstandsmessung zwischen Zelle und Photodiode (mit $\pm 2 \text{ mm}$ angenommen), sowie dem zu 5% geschätzten Fehler beim Auslesen der Photodiode mittels des Oszilloskops.

Ferner wird für die Auswertung der Messdaten jeweils eine über die optische Weglänge durch die Gasmischung konstante Absorption α angenommen, die sich aus der gemessenen Kühllaserleistung vor und hinter der Zelle berechnet. Die aus den experimentellen Daten berechnete relative Temperaturänderung wird im Folgenden mit ΔT_{exp} bezeichnet werden.

Als erstes wird nun eine Messung mit Rubidiumatomen in 160 bar Argon-Puffergas bei einer anfänglichen Gastemperatur von $T = 543 \text{ K}$ gezeigt. Licht des Titan:Saphir-Lasers wurde auf eine Strahltaile $2w_0 = 700 \mu\text{m}$ fokussiert. Die Messung zur thermischen Ablenkungsspektroskopie wurde mit einer eingestrahlten Leistung $P_{\text{Laser}} = 2 \text{ W}$ bei einer Wellenlänge $\lambda = 810 \text{ nm}$ durchgeführt. Das durch die Temperaturänderung entstehende Brechungsindexprofil wurde durch Verfahren des Kühllaserstrahls in $100 \mu\text{m}$ -Schritten abgetastet. Die entsprechende Messung ist in Abbildung 4.5 zu sehen.

Aus den gemessenen Ablenkungen wurde anhand des Zusammenhangs zwischen Ablenkungswinkel $\varphi(r)$ und der relativen Temperaturänderung letztere zu $\Delta T_{\text{exp}} = -130 \text{ K}$ berechnet.

Für die Berechnung wurde eine konstante Absorption mit Absorptionskoeffizienten $\alpha = 0,37/\text{mm}$ bzw. einer optischen Dichte von 3,7 berücksichtigt. Eine leichte Abweichung hinsichtlich der parallelen Justage der beiden eingestrahlten Laserstrahlen zueinander scheint der Grund für die beobachtete Asymmetrie der Winkelverteilung als Funktion des Abstands der beiden Strahlen. Da die verwendeten Hochdruckzellen auf höhere Temperaturen als die bei dieser Messung eingestellte Starttemperatur geheizt werden können, wurden die meisten Messungen bei höheren

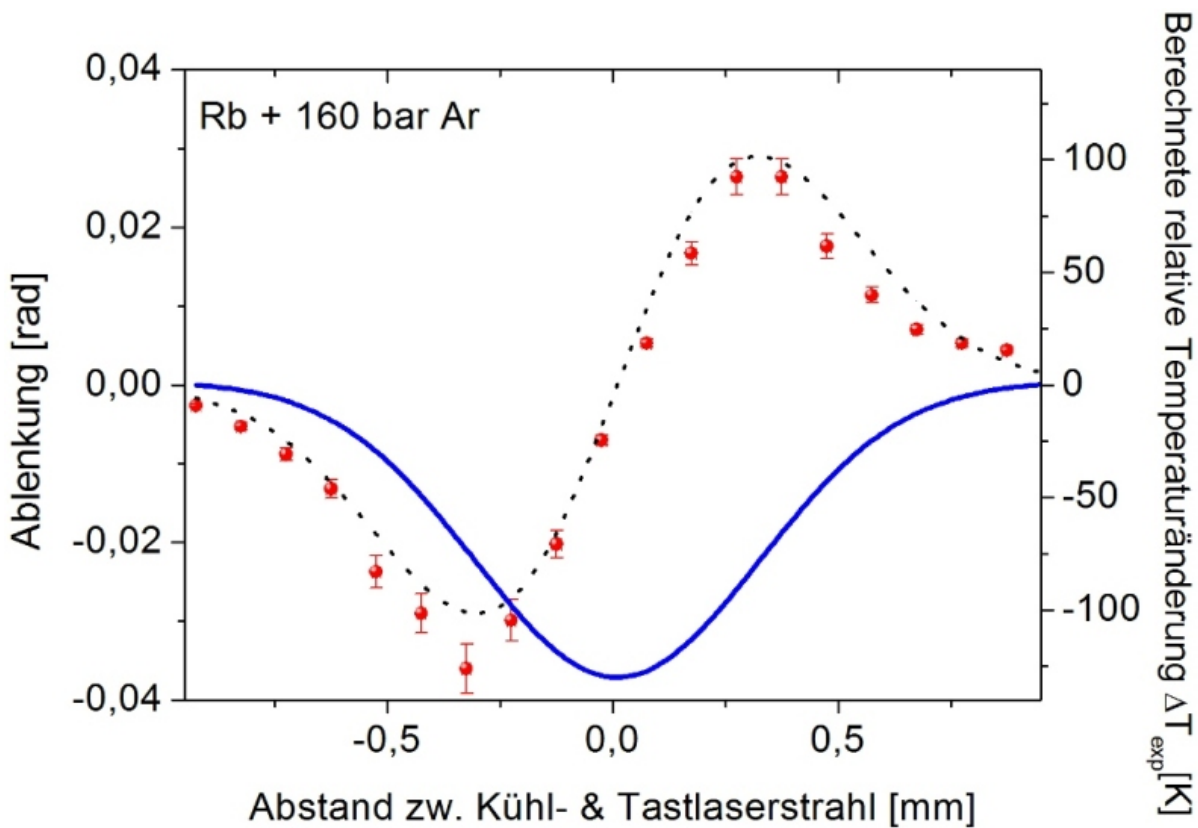


Abbildung 4.5: Gemessene Ablenkung des in die Rubidium-Argon-Gasmischung bei einem Puffergasdruck von 160 bar eingestrahltten Taststrahls als Funktion des Abstands zwischen Kühl- und Tastlaserstrahl (rote Punkte). Die gestrichelte Linie stellt eine theoretische Anpassung an die gemessenen Ablenkungen gemäß Gleichung 4.2 dar, aus der die relative Temperaturänderung einer Rubidium-Argon-Mischung (blaue durchgezogene Linie) berechnet wurde. Das durch die Temperaturänderung entstehende Brechungsindexprofil wurde mit einer Schrittweite von $100 \mu\text{m}$ abgetastet und aus der Verteilung der Ablenkwinkel als Funktion des Abstands zwischen Kühl- und Tastlaserstrahl wurde die relative Temperaturänderung ausgehend von der anfänglichen Gasmischungstemperatur von $T = 543 \text{ K}$ zu $\Delta T_{\text{exp}} = -130 \text{ K}$ berechnet.

Anfangstemperaturen des Gasgemisches durchgeführt, um mit einer höheren Teilchenzahldichte der Alkali-Atome, und damit zusammenhängend, höheren optischen Dichte zu experimentieren. Im Folgenden wird eine Messung vorgestellt, bei der die Zelle auf eine Temperatur $T = 683 \text{ K}$ geheizt wurde, und somit eine circa 25-fach höhere Teilchenzahldichte der Rubidiumatome für die Experimente zur Verfügung stand. Bei gleicher eingestrahelter Kühllaserleistung und Wellenlänge wurde jedoch mit stärker fokussierten Strahlen gearbeitet, die Strahltaile des Kühllaserstrahls betrug circa $2w_0 \approx 400 \mu\text{m}$, sodass mit einer ungefähr dreimal höheren Intensität des Kühllasers gemessen wurde. Abbildung 4.6 zeigt analog zur Abbildung 4.5 die Messung des Ablenkwinkels als Funktion der Position des Taststrahls relativ zum Kühllaserstrahl.

Das Brechungsindexprofil wurde an den Rändern mit schwachen Ablenkwinkeln bzw. geringer Temperaturänderung mit $100 \mu\text{m}$ - Schritten des Tastlasers abgetastet, in den Bereichen deutlicherer Ablenkungen erfolgte ein Abrastern der Kühlregion in $50 \mu\text{m}$ -Schritten. Aus dieser Verteilung der Winkel als Funktion des relativen Abstandes beider eingestrahelter Laserstrahlen zueinander ließ sich analog zur vorherigen Messung eine relative Temperaturänderung berechnen. Die Abweichungen der gemessenen Ablenkungen von der angepassten Kurve resultieren

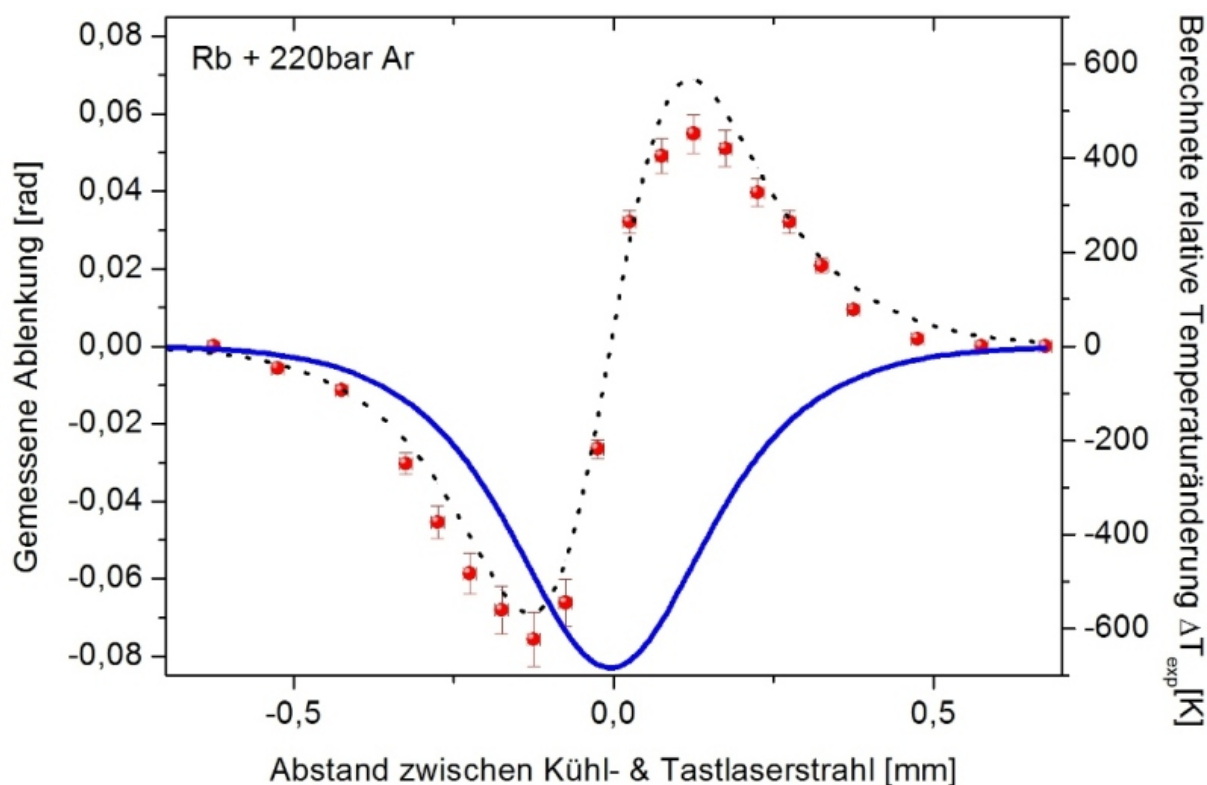


Abbildung 4.6: Gemessene Ablenkung des Taststrahls als Funktion des Abstands zwischen Kühl- und Tastlaserstrahl und daraus berechnete relative Temperaturänderung einer Rubidium-Argon-Mischung bei einem Puffergasdruck von 220 bar. Die gemessenen Ablenkungen sind durch rote Punkte dargestellt, schwarz-gestrichelt ist die theoretische Anpassung an die Messdaten für die Ablenkung, aus der das Temperaturprofil (blaue durchgezogene Linie) berechnet wurde. Der Ablenkswinkel wurde in $50 \mu\text{m}$ -, bzw. in den Bereichen schwacher Ablenkung bzw. geringer Temperaturänderung in $100 \mu\text{m}$ -Schritten gemessen. Aus der Winkelverteilung ließ sich bei einer anfänglichen Temperatur der Gasmischung $T = 683 \text{ K}$ eine relative Temperaturänderung $\Delta T_{\text{exp}} = -675 \text{ K}$ berechnen. Dieser Wert obliegt jedoch einigen Annahmen, weshalb in Kapitel 5 eine Simulation dieser Temperaturverteilung unter den experimentellen Parametern erfolgt.

erneut hauptsächlich aus imperfekter Justage der beiden Laserstrahlen zueinander, die Fehlerrechnung hinsichtlich der Ablenkswinkel als Funktion des Abstands erfolgte ebenfalls wie zuvor beschrieben.

Für die gemessene, hier als konstant angenommene Absorption ($\alpha = 1,4/\text{mm}$) bzw. optische Dichte von 14 ergibt sich eine relative Temperaturänderung von $\Delta T_{\text{exp}} = -675 \text{ K}$. Unmittelbar im Fokus entspräche dies einer Endtemperatur von 8 K . Dies deutet jedoch darauf hin, dass bei der Berechnung wie im Abschnitt 3.4 dargestellt gemachte Annahmen in diesem Fall versagen, da bei der berechneten Endtemperatur deutlich unterhalb der kritischen Temperatur von Argon, die für einen Druck $p \approx 49 \text{ bar}$ bei $T = 150 \text{ K}$ [97] liegt, und für den hier höheren Druck eine Kondensation ab einer entsprechend höheren Temperatur beobachtbar sein müsste [98,99]. Dies kann jedoch im Rahmen der Messgenauigkeit der verwendeten positionssensitiven Photodiode ausgeschlossen werden, da außer der Positionsänderung des Laserstrahls auf der Detektorfläche auch die Gesamtintensität detektiert wurde, und hier keine Schwankungen bzw. Einbrüche gemessen wurden. Um eine Aussage über die wirkliche Temperaturänderung unter den betrachteten experimentellen Bedingungen treffen zu können, ist es daher notwendig, entweder zusätzlich eine

andere experimentelle Methode zur Bestimmung der Temperaturänderung zu verwenden, oder die Temperaturverteilung theoretisch zu berechnen und aus dieser Verteilung die erwarteten Ablenkungswinkel zu bestimmen. Dies ist Gegenstand der Simulationen in Kapitel 5, wo explizit für die obig genannten Parameter, sowie für die der zuvor gezeigten Messung bei geringerer optischer Dichte, die Temperaturverteilung berechnet wird.

Alternative experimentelle Techniken zur quantitativen Messung des Kühleffekts könnten, wie zuvor bereits angedeutet, durch die Verwendung einer Hochdruckzelle mit mehreren optischen Zugängen realisiert werden. Hier bietet sich die Ausnutzung der Gesetzmäßigkeit von Kennard und Stepanov [100–102] zum Zusammenhang zwischen Fluoreszenz und Absorption über den Boltzmann-Faktor und somit die Temperatur an. Ferner ist das Vermessen der sich ausprägenden thermischen Linse mit einem Wellenfrontdetektor, beispielsweise einem Shack-Hartmann-Sensor, denkbar [103, 104]. Im Ausblick zu dieser Arbeit in Kapitel 6 wird auch die Möglichkeit einer interferometrischen Messung der Temperaturänderung näher erläutert.

4.2.2 Experimente mit den schwereren Puffergasen Krypton & Xenon

Bei Betrachtung der Wärmetransportgleichung 2.52 wird deutlich, dass die erwartete Temperaturänderung bei konstanter Kühlleistung invers proportional zur Wärmeleitfähigkeit des verwendeten Puffergases ist. Dies legt Experimente mit den schwereren Edelgasen Krypton und Xenon nahe, deren Werte für die Wärmeleitfähigkeiten bei Normalbedingungen (Kr: 8,74 mW/m · K) bzw. (Xe: 5,06 mW/m · K) deutlich unter dem Wert von Argon (16,94 mW/m · K) liegen [18].

Die Edelgase Krypton und Xenon sind nur in geringerer Reinheit (5.0) als das in den bisherigen Experimenten verwendete Argon erhältlich; tendenziell können also mehr fluoreszenzlöschende Stöße von Verunreinigungsatomen/-molekülen (Kohlenwasserstoffe, Stickstoff N_2) mit den Rubidiumatomen auftreten, was im ungünstigsten Fall, wie in Abschnitt 2.5 erläutert, den Kühlprozess verhindern kann. Bei ersten Experimenten mit Xenon einer noch geringeren Reinheit (4.7) war es nicht möglich, atomare Fluoreszenz zu beobachten, was darauf zurück geführt wird, dass der Effekt der Fluoreszenzlöschung hier dominierte.

Ferner ist es nur schwierig möglich, exakt gleiche Bedingungen für Experimente mit unterschiedlichen Puffergasen zu gewährleisten, da die Zellen nicht identisch sind hinsichtlich ihrer Sauberkeit nach sorgfältiger Reinigung. Der hauptsächliche Grund dafür liegt vermutlich in zwar geringen, aber doch verschiedenen Verunreinigungen der Rezipienten durch Fremdatome. Zumeist wurde daher mit einer Zelle experimentiert, bei der das Edelgas getauscht wurde, anstatt mit zwei Zellen zu arbeiten. So konnte zumindest annähernd eine gleiche Absorption des eingestrahelten Kühllaserlichts gewährleistet werden. Abbildung 4.7 zeigt zwei Messungen zur thermischen Ablenkungsspektroskopie mit Rubidium in jeweils 40 bar Krypton bzw. Xenon.

Nach den Messungen mit Krypton wurde das Puffergas abgelassen und Xenon in die Hochdruckzelle eingefüllt. Es zeigte sich nach dem Gaswechsel eine leicht verminderte Absorption in der Zelle ($\alpha(\text{Kr}) = 0,76/\text{mm}$ gegenüber $\alpha(\text{Xe}) = 0,66/\text{mm}$), was auf eine andere Druckverbreiterung, sowie eine geänderte Fremdatomkonzentration und -zusammensetzung im Xenongas und dadurch einen anderen Grad der Verschmutzung und somit der Fluoreszenzlöschung zurück zu führen sein könnte.

Beide gezeigten Messungen wurden mit jeweils $P_{\text{in}} = 1 \text{ W}$ Laserleistung durchgeführt. Die anfängliche Temperatur der Gasmischung betrug $T = 665 \text{ K}$.

Für die Rubidium-Krypton-Mischung konnte eine relative Temperaturänderung $\Delta T = -165 \text{ K}$ beobachtet werden, die Rubidium-Xenon-Mischung wurde um $\Delta T_{\text{exp}} = -223 \text{ K}$ gekühlt. Das Verhältnis der beiden Temperaturänderungen entspricht nicht ganz dem Verhältnis der Wärmeleitfähigkeiten; demnach müsste eine 1,73-fach höhere Temperaturänderung für die Xenonmischung entsprechend einer relativen Temperaturänderung $\Delta T_{\text{exp}} = -285 \text{ K}$ beobachtbar sein.

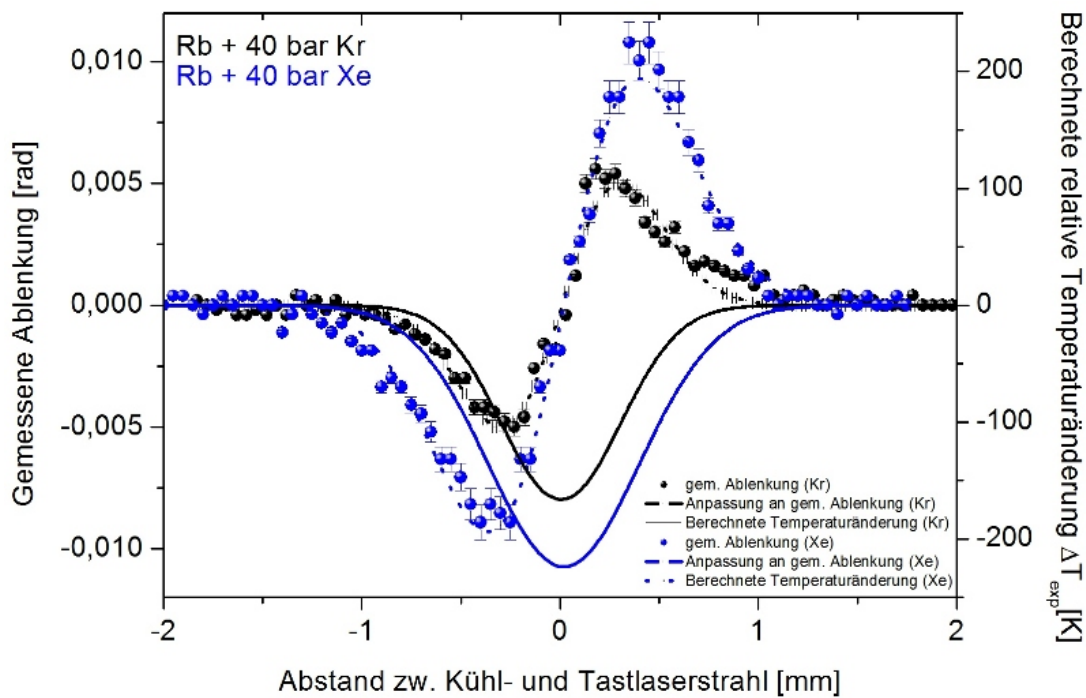


Abbildung 4.7: Messungen zur thermischen Ablenkungsspektroskopie in zwei verschiedenen dichten Gasmischungen mit Rubidium und unterschiedlichen Puffergasen, Krypton und Xenon, jeweils bei 40 bar Druck und gleicher eingestrahelter Laserleistung $P_{\text{in}} = 1 \text{ W}$ und Wellenlänge $\lambda = 810 \text{ nm}$ bei gleicher anfänglicher Gastemperatur ($T = 665 \text{ K}$). Wie aufgrund der Wärmetransportgleichung zu erwarten, zeigt sich wegen der geringeren Wärmeleitfähigkeit eine größere relative Temperaturänderung für den Fall der Rubidium-Xenon-Mischung. Das Verhältnis der beobachteten Temperaturänderungen entspricht jedoch nicht dem Verhältnis der Wärmeleitfähigkeiten der beiden Edelgase, vermutlich aufgrund der leicht unterschiedlichen, gemessenen Absorptionen.

Jedoch ist, wie bereits erwähnt, die Absorption für beide Gasmischungen unterschiedlich, sodass der erwartete Wert nicht erreicht wird. Es ist jedoch wichtig zu sehen, dass auch mit Krypton und Xenon eine Kühlung beobachtbar ist, da gerade Experimente mit Xenon zukünftig für die Beobachtung eines Phasenübergangs in den flüssigen Bereich mit dem Verfahren der Laserkühlung aufgrund des geeigneten kritischen Punkts bei ($16,6^\circ\text{C}/58,4 \text{ bar}$) infrage kommen [24]. Wenn eine Kühlung unterhalb der kritischen Temperatur bei einem Druck, der kleiner ist als der kritische Druck (von Xenon), erreicht wird, sollte eine Tröpfchenbildung von Xenon beobachtbar sein. Dies kann ein Ziel künftiger Experimente mit dichten atomaren Gasmischungen sein.

4.2.3 Messungen zur Parameterabhängigkeit des Kühleffekts

Nach den zuvor gezeigten Experimenten mit unterschiedlichen optischen Dichten und geringfügig anderen Puffergasdrücken werden in diesem Abschnitt Untersuchungen hinsichtlich der Parameterabhängigkeit des Kühleffekts dargestellt.

Da es schwierig ist, die Absorption bzw. optische Dichte gezielt zu kontrollieren, da ein Absenken der Zelltemperatur gelegentlich eine Undichtigkeit hinsichtlich der Fensterdichtungen zur Folge hatte, bzw. eine Änderung der Zelltemperatur eine nicht präzise kontrollierbare Änderung der optischen Dichte bewirkt, bieten sich stattdessen als einfacher zu ändernde Parameter der Puffergasdruck, und die Verstimmung, also die Wellenlänge des eingestrahlenen Kühllasers, sowie

die eingestrahelte Leistung an. Im Folgenden wird zuerst eine Messreihe für die Kühlung einer Rubidium-Argon-Mischung bei fester eingestrahelter Wellenlänge $\lambda = 810 \text{ nm}$ des kollimierten Laserstrahls und Leistung $P_{\text{in}} = 1,1 \text{ W}$ und unterschiedlichen Drücken gezeigt. Die Hochdruck-sichtzelle wurde bei einer Temperatur $T = 623 \text{ K}$ betrieben. Beginnend bei einem Puffergasdruck von $p = 290 \text{ bar}$ wurde für jeden Druck das Ablenk Winkelprofil gemessen und daraus die jeweilige Temperaturänderung berechnet, wie zuvor im Abschnitt 4.2.1 erläutert. Die berechneten relativen Temperaturänderungen in Abhängigkeit des Puffergasdrucks sind in Abbildung 4.8 dargestellt.

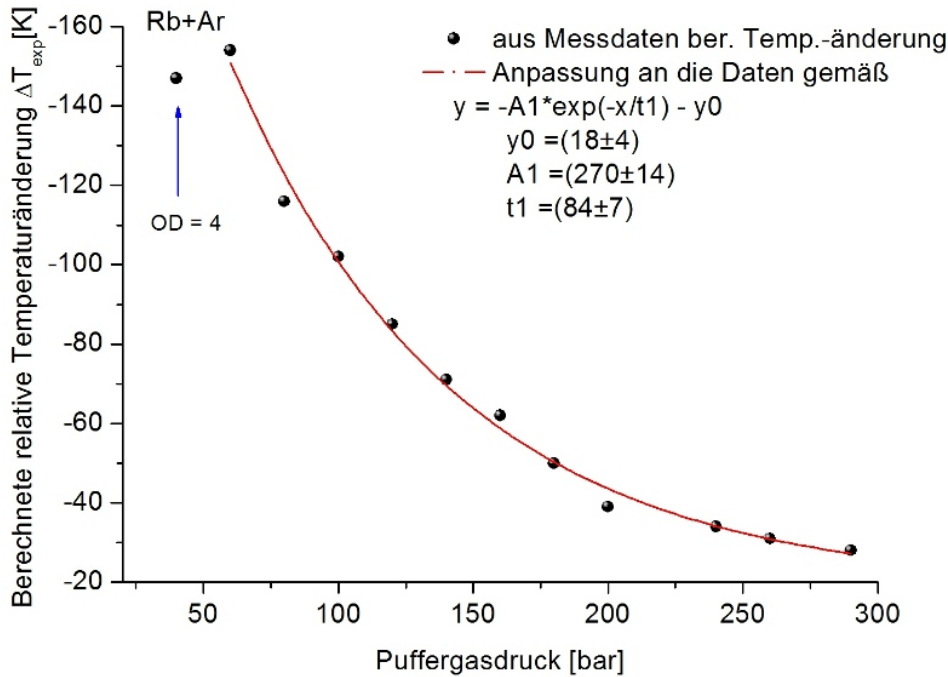


Abbildung 4.8: Verlauf der relativen Temperaturänderung bei konstanter eingestrahelter Leistung und eingestrahelter Wellenlänge als Funktion des Puffergasdrucks, der in mehreren Schritten von 290 bar bis 40 bar variiert wird. Die gemessene optische Dichte ist zwischen 290 bar und 60 bar jeweils circa 10, und sinkt bei 40 bar auf einen Wert von 4 ab, wie markiert.

Die höchste Temperaturänderung wird für einen Druck von 60 bar beobachtet, zu höheren Drücken hin ist ein exponentiell mit dem Druck skalierender Abfall zu beobachten, wie auch die Anpassung (in rot dargestellt) verdeutlicht.

Zwischen den einzelnen Messungen wurde schrittweise der Puffergasdruck abgelassen. Es zeigt sich, dass die Temperaturänderung betragsmäßig mit fallendem Druck bis zu einem Druck von 60 bar zunimmt, und danach wieder abfällt. Um die Dichtigkeit der Zelle nicht zu gefährden, deren Dichtungen sensitiv auf Druckminimierung reagieren können, wurde nur bis zu einem minimalen Druck von 40 bar gemessen, da bei diesem Wert auch die gemessene Absorption deutlich abnahm und die optische Dichte nur noch ungefähr 4 betrug; bei den Messungen mit höherem Druck blieb die optische Dichte bei einem Wert von etwa 10. Dies hat gemäß der in Abschnitt 3.4 gezeigten Berechnung der Temperaturverteilung aus der Ablenk Winkelverteilung einen deutlichen Einfluss auf die Temperaturänderung. Die verringerte Absorption bei der eingestrahelten Wellenlänge wird auf ein aufgrund des niedrigeren Puffergasdrucks verändertes Absorptionsspektrum zurückgeführt, da die Absorptionswahrscheinlichkeit bei einer Wellenlänge auch druckabhängig ist.

An die Temperaturänderungen wurde eine Anpassung gemäß eines exponentiellen Abfalls ge-

macht. Im Bereich höherer Drücke beschreibt diese Anpassung das Verhalten. Um das Verhalten im Bereich höherer Drücke genauer beurteilen zu können, bedarf es zukünftig noch genauere Messungen im Bereich ab einem Druck von 200 bar. Eine genauere Betrachtung der Potentiale des Quasimoleküls für unterschiedliche Drücke könnten Rückschlüsse auf das druckabhängige Verhalten der gekühlten Gasmischungen erlauben.

Analog dazu wurde zu einem späteren Zeitpunkt diese Messung auch für eine Rubidium-Xenon-Mischung durchgeführt, deren Ergebnis in Abbildung 4.9 zu sehen ist. Hier wurde die Temperaturänderung durch thermische Ablenkungsspektroskopie im Bereich geringerer Drücke als bei der vorherig gezeigten Messung untersucht. Durch die Verwendung einer selbstkonstruierten Zelle, deren Dichtprinzip weniger sensitiv auf kleine Drücke ist, konnte hier der Bereich für kleinere Puffergasdrücke bis zu 25 bar untersucht werden, ohne die Dichtigkeit der Zelle zu gefährden. Eingestrahlt wurde für diese Experimente eine Leistung $P \approx 1,2 \text{ W}$ bei anfänglicher Temperatur der Gasmischung von $T = 623 \text{ K}$.

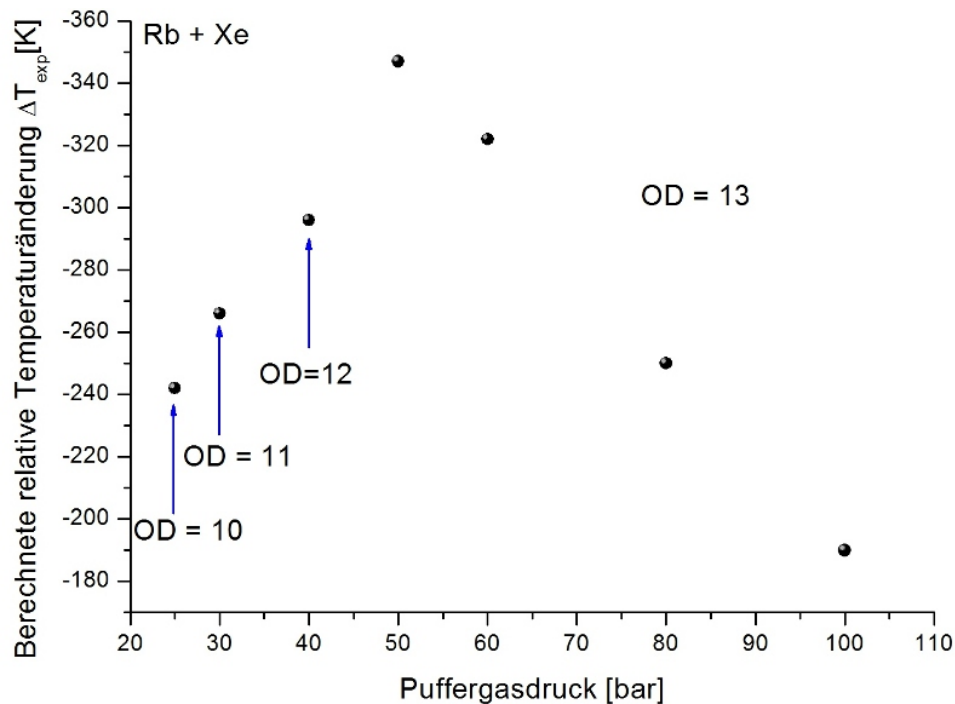


Abbildung 4.9: Untersuchung der Druckabhängigkeit der beobachteten Temperaturänderung einer dichten Rubidium-Xenon-Mischung für verschiedene Puffergasdrücke zwischen 25 bar und 100 bar. Bei konstanter eingestrahelter Laserleistung wurde jeweils anhand von thermischer Ablenkungsspektroskopie die Temperaturänderung bestimmt. Für die Messungen bei Drücken zwischen 50 bar und 100 bar betrug die optische Dichte (OD) für die Messungen 13, für die Messungen bei geringeren Drücken war der Absorptionskoeffizient geringer, wie in den Graphen eingezeichnet.

Hier zeigt sich eine ähnliche Abhängigkeit für Drücke bis zu 100 bar. Die Temperaturänderung ist für einen Xenondruck von 50 bar am größten und fällt mit höheren Drücken linear ab. Im Bereich zwischen 50 bar und 100 bar ist der Absorptionskoeffizient konstant, die optische Dichte beträgt für jede dieser Messungen $OD = 13$. Im Bereich kleinerer Drücke fällt die berechnete Temperaturänderung geringer aus. Ab einem Druck von 40 bar sinkt die optische Dichte mit jeder Messung um je Eins auf einen Wert von 10 bei einem Puffergasdruck von 25 bar. Dies kann erneut auf eine verringerte Absorptionswahrscheinlichkeit bei der eingestrahelten Wellen-

länge zurückzuführen sein und bedarf weiterer Messungen.

Nachfolgend wird eine Messreihe vorgestellt, bei der für einen festen Druck jeweils drei Messungen zur thermischen Ablenkungsspektroskopie in einer dichten Rubidium-Argon-Mischung mit unterschiedlichen Wellenlängen rotverstimmt zur Resonanz durchgeführt und daraus die Temperaturänderung berechnet wurde. Nach den je drei Messungen wurde dann der Druck verringert, und erneut für die drei verschiedenen Wellenlängen des Kühllasers das Ablenkungsprofil aufgrund der Temperaturänderung vermessen. Abbildung 4.10 zeigt das Ergebnis dieser Messreihe. Bei jeweils konstanter Kühllaserleistung $P_{\text{Laser}} = 2 \text{ W}$ wurde Licht der Wellenlängen $\lambda = 815 \text{ nm}$, $\lambda = 810 \text{ nm}$, $\lambda = 805 \text{ nm}$ eingestrahlt.

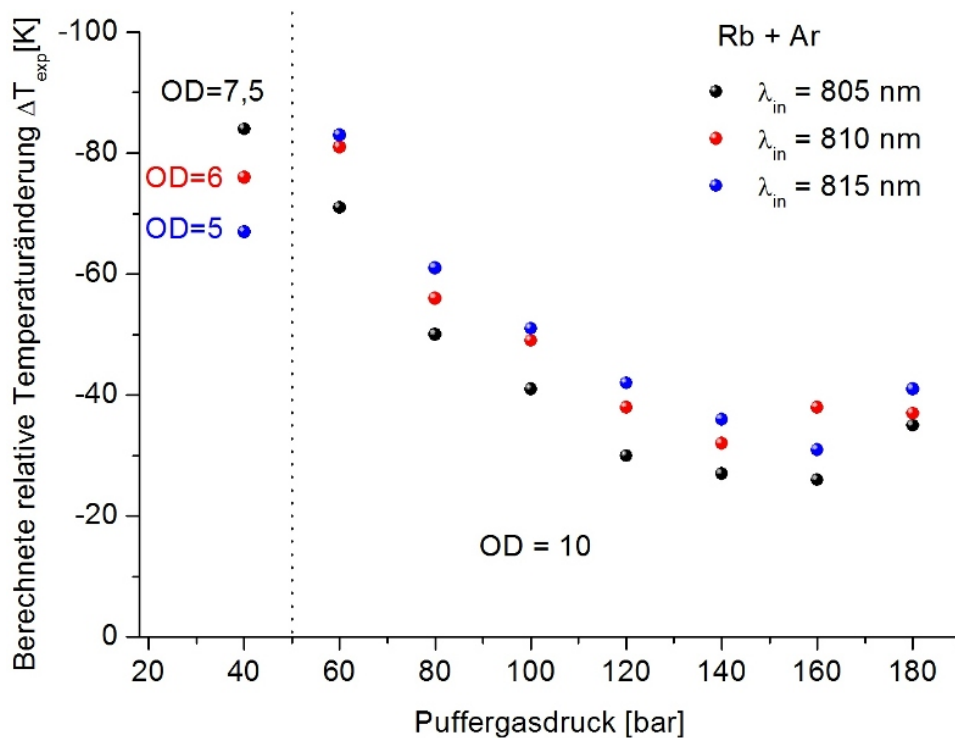


Abbildung 4.10: Für unterschiedliche, eingestrahelte Wellenlängen bei konstanter Laserleistung $P_{\text{in}} = 2 \text{ W}$ bestimmte relative Temperaturänderungen als Funktion des Puffergasdrucks für eine Rubidium-Argon-Mischung. Für die beiden größeren, eingestrahelten Wellenlängen ähnelt die Abhängigkeit der relativen Temperaturänderung vom Puffergasdruck dem zuvor in Abbildung 4.8 gezeigten Verlauf für den Bereich mittlerer und kleinerer Drücke. Für höhere Drücke scheint die Temperaturänderung jedoch nicht zu sättigen, sondern betraglich wieder anzusteigen. Um dies jedoch final einordnen zu können, bedarf es weiterer Messungen in höheren Druckbereichen. Betrachtet man den Verlauf der Abhängigkeit für die kleinste eingestrahelte Wellenlänge ($\lambda = 805 \text{ nm}$), ist zu erkennen, dass mit fallendem Druck die Temperaturänderung nicht wie bei beiden höheren Wellenlängen betraglich einbricht, sondern weiter ansteigt, vermutlich aufgrund der bei der Wellenlänge noch deutlich höheren Absorption. Gestrichelt eingezeichnet ist die Grenze zwischen dem Bereich unterschiedlicher Absorptionskoeffizienten für die verschiedenen Wellenlängen sowie dem Bereich der für alle drei Wellenlängen konstanten optischen Dichte.

Bei Betrachtung des Verlaufs der relativen Temperaturänderung in Abhängigkeit des Puffergasdrucks ist erkennbar, dass für die beiden höheren Wellenlängen $\lambda = 810 \text{ nm}$, 815 nm im Bereich mittlerer und kleinerer Drücke ein zur vorherigen Messung wie in Abbildung 4.8 gezeigt konsis-

tes Verhalten beobachtbar ist. Für hohe Drücke ab ungefähr 140 bar zeigt sich jedoch eine Diskrepanz zur vorherigen Messung, hier steigt die Temperaturänderung vom Betrag her wieder an.¹² Dies ist auch bei der Messreihe mit der geringsten Wellenlänge $\lambda = 805$ nm zu erkennen, jedoch zeigt sich hier kein betragliches Absinken der Temperaturänderung bei kleinen Drücken. Zusammen mit der aus den gemessenen Leistungen vor und hinter der Zelle bestimmten optischen Dichte und deren Verlauf bei Variation des Puffergasdrucks legt das eine Erklärung im Quasimolekülbild wie in Abschnitt 2.5 nahe. Für die Messungen ab einem Druck von 60 bar betrug die optische Dichte für alle drei Wellenlängen $\alpha \cdot L = OD \approx 10$, bei einem Druck von $p = 40$ bar zeigte sich ein Einbruch der optischen Dichten, $OD(\lambda = 815 \text{ nm}) \approx 5$, $OD(\lambda = 810 \text{ nm}) \approx 6$, $OD(\lambda = 805 \text{ nm}) \approx 7,5$. Für geringere Drücke steigt der Abstand zwischen Alkali- und Edelgasatom an, und eine Absorption eines rotverstimmten Photons ist für kleinere Verstimmungen wahrscheinlicher, da die größere Energiedifferenz bei einer im Vergleich zu höheren Puffergasdrücken geringeren Verbreiterung somit eher überbrückt werden kann.

Für eine abschließende Beurteilung des Verhaltens in Bereichen hoher Drücke bedarf es weiterer, zukünftiger Messungen. Aufgrund des begrenzten Fülldrucks der kommerziellen Argon-Gasflasche konnten im Rahmen dieser Messreihe keine Experimente mit höheren Puffergasdrücken unter gleichen experimentellen Bedingungen wie zuvor durchgeführt werden.

Dass ein (zumindest lokales) Maximum der Temperaturänderung bei kleineren Drücken im Bereich zwischen 40 bar und 60 bar zu beobachten ist, kommt Messungen mit den schwereren Edelgasen Krypton und Xenon entgegen, da diese nur in Flaschen mit geringeren Fülldrücken erhältlich sind.

Eine generelle Abhängigkeit zwischen Temperaturänderung, Druck und Wellenlänge des eingestrahnten Kühllasers lässt sich bei Betrachtung der idealen Gasgleichung verstehen. Bei sinkender Temperatur T steigt die Dichte $\rho = N/V$ bei konstantem Druck p in der Kühlregion (wie gemäß [84] angenommen). Dieser Effekt hat einen Einfluss auf das Fluoreszenzspektrum; der Schwerpunkt der Fluoreszenz verschiebt sich hin zu höheren Wellenlängen, und der Kühlvorgang stoppt, wenn die Schwerpunktfrequenz der Fluoreszenz der eingestrahnten Laserfrequenz entspricht. Es gibt somit immer einen optimalen Parametersatz aus eingestrahelter Wellenlänge und Druck. Untersuchungen hinsichtlich der redistribuierten Fluoreszenz als Funktion des Drucks [55] deuten ebenfalls darauf hin.

Eine genauere Bestimmung lässt sich erst mit gleichzeitiger Messung von Fluoreszenz- und Absorptionsspektren treffen, die Gegenstand zukünftiger Experimente sein sollen. Mitunter wegen des in den Fluoreszenzspektren ebenfalls detektierten Streulichts war dies aus bisherigen Messungen nicht zu ermitteln.

Um die Abhängigkeit der relativen Temperaturänderung als Funktion der eingestrahnten Leistung zu untersuchen, wurden mehrere Messungen thermischer Ablenkungsspektroskopie bei fester Wellenlänge ($\lambda = 810$ nm), fester Anfangstemperatur (700 K), sowie festem Puffergasdruck (150 bar) an einer dichten Rubidium-Argon-Mischung durchgeführt. Abbildung 4.11 zeigt die relative Temperaturänderung als Funktion der direkt vor der Hochdrucksichtzelle gemessenen Leistung des Kühllaserstrahls.

Es zeigte sich, dass die relative Temperaturänderung bei kleinen und mittleren eingestrahnten Leistungen zunahm, ab einer Leistung $P = 2,6$ W jedoch zu sättigen schien. Die optische Dichte war für jede dieser Messungen konstant bei einem Wert von 4,6.

Da die Ausgangsleistung des Titan-Saphir-Lasers keine Messungen mit höherer eingestrahelter Leistung erlaubte, wurde die Messung zur Leistungsabhängigkeit mit einem Diodenlaser hoher

¹²Die Diskrepanz zwischen den in den beiden Abbildungen 4.8 und 4.10 gezeigten Messreihen hinsichtlich der berechneten Temperaturänderungen bei ähnlichen optischen Dichten wird auf unterschiedliche, eingestrahelte Intensitäten aufgrund unterschiedlicher Strahldurchmesser zurückgeführt.

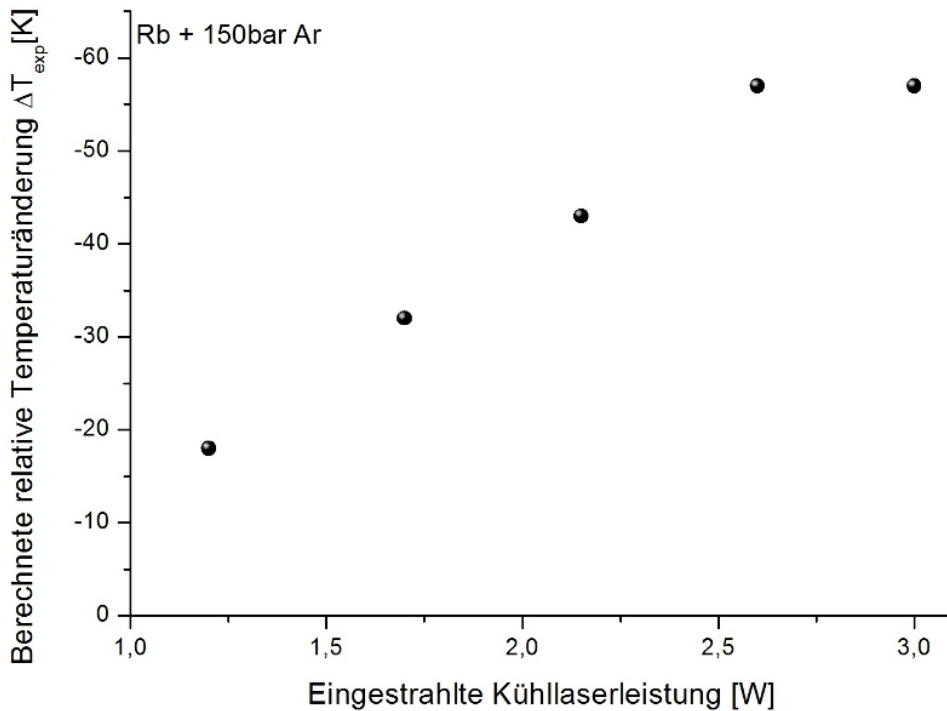


Abbildung 4.11: Beobachtete Temperaturänderung als Funktion der eingestrahnten Leistung des Kühllasers (Wellenlänge $\lambda = 810 \text{ nm}$, Strahltaile $2w_0 \approx 700 \mu\text{m}$). Nach einem linearen Anstieg scheint die Kühlung bei hohen Leistungen zu sättigen.

Leistung wiederholt.

Für eine Rubidium-Argon-Mischung bei einem konstanten Druck von 170 bar und einer anfänglichen Gastemperatur von 700 K wurden für verschiedene eingestrahnte Leistungen anhand thermischer Ablenkungsspektroskopie das Temperaturprofil bestimmt, und die Temperaturänderung als Funktion der eingestrahnten Laserleistung aufgetragen. Dies ist in Abbildung 4.12 zu sehen.

Es zeigt sich wie in den Experimenten mit dem Titan:Saphir-Laser als Kühllaser eine Stagnation der beobachteten Temperaturänderung als Funktion der Leistung. Diese ersten Experimente mit dem Hochleistungsdiodenlaser wurden mit einem Strahldurchmesser von ca. 1,2 mm durchgeführt, somit sind die eingestrahnten Intensitäten (die maximal-ingestrahnte Intensität betrug hier $1,3 \cdot 10^6 \text{ mW/cm}^2$) circa eine Größenordnung größer als bei den Messungen mit dem Titan:Saphir-Laser als Kühllaser.

In Abschnitt 2.3 wurde das Verfahren zur Abschätzung der Sättigungsintensität für eine Verstimmung relativ zu den betrachteten atomaren Übergängen dargestellt. Darauf aufbauend werden diese Werte mit den hier eingestrahnten Intensitäten verglichen, um festzustellen, ob das beobachtete Verhalten auf eine Sättigung der D-Resonanzen zurückzuführen ist.

In den hier durchgeführten Messungen mit dem Titan:Saphir-Laser wurde der Kühllaser auf einen Durchmesser von $2w_0 \approx 700 \mu\text{m}$ fokussiert. Die in die Hochdrucksichtzelle eingestrahnten Intensitäten lagen somit zwischen $((3,1 - 7,8) \cdot 10^5 \text{ mW/cm}^2)$. Diese Intensitäten liegen ungefähr zwei Größenordnungen unter der Sättigungsintensität für verstimmte Einstrahlung hinsichtlich der D-Resonanzen, $I_{\text{sat}}(D1) = 5,6 \cdot 10^7 \text{ mW/cm}^2$, $I_{\text{sat}}(D2) = 9,4 \cdot 10^7 \text{ mW/cm}^2$, daher kann eine Sättigung der Resonanzen und somit des beobachteten Kühleffekts eigentlich ausgeschlossen werden, wenn man zusätzlich annimmt, dass der Einfluss des hohen Puffergasdrucks auf die Sättigungsintensität gering ausfällt.

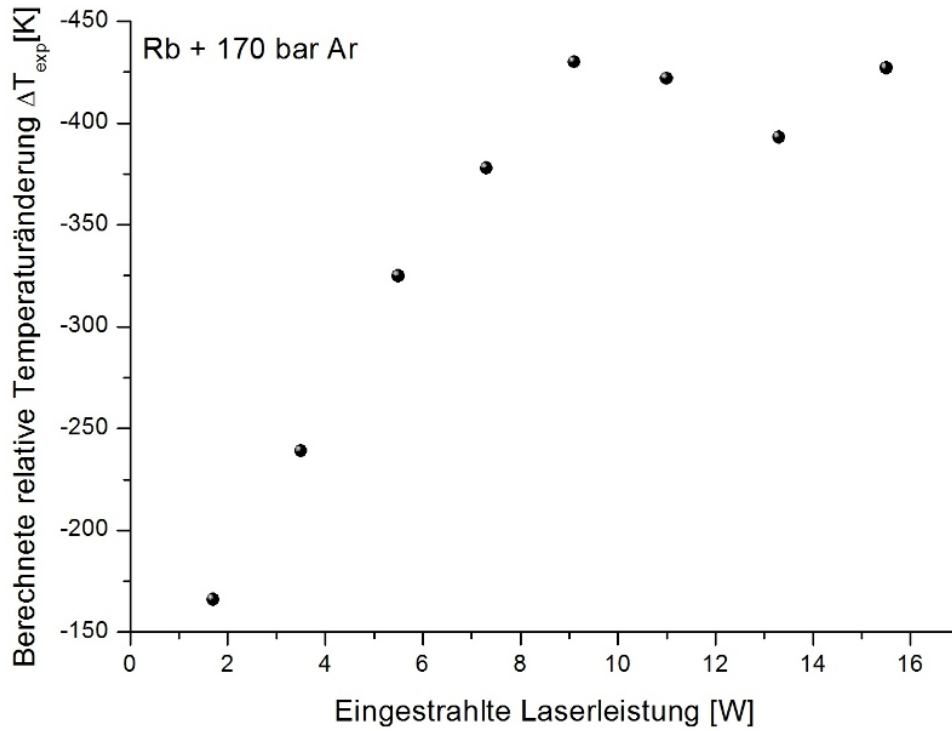


Abbildung 4.12: Beobachtete Temperaturänderung als Funktion der eingestrahnten Leistung für Experimente mit dem Diodenlaser hoher Ausgangsleistung. Eingestrahlt wurde der Laser bei einer Wellenlänge $\lambda = 808 \text{ nm}$ mit einer Strahltaille $2w_0 \approx 1,2 \text{ mm}$. Nach einem linearen Anstieg sättigt die Kühlung bei hohen Leistungen.

Zukünftig könnte die redistribuierte Fluoreszenz als Funktion der eingestrahnten Leistung noch genauer gemessen werden, als in früheren Experimenten erfolgt [17]. In Experimenten zur Redistribution in dünneren Gasmischungen [55] ist eine Sättigung der Fluoreszenz als Funktion der eingestrahnten Leistung zu beschreiben, dies wird auf Strahlungseinschluss, also der Reabsorption von Fluoreszenzphotonen in (dichten) Gasen [105, 106], zurückgeführt. Frühere Messungen zur Lebensdauer sprechen gegen ein Auftreten dieses Effekts, spätere zeigen jedoch eine um einige, wenige Nanosekunden verlängerte Lebensdauer des angeregten Zustands [17], was auf den Effekt des Strahlungseinschlusses zurückgeführt wird. Dies könnte ein Grund für die beobachtete Stagnation der Temperaturänderung in Abhängigkeit der eingestrahnten Intensität sein.

Diesen Abschnitt zur parameterabhängigen Betrachtung des Kühleffektes abschließend wird nun eine Messung zur Temperaturänderung für eine Rubidium-Argon-Mischung bei 60 bar und anfänglicher Temperatur $T = 710 \text{ K}$ vorgestellt. Bei einer Wellenlänge $\lambda = 810 \text{ nm}$ und einer eingestrahnten Leistung $P_{\text{in}} \approx 3 \text{ W}$ wurde eine relative Temperaturänderung von $\Delta T_{\text{exp}} = -500 \text{ K}$ aus der Verteilung der Ablenkwinkel berechnet. Diese Messung wurde mit den laut der zuvor gezeigten Beobachtungen geeignetesten Parametern durchgeführt.

Die gemessene, optische Dichte für die Messung betrug $\alpha \cdot L = 6,9$, weshalb die berechnete Temperaturänderung trotz geeigneterer Parameter, verglichen mit der zuvor gezeigten Messung bei 220 bar Puffergasdruck, eine geringere relative Temperaturänderung aufweist, weil die konstant angenommene Absorption α entlang der Propagationsrichtung des Lasers innerhalb der Zelle (Weglänge L) und somit die Kühlleistung hier geringer ausfällt. Simulationen zu diesem Parametersatz finden sich im Anhang D.

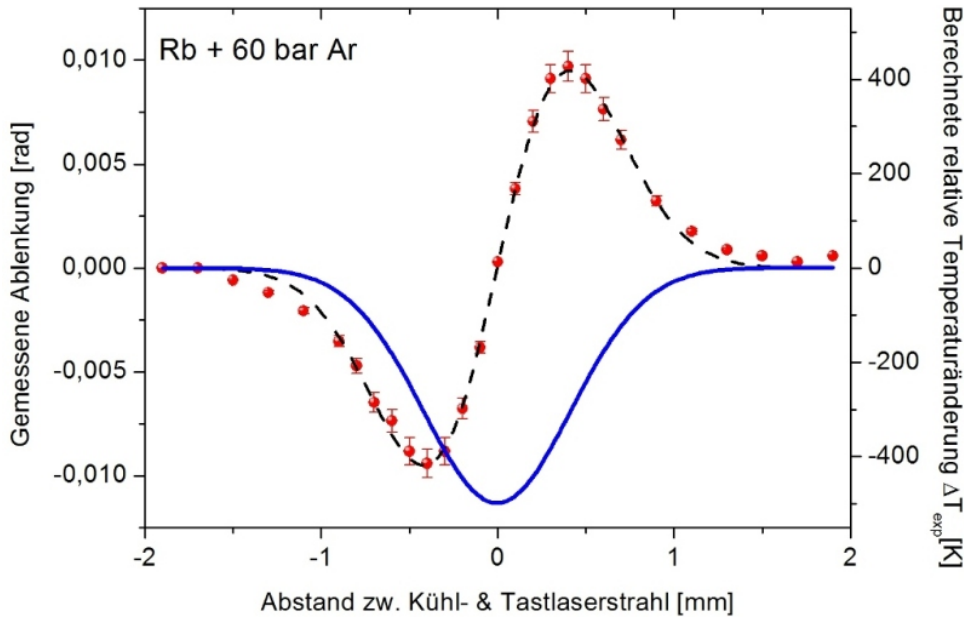


Abbildung 4.13: Thermische-Ablenkspektroskopie-Messung zur Bestimmung der Temperaturänderung in einer Rubidium-Argon-Mischung bei 60 bar, die roten Punkte stellen die gemessenen Werte dar; gestrichelt ist die theoretische Anpassung an diesen Verlauf. Messungen zur Parameterabhängigkeit zeigen bei diesem Druck die größte relative Temperaturänderung (blau dargestellt). Für eine eingestrahelte Leistung von ca. $P_{\text{in}} \approx 3 \text{ W}$ berechnet sich die Temperaturänderung zu $\Delta T_{\text{exp}} = -500 \text{ K}$, beginnend bei einer anfänglichen Temperatur der Gasmischung von $T = 710 \text{ K}$.

4.2.4 Experimente mit einem Diodenlaser hoher Ausgangsleistung als Kühllaser

Da die Kühlleistung P_{K} nach Gleichung 2.46 von der eingestrahelten Leistung abhängt, wurde neben dem Titan:Saphir-Laser auch ein Mehrmoden-Diodenlaser hoher Ausgangsleistung in den experimentellen Aufbau integriert, um mit höheren eingestrahelten Laserleistungen zu experimentieren, als es mit dem Titan:Saphir-Laser möglich ist. Erste Experimente mit einem ähnlichen Laser erlaubten bereits die Beobachtung einer Kühlung einer dichten Gasmischung [107]. Aufgrund ihrer Verwendung als Pumpdioden für (frequenzverdoppelte) Nd:YAG-Laser sind solche Laserdioden in Bereichen hoher Ausgangsleistungen erhältlich.

Wie bereits im Abschnitt 3.2.2 dargestellt, gestaltete sich die Fokussierung des aus der Faser austretenden Lichts als aufwändig und konnte schließlich mit zwei parabolisch geformten Kupferspiegeln realisiert werden. Bei der Justage wurde mit einer CCD-Kamera und mehreren Strahlabschwächern kontrolliert, dass der Strahl im Fokus rund und frei von deutlich erkennbarem Astigmatismus ist.

Wie beim Aufbau für die thermische Ablenkungsspektroskopie für Experimente mit Titan:Saphir als Kühllaser wurde hier parallel zum Diodenlaser wieder der nicht-resonante Helium-Neon-Laser in die Hochdrucksichtzelle eingestrahlt und zum Abtasten der Kühlregion mit einem Verschiebetisch bewegt. Abbildung 4.14 zeigt qualitativ eine solche Messung für eine Rubidium-Argon-Mischung.

Es zeigte sich, dass trotz vorheriger, sorgfältiger Überprüfung des Fokus das Nicht-Gauß'sche Intensitätsprofil des Diodenlasers eine nicht-vernachlässigbare Rolle spielte und das durch den Tastlaser abgerasterte Temperaturprofil eine deutliche Asymmetrie hinsichtlich der Winkelverteilung aufwies. Die Temperaturverteilung ist aus dieser asymmetrischen Winkelverteilung ab-

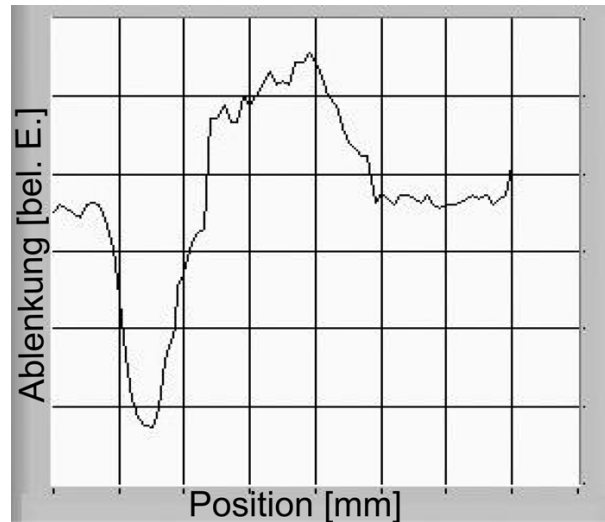


Abbildung 4.14: Qualitative Darstellung des mit dem Hochleistungsdiolenlaser gemessenen Ablenkungsprofils für die Temperaturänderung in einer Rubidium-Argon-Mischung anhand eines Bildschirmfotos der LabView-Oberfläche zur Experimentsteuerung. Das Ablenkprofil ist nicht symmetrisch, was auf das Nicht-Gauß'sche Intensitätsprofil zurückgeführt wird. Entsprechend ist das Temperaturprofil nicht symmetrisch abtastbar, und die Temperaturänderung nur sehr grob abschätzbar.

schätzbar, jedoch mit einem großen Fehler behaftet. Für zukünftige Messungen bietet es sich daher an, mit der neuen Hochdrucksichtzelle mit zwei optischen Achsen zu arbeiten, um die Kühlregion auch transversal zu vermessen, bzw. eine andere Technik zur Messung der Temperaturänderung zu verwenden, um genauere Aussagen über die mit dem Diodenlaser erzielbare Kühlresultate treffen zu können.

Es waren nur wenige, erste Experimente vor Anschaffung der Kupferparabeln möglich, bei denen der Kühllaserstrahl mit einer Plankonvexlinse und durch Filtern mit mehreren Blenden, und damit verbunden, einem Leistungsverlust von ca. einem Drittel der Ausgangsleistung, auf einen großen Strahldurchmesser $\geq 1,2$ mm fokussiert wurde. Insgesamt ergeben sich damit jedoch nur Intensitäten, die nur wenig über den Intensitäten des Titan:Saphir-Lasers liegen, weshalb hier keine weiteren dieser Messungen genauer vorgestellt werden.

4.3 Laserkühlung dichter Kalium-Argon-Mischungen

Für Experimente mit Kaliumatomen in einer Puffergasumgebung bei hohem Druck musste die Hochdrucksichtzelle aufgrund des niedrigeren Dampfdrucks von Kalium im Vergleich zu Rubidium bis an ihr Temperaturlimit ($T = 450^\circ\text{C}$) geheizt werden, um eine ausreichend hohe optische Dichte für die Experimente gewährleisten zu können (siehe die berechneten Teilchenzahldichten als Funktion der Temperatur in Abschnitt 2.1). Die Potentialkurven des KAr-Quasimoleküls sind mit denen des in Abschnitt 2.5 gezeigten RbAr-Quasimoleküls vergleichbar [108, 109].

Unter Verwendung eines konfokalen Fluoreszenzaufbaus wie in 3.3 beschrieben, wurden mehrere Spektren aufgenommen, um die für den Kühlprozess vorausgesetzte Fluoreszenzredistribution zu beobachten. Zwei typische Spektren sind in Abb. 4.15 dargestellt.

Mit einer eingestrahlten Laserleistung $P_{\text{in}} \approx 0,6$ W fokussiert auf eine Strahltaile $2w_0 = 6 \mu\text{m}$ wurde die emittierte Fluoreszenz sowohl rot- ($\lambda = 780$ nm), als auch blauverstimmt ($\lambda = 765$ nm) zu den atomaren Resonanzen spektral aufgelöst detektiert. Redistribution in Richtung der atomaren Resonanzen ist deutlich erkennbar, ebenso wie eine starke Rotverschiebung der D_2 - bzw.

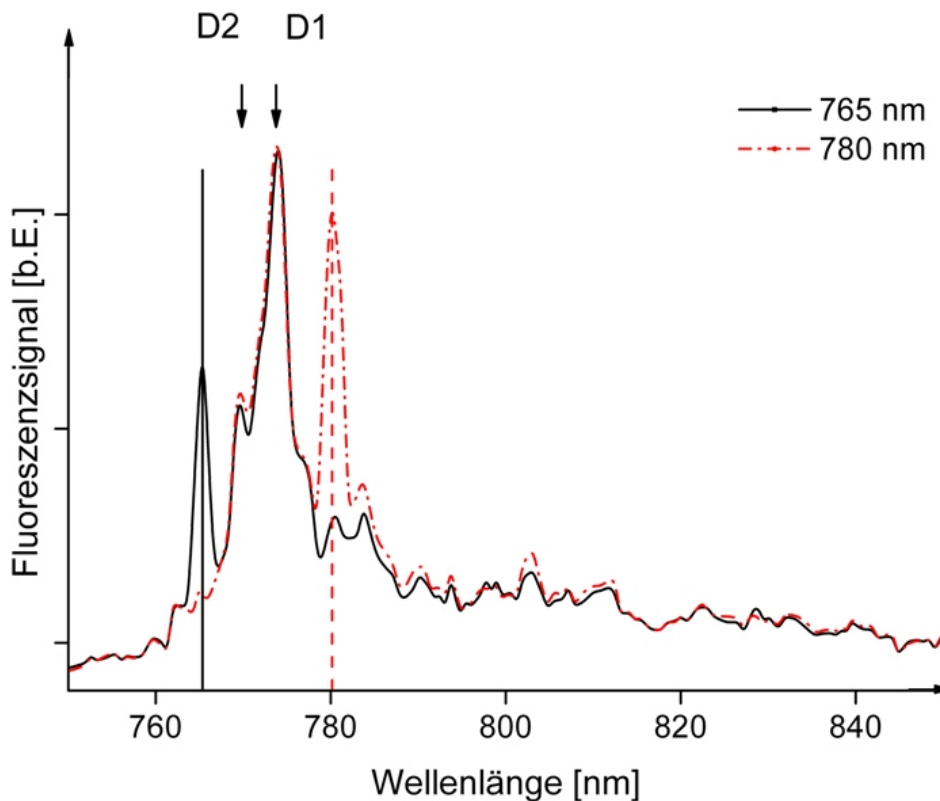


Abbildung 4.15: Spektrum emittierter Fluoreszenz von Kaliumatomen in 200 bar Argon-Puffergas, detektiert in einem konfokalen Fluoreszenzaufbau und mittels eines optischen Spektrometers. Für Wellenlängen $\lambda = 780$ nm (rot verstimmt zu den Resonanzen, rot dargestellt), sowie $\lambda = 765$ nm (blau verstimmt) ist eine Redistribution der Fluoreszenz hin zu den atomaren Resonanzen deutlich zu erkennen. Außerdem ist jeweils die Position des eingestrahlt Lasers zur besseren Übersichtlichkeit eingezeichnet. Die eingestrahelte Laserleistung betrug jeweils $P_{\text{in}} \approx 0,6$ W.

D1-Linie um je 3 – 4 nm verglichen mit den ungestörten Resonanzen.

Weiterhin sichtbar ist das Streulicht des eingestrahlt Lasers an der entsprechenden spektralen Position, zurückzuführen auf nicht-ausreichendes, räumliches Filtern. Aufgrund des schwächeren Signals als Konsequenz des niedrigeren Dampfdrucks der Kaliumatome, mussten für diese Messung größere Lochblenden verwendet werden als nötig gewesen wären, um Reflexe des Lasers beispielsweise an den unbeschichteten Oberflächen der Saphirzellenfenster weitestgehend zu filtern. Dass das Fluoreszenzsignal im Bereich höherer Wellenlängen größer ist - verglichen mit den Bereichen kleinerer Wellenlänge - und außerdem einige Resonanzen geringerer Intensität als die atomaren Kalium-D-Resonanzen aufweist, ist auf Satellitenbänder des Kalium-Argon-Quasimoleküls zurückzuführen [110, 111].

Messungen zur thermischen Ablenkungsspektroskopie wie in 3.4 erläutert wurden für unterschiedliche Wellenlängen rot-verstimmt zu den Kaliumresonanzen durchgeführt. Bei einer eingestrahlt Wellenlänge $\lambda = 785$ nm des Titan-Saphir-Lasers und einer Leistung $P_{\text{in}} \approx 1,5$ W konnte die größte relative Temperaturänderung $\Delta T_{\text{exp}} \approx -280$ K beobachtet werden, wie in Abb. 4.16 dargestellt.

Das Brechungsindexprofil, das der parallel zum Kühllaser eingestrahlt Helium-Neon-Laserstrahl erfährt, wurde mit einer Schrittweite von $50 \mu\text{m}$ abgetastet. Beide Strahlen wurden zuvor auf

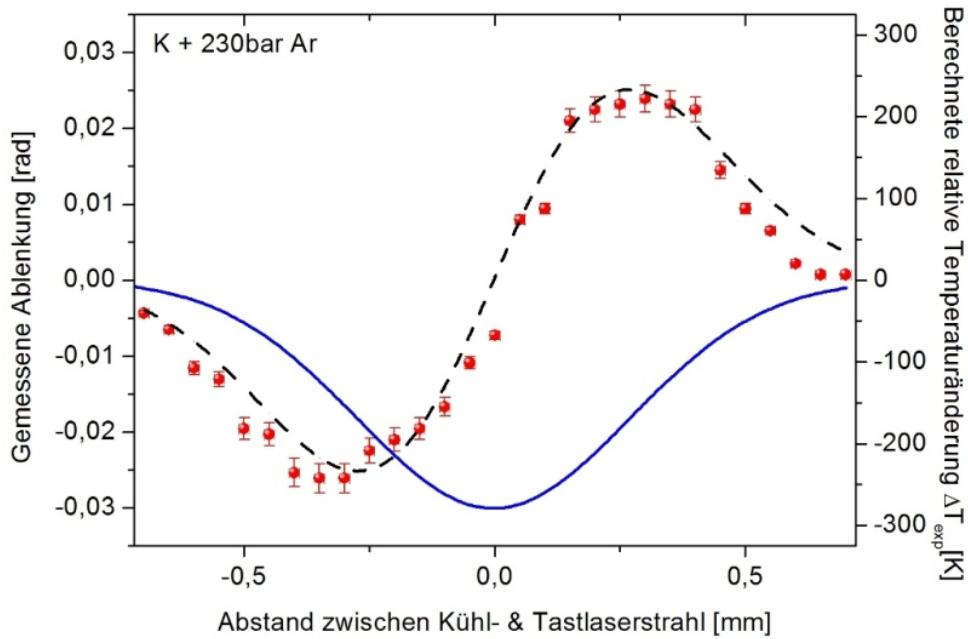


Abbildung 4.16: Ablenkungsmessung und berechnetes Temperaturprofil gemessen an einer Kalium-Argon-Mischung bei 200 bar. Eingestrahlt wurde der Titan:Saphir-Laser bei einer Wellenlänge $\lambda = 785$ nm rotverstimmt zu den ungestörten D-Resonanzen. Beobachtet wurde bei einer eingestrahlichten Leistung $P_{\text{in}} \approx 1,5$ W eine relative Temperaturänderung $\Delta T_{\text{exp}} \approx -280$ K. Das Brechungsindexprofil wurde mit einer Schrittweite von $50 \mu\text{m}$ abgetastet, sowohl der Kühl-, als auch der Tastlaser wurden auf Durchmesser von ca. $0,5$ mm fokussiert.

Strahldurchmesser von ca. $0,5$ mm fokussiert. Die optische Dichte betrug ungefähr ($\alpha L \approx 8,5$); dies entspricht einer Absorptionslänge $l_{\text{abs}} \approx 1,2$ mm. Mittels eines für diese Kühlwellenlänge aufgenommenen Fluoreszenzspektrums ähnlich denen in Abb. 4.15 dargestellten lassen sich außerdem die Kühlleistung und die Effizienz zu ungefähr 30 mW bzw. 2% abschätzen. Analog zu dieser Messung wurden auch Ablenkungsmessungen mit anderen Wellenlängen rot-verstimmt zu den Resonanzen durchgeführt; für Wellenlängen $\lambda = 780$ nm, 785 nm, 790 nm und 795 nm wurden relative Temperaturänderungen $\Delta T_{\text{exp}} = -150$ K, -280 K, -173 K sowie -93 K beobachtet.

4.4 Laserkühlung einer dichten Caesium-Argon-Mischung

Im Verlauf der Experimente zu dieser Arbeit wurde das Prinzip der Redistributionslaserkühlung noch auf andere Gasmischungen angewendet, die ebenfalls kurz erwähnt werden sollen. Im Folgenden wird die Kühlung einer atomaren Caesium-Argon-Mischung diskutiert, da sie von der Durchführung der Messungen an die zuvor gezeigten Messungen mit Rubidium- und Kaliumatomen in dichten Edelgasen anschließt, bevor im Anhang zu dieser Arbeit zwei unterschiedliche Ansätze, das Prinzip der Redistributionslaserkühlung auf dichte molekulare Gasmischungen anzuwenden, vorgestellt werden. Mittels eines im Rahmen einer Bachelorarbeit [93] gebauten Diodenlasers konnte die Laserkühlung einer Caesium-Argon-Mischung bei hohem Druck untersucht werden.

Der gebaute Diodenlaser hat eine feste Wellenlänge $\lambda \approx 915$ nm. Das Licht des Lasers ist somit rot-verstimmt zu den atomaren Caesium-Resonanzen bei $\lambda = 852$ nm und $\lambda = 894$ nm [112]. Bei einer Temperatur der Zelle von ca. $T = 560$ K wurden Messungen zur thermischen Ablenkungsspektroskopie für Caesiumdampf in 120 bar Argon-Puffergas durchgeführt. In $50 \mu\text{m}$ -Schritten

wurde das Temperaturprofil durch den Helium-Neon-Laser abgetastet und daraus die relative Temperaturänderung berechnet. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.17 zu sehen.

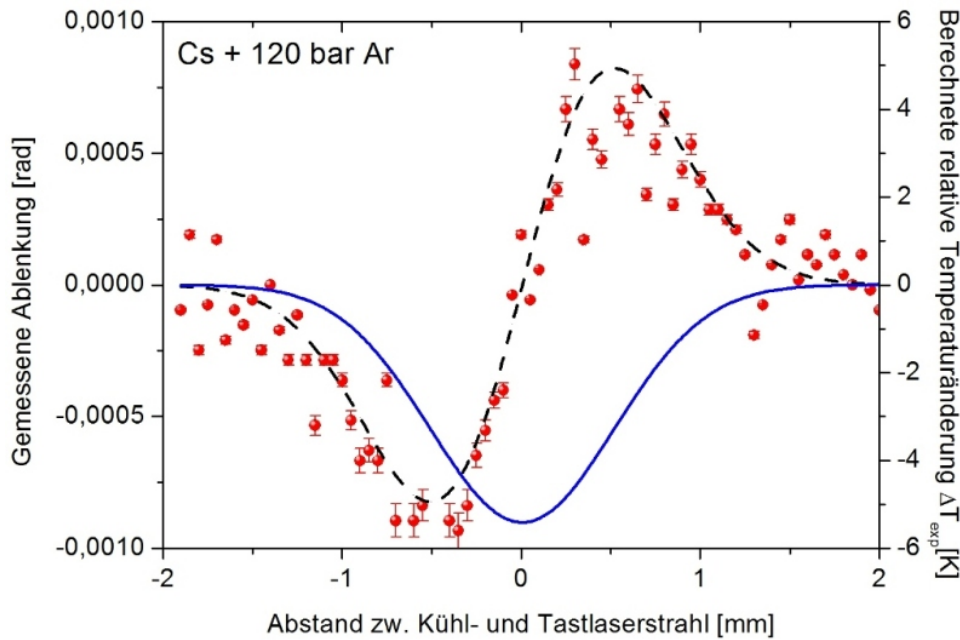


Abbildung 4.17: Ablenkungsmessung und berechnetes Temperaturprofil für eine Caesium-Argon-Mischung bei einem Puffergasdruck von 120 bar. Eingestrahlt wurde ein Diodenlaser bei einer Wellenlänge $\lambda = 915$ nm rotverstimmt zu den ungestörten atomaren Cs-D-Resonanzen. Beobachtet wurde bei einer eingestrahlichten Leistung $P_{\text{in}} \approx 0,5$ W eine relative Temperaturänderung $\Delta T_{\text{exp}} \approx -6$ K. Das Brechungsindexprofil wurde mit einer Schrittweite von $50 \mu\text{m}$ abgetastet.

Bei einer eingestrahlichten Leistung von ca. 0,5 W und einer gemessenen, konstant über die Länge der Zelle angenommenen Absorption $\alpha = 0,23/\text{mm}$ ergibt sich eine relative Temperaturänderung von ca. $\Delta T_{\text{exp}} \approx -6$ K. Durch die geringe optische Dichte ist der Kühleffekt sehr schwach und damit zusammenhängend die Dichteänderung gering. Die gemessenen Ablenkwinkel liegen daher ungefähr eine Größenordnung unter denen der zuvor gezeigten Messungen. Es zeigen sich stärkere Schwankungen hinsichtlich der theoretischen Anpassung an die Messdaten. Im Vergleich mit den zuvor gezeigten Messungen mit Rubidium- und Kaliumatomen fällt die relative Temperaturänderung hier geringer aus, dies ist auf die geringere Absorption in der dichten Gasmischung, sowie auf die deutlich geringere Kühllaserleistung zurückzuführen.

Die Kühlung von Caesium in dichten Edelgasen wurde wegen Mangel an einer durchstimmbaren Laser-Quelle nicht systematisch untersucht¹³, sondern nur punktuelle Messungen wie die gezeigte durchgeführt. Caesium besitzt einen höheren Dampfdruck als die beiden anderen untersuchten Alkali-Spezies [20], weshalb die verwendete Hochdrucksichtzelle für eine geeignete optische Dichte nicht so hoch geheizt werden müsste. Nach der obig gezeigten Messung wurde die verwendete Hochdrucksichtzelle jedoch undicht, sodass keine Messungen mit höherer Absorption mehr durchgeführt werden konnten. Ob die wesentlich größere Feinstrukturaufspaltung einen Einfluss auf den Kühleffekt hat, müsste systematischer untersucht werden, als bisher durch die wenigen Messungen bei fester Wellenlänge realisiert werden konnte.

¹³Bei dem für die Experimente mit Rubidium und Kalium verwendeten Titan:Saphir-Laser war ein Spiegelhalter im Ringresonator defekt, weshalb auf den Wechsel des wellenlängenselektiven Auskoppelspiegels verzichtet wurde.

5 Simulationen zur Temperaturverteilung in dichten Gasen

Die aus den im vorherigen Kapitel gezeigten Messungen bestimmten relativen Temperaturänderungen wurden mit einigen Annahmen bzw. Vereinfachungen berechnet. Gegenstand dieses Kapitels ist es daher, anhand experimenteller Parameter das jeweilige Temperaturprofil zu simulieren und daraus das zu erwartende, messbare Ablenkprofil zu bestimmen.

Im Folgenden wird zuerst das Verfahren zur Simulation der Temperaturverteilung, sowie daraus resultierend die Methodik zur Berechnung des Ablenk winkels als Funktion des Abstands zwischen Kühl- und Tastlaserstrahl vorgestellt. Anhand von zwei Datensätzen angelehnt an die im Abschnitt 4.2.1 vorgestellten Messungen wird anschließend ein Vergleich zwischen der aus Messdaten berechneten Temperaturänderung ΔT_{exp} und der theoretisch bestimmten relativen Temperaturänderung ΔT_{sim} erfolgt. Ferner erfolgt eine Betrachtung der gemessenen, sowie aus der simulierten Temperatur ausgerechneten Ablenk winkel und ein Vergleich derer.

5.1 Simulationen zur erwarteten Temperaturverteilung

Zur Berechnung der erwarteten Temperaturverteilung/-änderung als Funktion experimenteller Parameter wird die kommerzielle Software Comsol¹⁴ verwendet. Anhand der Auswahl der entsprechenden Module, die die jeweiligen physikalischen Themengebiete beeinhalt en, sowie der Vorgabe der entsprechenden Geometrie, lassen sich dann Lösungen für die dem betrachteten Problem zugehörigen Differentialgleichungen berechnen.

Für die hier betrachtete Fragestellung nach der zu erwarteten Temperaturänderung unter Vorgabe fester experimenteller Parameter wurde die Wärmetransportgleichung, wie in Abschnitt 2.6 bereits vorgestellt, gelöst:

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} - \nabla \cdot (\kappa(T) \nabla T) = Q \quad (5.1)$$

T bezeichnet die Temperatur, t die Zeit, ρ die Gasdichte, C_p ist die Wärmekapazität bei konstantem Druck, $\kappa(T)$ die thermische Leitfähigkeit, sowie Q die Leistungsdichte der Wärmequelle bzw. - wie in den betrachteten Experimenten - Wärmesenke oder Kühlquelle. Die thermische Leitfähigkeit wird in den Simulationen temperaturabhängig betrachtet.

Gleichung 5.1 ist zeitabhängig, jedoch genügt es für den Kühlprozess hier, die stationäre Lösung der Gleichung zu betrachten, wie an einem Beispieldatensatz erkennbar ist (siehe Abb. 5.2), wo die Temperaturverteilung in Schritten von 10 ms berechnet und mit dem stationären Lösung verglichen wurde. Die Einstrahldauer ist bei den verwendeten experimentellen Parametern lang genug, dass am Ende die stationäre Temperatur erreicht wird.

Für die Leistungsdichte der Kühlquelle Q gilt es, einen Ausdruck zu finden, der von experimentell zugänglichen Größen abhängt. Unter Berücksichtigung von [96, 113] lässt sich für einen einfallenden Laserstrahl mit Gauß'schem Intensitätsprofil (Strahlradius w_0) der folgende Ausdruck herleiten:

$$Q(r, z) = \frac{2\alpha P_K}{\pi w_0^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{w_0^2}\right) \exp(-\alpha z) \quad (5.2)$$

$$= \frac{2\alpha P_{\text{Laser}} \eta}{\pi w_0^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{w_0^2}\right) \exp(-\alpha z) \quad (5.3)$$

¹⁴Comsol Multiphysics, eine Software zur Simulation physikalischer Phänomene, die anhand von Differentialgleichungen gelöst werden können, basierend auf der Methode finiter Elemente, einem numerischen Verfahren zur Lösung partieller Differentialgleichungen

Die Kühlleistung P_K wurde hier durch die einfallende Leistung P_{Laser} und die Effizienz η , einer Funktion aus der Absorptionswahrscheinlichkeit $a(\nu)$, sowie der Mittenfrequenz des beobachteten, redistribuierten Fluoreszenzspektrums, ν_{fl} , und der eingestrahelten Laserfrequenz ν , ersetzt: $\eta = a(\nu)(\nu_{\text{fl}} - \nu)/\nu$. α bezeichnet den Absorptionskoeffizienten. Die Temperaturverteilung wurde sowohl für eine konstante Absorption, als auch für einen temperaturabhängigen Absorptionskoeffizienten, $\alpha = \alpha(T)$, berechnet. Darauf wird im weiteren Verlauf dieses Kapitels noch genauer eingegangen.

Die Daten für die Mittenfrequenzen der Fluoreszenz, und damit zusammenhängend die Effizienz, wurden aus den in Abschnitt 4.1 gezeigten Fluoreszenzspektren für unterschiedliche Puffergasdrücke extrapoliert. Die dort gezeigten Messungen wurden für eine anfängliche Temperatur der Gasmischung von $T = 573 \text{ K}$ durchgeführt. Zukünftig bietet sich an, die Fluoreszenz auch als Funktion der anfänglichen Temperatur zu messen, da sie ebenfalls einen Einfluss auf die detektierbare Fluoreszenz hat, um im Rahmen der Simulationen die Mittenfrequenz und die Effizienz auch temperaturabhängig betrachten zu können. Für die im Folgenden dargestellten Simulationen werden diese beiden Größen jedoch als konstant betrachtet.

Die hier vorgestellten Simulationen wurden auf Grundlage einer zylindrischen Geometrie durchgeführt unter Ausnutzung der radialen Symmetrie dieses Problems. Abbildung 5.1 zeigt unter Vorgabe eines Beispielparametersatzes die Temperaturverteilung der gesamten, betrachteten Geometrie.

Die Abmaße für die simulierte Geometrie wurden gemäß der Abmaße der kommerziellen Sichtzellen mit einer optischen Achse vorgegeben; die optische Weglänge in der dichten Gasmischung wurde dementsprechend in den Simulationen auf die Dimension des Fensterabstands dieser beiden Zellen, 10 mm, angesetzt, die Fenster haben eine Dicke 10 mm bei einem Durchmesser 18 mm. Wie bereits angesprochen, wurde die Fragestellung nach der zu beobachtenden Temperaturverteilung sowohl zeitabhängig, als auch stationär betrachtet. Wie Abbildung 5.2 zeigt, genügt eine stationäre Betrachtung, da die berechnete Temperaturänderung für die verwendeten Parameter viel schneller als die der Frequenz, mit der der Kühllaser durch den mechanischen Blocker periodisch unterbrochen wird, entsprechenden Einstrahldauer von 62,5 ms ist. In diesem Datensatz betrug die Leistung des Kühllasers $P_L = 1,45 \text{ W}$, die Strahltaile des Kühllasers war $2w_0 \approx 500 \mu\text{m}$. Die konstant angenommene Absorption bei der eingestrahelten Wellenlänge lag bei $\alpha = 0,87 / \text{mm}$.

Anhand dieser Daten lässt sich auch erkennen, ob und wie stark sich die Temperaturänderung in die Saphirfenster fortpflanzt. Hierzu wird nur ein kleiner Bereich des Beispieldatensatzes aus Abb. 5.2 betrachtet. Abbildung 5.3 zeigt den Temperaturverlauf innerhalb der Saphirfenster als Funktion der z -Koordinate (Ausbreitungsrichtung des Kühllasers) für das Eintritts-, sowie das Austrittsfenster im Falle der stationären, sowie der zeitabhängigen Lösungen.

Die Temperaturänderung der dichten Gasmischung pflanzt sich innerhalb beider Saphirfenster fort. Da das Eintrittsfenster unmittelbar an der gekühlten Region in der Gasmischung anschließt, ändert sich die Temperatur dieses Fensters an der Stelle um einige Millikelvin, die Temperaturänderung fällt jedoch bis zu der Seite, die zur Gasmischung abgewandt ist, ab, sodass sie zu Beginn des Fensters gering ist, für den hier dargestellten Beispieldatensatz beträgt die Abweichung von der anfänglichen Temperatur $T = 713,15 \text{ K}$ an der Stelle ($z = -0,01 \text{ m}$) circa 10 mK für die stationäre Lösung. Für das Austrittsfenster der Zelle ist ein ähnliches Verhalten beobachtbar. Auch hier breitet sich die Temperaturänderung innerhalb der Gasmischung in das Fenster aus, da die Kühlung innerhalb der Gasmischung zu Beginn des Fensters nur noch schwach ausgeprägt ist, fällt auch die Temperaturänderung innerhalb des Fensters geringer aus als beim Eintrittsfenster. An der Stelle ($z = 0,02 \text{ m}$) beträgt die Abweichung von der ursprünglichen Temperatur des Fensters circa 1 mK (stationäre Lösung).

Die Wärmeleitfähigkeiten von Saphir und von Argon unterscheiden sich für die anfängliche

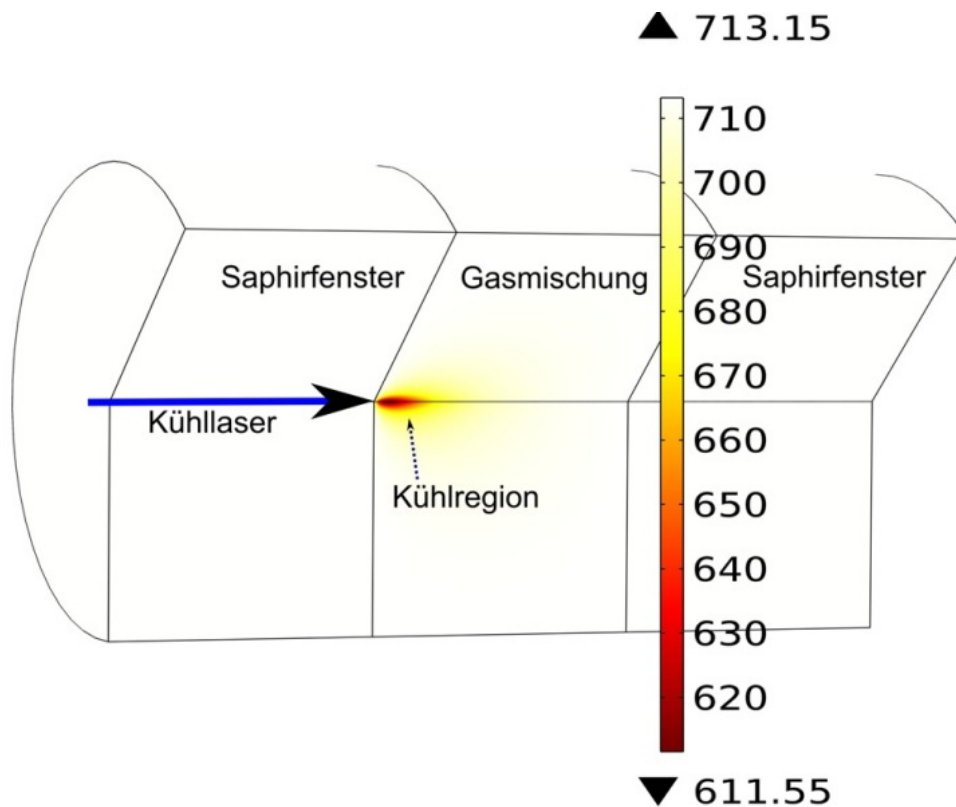


Abbildung 5.1: Beispiel für die aus Simulationen berechnete Temperaturverteilung in der Hochdruckzelle bei entsprechend vorgegebener Geometrie und unter Verwendung eines Beispielparametersatzes für eine dichte Alkali-Edelgasmischung bei einem Puffergasdruck von 200 bar. Hinter dem Eintrittsfenster breitet sich die Temperaturverteilung mit Eintritt des Kühllasers in die dichte Gasmischung aus. Die Skala verdeutlicht die Farbcodierung für die im betrachteten System auftretenden Temperaturen in Kelvin, weiß entspricht hier der ursprünglichen Temperatur der Zelle, $T = 713,15$ K, (dunkel-)rot der tiefsten erreichten Temperatur $T = 611,55$ K. Die Leistung des Kühllasers betrug $P_L = 1,45$ W, die Strahltaile des Kühllasers betrug $2w_0 \approx 500 \mu\text{m}$. Die konstant angenommene Absorption bei der eingestrahelten Wellenlänge lag bei $\alpha = 0,87 / \text{mm}$.

Temperatur der Gasmischung sehr stark. Für eine absolute Temperatur $T = 713$ K beträgt die Wärmeleitfähigkeit von Argon, $\kappa = 33,95 \text{ mW/K} \cdot \text{m}$ [114], der Wert für Saphir ist um ungefähr einen Faktor 370 höher, $\kappa = 12,56 \text{ W/K} \cdot \text{m}$ [115]. Gemäß der Wärmetransportgleichung Gl. 2.52 ist die thermische Leitfähigkeit invers proportional zur relativen Temperaturänderung. Durch die höhere thermische Leitfähigkeit von Saphir erwartet man eine geringere Temperaturänderung in diesem Material. Die berechnete, relative Temperaturänderung in der dichten Gasmischung beträgt für den Beispieldatensatz, $\Delta T_{\text{sim}} = -101,6$ K. Die auftretende Temperaturänderung im Saphir fällt kleiner aus. Dass der Quotient der aus Simulationen berechneten Temperaturänderungen nicht exakt dem inversen Verhältnis der Wärmeleitfähigkeiten entspricht, resultiert vermutlich aus der Tatsache, dass die auftretenden Temperaturänderungen auch noch von der Geometrie der Anordnung abhängig sind. Zukünftig zu klären ist, in welcher Tiefe des Eintrittsfensters der Zelle eine Temperaturverteilung mit dem spektralen Empfindlichkeitsverlauf handelsüblicher Infrarotkameras abgebildet werden kann.

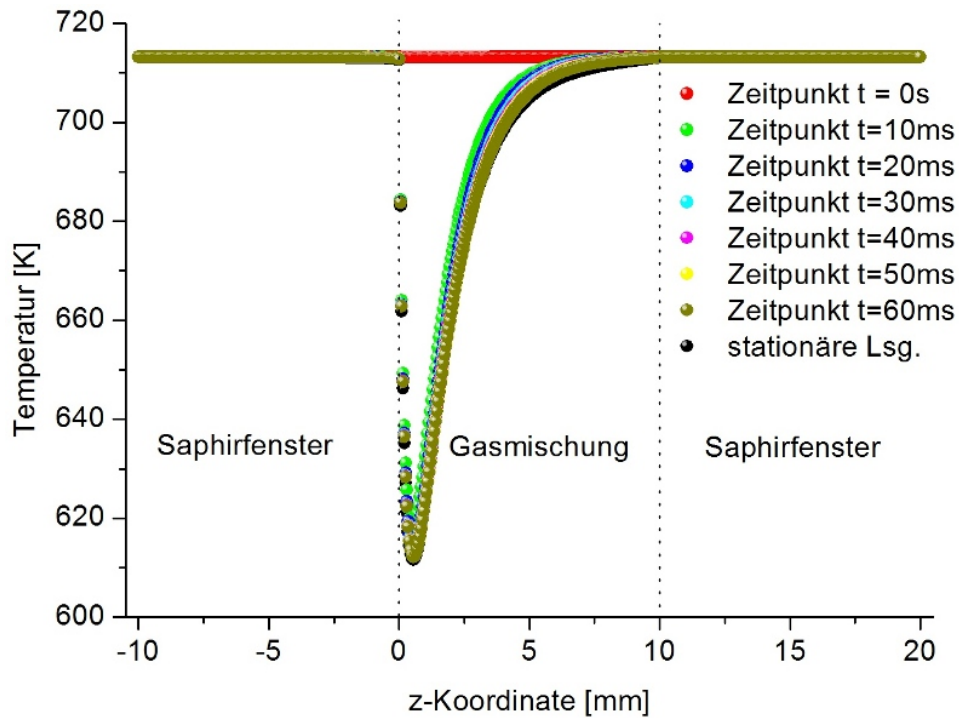


Abbildung 5.2: Vergleich der zeitabhängigen mit der stationären Lösung der Wärmetransportgleichung für einen betrachteten Datensatz an der Stelle $r = 0$. Dargestellt ist die Temperatur in der Gasmischung sowie in den Saphirfenstern als Funktion der Ausbreitungsrichtung z des eingestrahelten Kühllasers. Das Temperaturprofil bildet sich in ungefähr 20 ms vollständig aus, sodass bei einer Einstrahlzeit des Kühllasers, die sich aus der Hälfte der inversen Chopperfrequenz zu 62,5 ms ergibt, für die erreichbare Endtemperatur eine stationäre Betrachtung ausreichend ist.

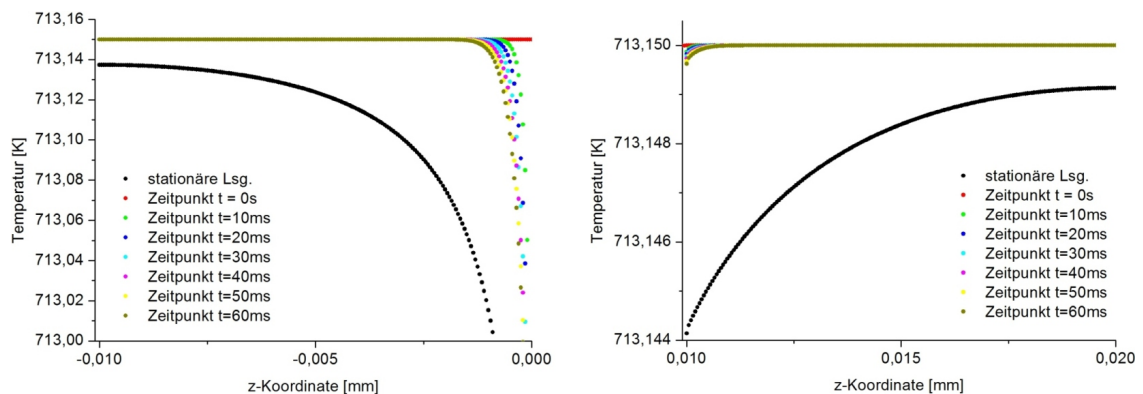


Abbildung 5.3: Nahbetrachtung des Temperaturverlaufs im Eintrittsfenster (links) und im Austrittsfenster (rechts) für die stationäre und die zeitabhängigen Lösungen in Ausbreitungsrichtung des Lasers, betrachtet für die radiale Koordinate $r = 0$. Die Temperaturänderung innerhalb der dichten Gasmischung pflanzt sich unterschiedlich stark in beide Fenster fort. Zu beachten ist, dass der stationäre Wert der Temperaturverteilung in den Saphirfenstern erst nach einer längeren Zeit erreicht wird, als in der Gasmischung.

5.2 Winkelablenkung aus simulierten Temperaturprofilen

Um ein simuliertes Temperaturprofil mit der aus den gemessenen Ablenkwinkeln berechneten Temperaturverteilung zu vergleichen, müssen aus dem simulierten Ergebnis die zugehörigen Ablenkwinkel berechnet werden, um diese gemessenen Daten gegenüberzustellen. Da die aus Messdaten berechnete Temperaturänderung ΔT_{exp} auf einigen Annahmen basiert, erscheint es sinnvoll, direkt die Messgröße, also die Ablenkwinkel als Funktion des Abstands zwischen Kühl- und Tastlaserstrahl, mit aus der simulierten Temperaturverteilung berechneten Ablenkwinkelverteilung zu vergleichen. Zu diesem Zweck wurden die Temperaturänderungen, die mit der Software Comsol berechnet wurden, als Funktion der räumlichen Koordinaten r und z exportiert, anhand derer die Winkelberechnung mit der Software Mathematica erfolgte. Für die Temperaturverteilung $T(r, z)$ wurde eine Funktion interpoliert, aus deren Ableitung sich gemäß der Herleitung der thermischen Ablenkungsspektroskopie wie in Abschnitt 3.4 vorgestellt, der jeweilige Ablenkwinkel als Funktion der radialen Koordinate, entsprechend des Abstands zwischen Tast- und Kühllaserstrahl, integriert über die komplette Länge der Zelle, berechnen lässt. Auf vereinfachende Annahmen wurde hier verzichtet.

Während für die Auswertung der Messdaten wie beschrieben die Näherung aus Gleichung 3.8, sowie die Äquivalenz der Gleichungen 3.9 und 3.10 angenommen wurde, geht in die Berechnung hier die vollständige Temperaturverteilung ein, sodass ein Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Ablenkwinkeln möglich ist. Eine Übersicht über die genaue Rechnung anhand der Mathematica-Datei befindet sich im Anhang B.

5.3 Simulationen zu Rubidium-Argon-Mischungen

Zu den in Abschnitt 4.2.1 gezeigten Messungen wurden mit den experimentellen Parametern die Temperaturänderungen, sowie wie zuvor beschrieben die daraus resultierenden Ablenkwinkel als Funktion des Abstands zwischen Kühl- und Tastlaserstrahl berechnet.

Simuliert werden für jeden Datensatz jeweils drei Fälle: die Berechnung der Temperaturverteilung erfolgt sowohl mit konstantem, gemessenem Absorptionskoeffizienten α , als auch mit einem temperaturabhängigen Absorptionskoeffizienten, $\alpha = \alpha(T)$. Hier werden zwei unterschiedliche Ansätze zur Temperaturabhängigkeit verfolgt, wie im Folgenden dargelegt.

Bei Betrachtung der idealen Gasgleichung sowie des Lambert-Beer'schen Gesetz lässt sich eine Abhängigkeit der Absorption herleiten. Der Absorptionskoeffizient ergibt sich aus Teilchenzahldichte n und Streuquerschnitt σ , $\alpha = n\sigma$. Bei Einsetzen des Ausdrucks für die Teilchenzahldichte n gemäß idealer Gasgleichung, $n = N/V = p/(k_B T)$, lässt sich der Absorptionskoeffizient als Funktion von Druck p , Temperatur T , Streuquerschnitt σ sowie der Boltzmannkonstanten k_B ausdrücken:

$$\alpha = \frac{p}{k_B T} \sigma \quad (5.4)$$

Unter der Annahme, dass der Absorptionsquerschnitt konstant bleibt, weil ebenso angenommen wird, dass der Druck in der Kühlregion sich nicht ändert, entspricht der gemessene Absorptionskoeffizient α_m näherungsweise der Absorption der (ungekühlten) Gasmischung bei der anfänglichen Temperatur T_0 der Gasmischung:

$$\alpha_m = \alpha_m(T = T_0) = \frac{p}{k_B T_0} \sigma \quad (5.5)$$

Unter diesen Annahmen lässt sich der Absorptionskoeffizient $\alpha(T = T_k)$ an einer beliebigen Stelle mit Temperatur $T_k(r, z)$ in der Kühlregion nun durch die anfängliche Temperatur der Gasmischung sowie des aus den Messungen der Leistung unmittelbar vor und hinter der Hoch-

drucksichtzelle berechneten Absorptionskoeffizienten α_m ausdrücken:

$$\alpha(T_k) = \alpha_m(T_0) \left(\frac{T_0}{T_k(r, z)} \right) \quad (5.6)$$

Dieser Ausdruck wird für die Simulationen mit temperaturabhängiger Absorption in die Gleichung 5.3 eingesetzt und die Berechnungen der Temperaturverteilung damit durchgeführt.

Im Bereich der Atmosphärenphysik existiert ein modifizierter Ansatz zur Berechnung temperaturabhängiger, kollisionsinduzierter Absorption von Molekülen [116–118], der aus der Betrachtung von realen Gasen anhand der van-der-Waals-Gleichung resultiert. Für den temperaturabhängigen Absorptionskoeffizient ergibt sich verglichen mit Gl. 5.6 eine modifizierte Abhängigkeit:

$$\alpha(T) = \alpha_m(T_0) \left(\frac{T_k(r, z)}{T_0} \right)^A. \quad (5.7)$$

Der Exponent A lässt sich für verschiedene gemessene Absorptionskoeffizienten und Temperaturen berechnen als Steigung einer Geraden bei logarithmischer Auftragung der Quotienten der Absorptionskoeffizienten sowie der Temperaturen. Unter Berücksichtigung vieler Messungen zur Bestimmung der Temperaturänderung in dichten Rubidium-Argon-Gasmischungen im Verlaufe dieser Arbeit kann der Wert für A zu $(-0,10 \pm 0,03)$ für einen Druck $p = 160$ bar, sowie für einen höheren Druck $p = 220$ bar zu $(-0,09 \pm 0,02)$ berechnet werden, die genauere Berechnung für die beiden Drücke befindet sich im Anhang C.

Um diese Methode (zukünftig) vollständig unabhängig von experimentellen Daten durchführen zu können, bedürfte es den genauen Potentialverläufen der Absorptionsspektren für die betrachteten Drücke und Temperaturen.

5.3.1 Simulationen für Rubidiumatome in 160 bar Argon-Puffergas

In diesem Abschnitt werden die Simulationen anhand der Parameter für die erste der in Abschnitt 4.2.1 vorgestellten Messungen gezeigt und diskutiert. Betrachtet wird eine Rubidium-Argon-Mischung bei 160 bar Puffergasdruck. Als erstes wird die Temperaturverteilung unter Annahme einer konstanten Absorption entlang der optischen Weglänge innerhalb der Zelle berechnet, das Ergebnis ist in Abbildung 5.4 gezeigt.

Unter den gegebenen, experimentellen Bedingungen beträgt die berechnete, maximale Temperaturänderung $\Delta T_{\text{sim}} = -113$ K entsprechend einer Endtemperatur von $T = 430$ K.

Als nächstes wird der Fall einer variablen, linear mit der Temperatur T_0 skalierenden Absorption gemäß Gleichung 5.6 berechnet. Wie bei der vorherigen Rechnungen wird die Temperaturverteilung unter Verwendung der experimentellen Parameter berechnet. Abbildung 5.5 zeigt das Ergebnis dieser Rechnung.

Für den betrachteten Fall eines variablen, linear von der jeweiligen Gasmischungstemperatur abhängigen Absorptionskoeffizienten ergibt sich eine maximale, relative Temperaturänderung $\Delta T_{\text{sim}} = -102$ K, was wie dargestellt einer minimalen Endtemperatur von $T = 441$ K entspricht (Abbildung 5.5).

Als drittes wurde die Temperaturverteilung der lasergekühlten Gasmischung für einen variablen, gemäß Gleichung 5.6 skalierenden, temperaturabhängigen Absorptionskoeffizienten berechnet. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.6 dargestellt.

Die maximale Temperaturänderung beträgt in diesem Fall $\Delta T_{\text{sim}} = -115$ K, die minimale Temperatur innerhalb der gekühlten Region beträgt $T = 428$ K, was näherungsweise gleich den Werten für Temperaturänderung und Minimaltemperatur entspricht, die mit einer über die Länge der Gasmischung konstanten Absorption berechnet wurde.

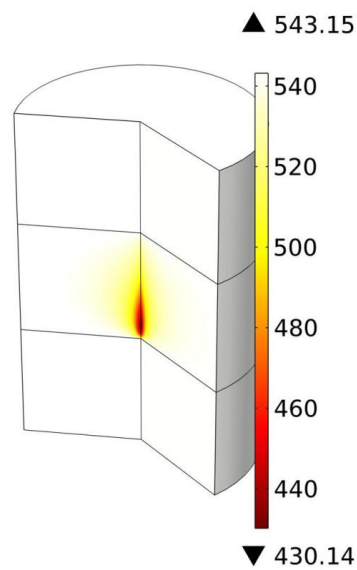


Abbildung 5.4: Temperaturverteilung für Rubidiumatome in 160 bar Argon unter Annahme einer konstanten Absorption.

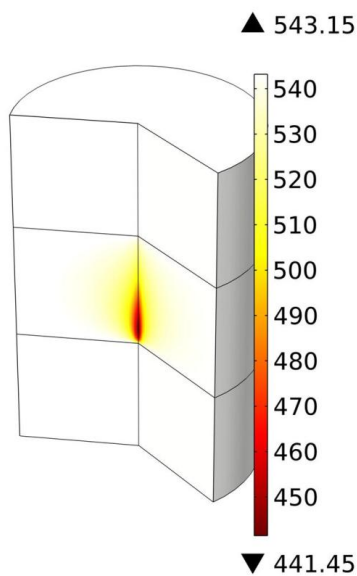


Abbildung 5.5: Temperaturverteilung für Rubidiumatome in 160 bar Argon unter Annahme einer variablen, linear von der Temperatur T_0 abhängigen Absorption gemäß Gleichung 5.6.

Betrachtet man die z -Abhängigkeit der Temperaturänderung für alle drei Ansätze, ist erkennbar, dass die größte Temperaturänderung auf wenigen Millimetern innerhalb der Gasmischung ausgeprägt ist, und innerhalb der Fenster nur sehr gering ausfällt. Dies ist in Abbildung 5.7 dargestellt.

Alle drei Ansätze liefern somit Temperaturänderungen, die (minimal) geringer ausfallen, als die aus den Messdaten und unter den zuvor vorgestellten Annahmen berechnete ($\Delta T_{\text{exp}} = -130 \text{ K}$). Um folglich abschätzen zu können, welcher der drei Ansätze am sinnvollsten erscheint, liegt es nahe, die jeweiligen Ablenkwinkel aus den Temperaturänderungen, wie in Abschnitt 5.2 beschrieben, zu berechnen und mit den gemessenen Winkeln zu vergleichen. Abbildung 5.8 zeigt

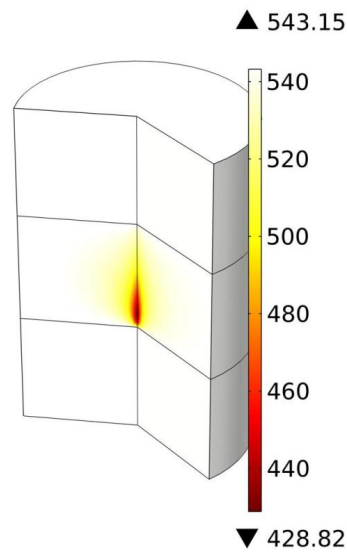


Abbildung 5.6: Temperaturverteilung für Rubidiumatome in 160 bar Argon unter Annahme einer variablen Absorption gemäß Gleichung 5.7

diesen Vergleich.

Kleine Abweichungen resultieren vermutlich aus einer Diskrepanz zwischen dem theoretisch angenommenen und dem tatsächlichen Strahldurchmesser, mit denen die Experimente durchgeführt wurden, im Rahmen der Messungen erfolgte nur eine grobe Messung der Strahltaile $2w_0$, sowie aus der als konstant bzw. temperaturunabhängig angenommenen Effizienz des Kühlvorgangs.

Die größte Übereinstimmung mit den gemessenen Ablenkwinkeln erfolgt für den Ansatz eines linear mit der jeweiligen Temperatur T_0 skalierenden Absorptionskoeffizienten. Jedoch ist die Diskrepanz mit den Messdaten auch für die beiden anderen Ansätze eines konstanten Absorptionskoeffizienten, sowie einer Skalierung gemäß Gleichung 5.7 mit der Temperatur nicht besonders groß, sodass anhand dieses Datensatzes nicht abschließend beurteilt werden kann, welcher Ansatz am sinnvollsten ist. Auch deshalb werden im folgenden Rechnungen mit den Parameters der zweiten, im Abschnitt 4.2.1 vorgestellten Messung zur Kühlung einer dichten Rubidium-Argon-Mischung vorgestellt. Da der gemessene Absorptionskoeffizient, sowie die aus den gemessenen Ablenkwinkeln berechnete, relative Temperaturänderung dort deutlich größer ausfielen, werden größere Unterschiede zwischen den einzelnen Ansätzen zur temperaturabhängigen Betrachtung des Absorptionskoeffizienten erwartet.

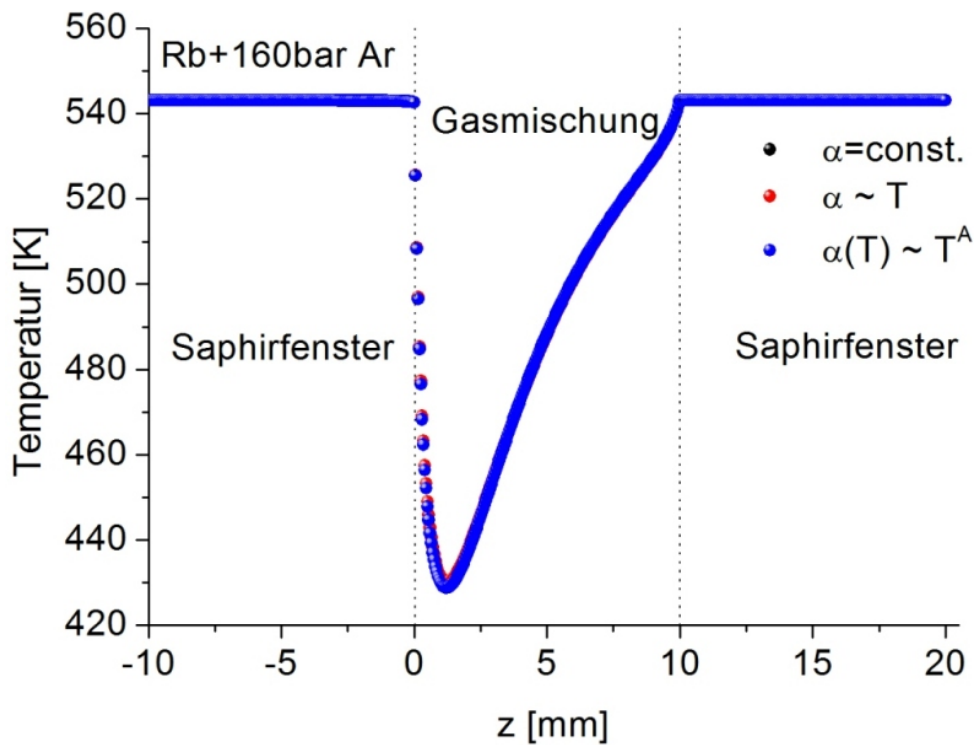


Abbildung 5.7: Temperaturverteilung als Funktion der z -Koordinate (Ausbreitungsrichtung des Kühllasers) für die drei simulierten Temperaturverteilungen für die dichte Rubidium-Argon-Mischung bei einem Puffergasdruck von 160 bar. Die maximale Temperaturänderung tritt unmittelbar hinter dem Eintrittsfenster in der Gasmischung auf.

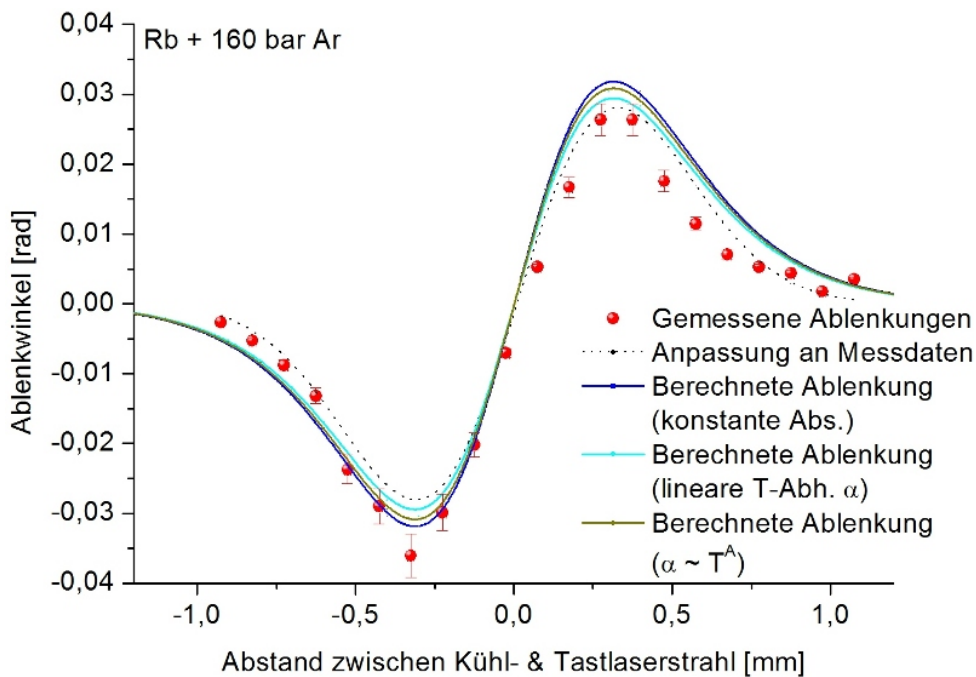


Abbildung 5.8: Vergleich der gemessenen Ablenkungswinkel als Funktion des Abstands zw. Kühl- und Tastlaserstrahl mit den berechneten Ablenkungswinkeln für die drei unterschiedlichen Ansätze hinsichtlich der Absorption.

5.3.2 Simulationen für Rubidiumatome in 220 bar Argon-Puffergas

Gegenstand dieses Abschnitts sind Simulationen angelehnt an den Parametersatz der in Kapitel 4.2.1 gezeigten Messung zur Temperaturänderung in einer dichten Rubidium-Argon-Mischung bei einem Puffergasdruck von 220 bar.

Wie im vorherigen Abschnitt wird die Temperaturverteilung für die drei zuvor vorgestellten Ansätze hinsichtlich der Temperaturabhängigkeit des Absorptionskoeffizienten berechnet und abschließend durch Berechnung der jeweiligen Winkelverteilung mit den gemessenen Ablenkwinkeln verglichen. Zuerst wurde die Temperaturverteilung mit der gemessenen, konstanten Absorption berechnet. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.9 zu sehen.

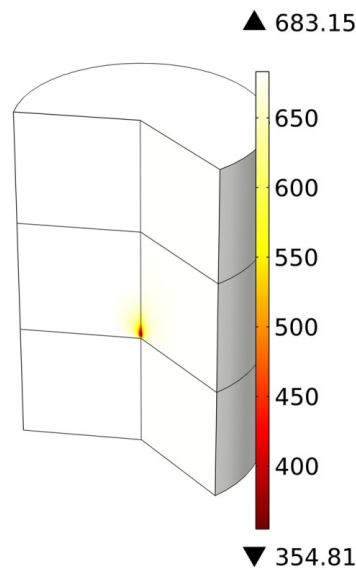


Abbildung 5.9: Temperaturverteilung für Rubidiumatome in 220 bar Argon unter Annahme einer konstanten Absorption. Die relative, maximale Temperaturänderung fällt deutlich geringer aus als die zuvor aus den Messdaten unter einigen Annahmen gemachte Temperaturänderung.

Die unter Annahme einer konstanten Absorption berechnete, maximale Temperaturänderung beträgt $\Delta T_{\text{sim}} = -329$ K entsprechend einer minimalen Temperatur in der Gasmischung $T = 354$ K. Dies unterscheidet sich deutlich von der unter mehreren Annahmen aus den Messdaten berechneten Temperaturänderung von $\Delta T_{\text{exp}} = -675$ K.

Der Fall eines linear von der Temperatur T_0 abhängigen Absorptionskoeffizienten ist in Abbildung 5.10 dargestellt.

Anhand der experimentellen Parameter ergibt sich eine maximale, relative Temperaturänderung $\Delta T_{\text{sim}} = -266$ K, was wie im Fall einer konstanten Absorption deutlich geringer ist, als experimentell berechnet. Ein ähnliches Ergebnis liefert auch der Ansatz für einen mit einer Potenz der Temperatur skalierenden Absorptionskoeffizienten; hier beträgt die minimale, in der Gasmischung aufgrund des Kühlprozesses auftretende Temperatur $T = 372$ K, was einer relativen Temperaturänderung $\Delta T_{\text{sim}} = -311$ K entspricht. Dieser Sachverhalt ist in Abbildung 5.11 dargestellt.

Für alle drei berechneten Temperaturverteilungen lässt sich auch die Ausbreitung der Temperaturänderung in z -Richtung, in Ausbreitungsrichtung des Kühllasers, betrachten, wie in Abb. 5.12 dargestellt.

Wie für den Fall der Gasmischung bei 160 bar tritt die Kühlung im unmittelbaren Bereich hinter dem Eintrittsfenster auf, die Temperaturänderung der Gasmischung kurz vor dem Austrittsfens-

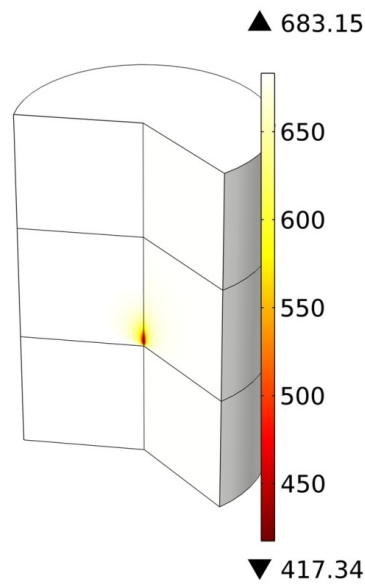


Abbildung 5.10: Temperaturverteilung für Rubidiumatome in 220 bar Argon unter Annahme einer variablen, linear von der Temperatur T_0 abhängigen Absorption gemäß Gleichung 5.6. Die maximale, relative Temperaturänderung beträgt hier $\Delta T_{\text{sim}} = -266$ K.

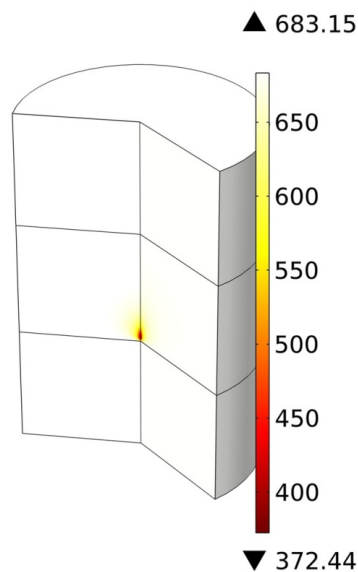


Abbildung 5.11: Temperaturverteilung für Rubidiumatome in 220 bar Argon unter Annahme einer variablen Absorption gemäß Gleichung 5.7. Die minimal-erreichte Temperatur ergibt sich hier zu $T = 372$ K bei einer anfänglichen Temperatur $T = 683$ K der Gasmischung.

ter fällt sehr gering aus.

Um beurteilen zu können, welcher der betrachteten Ansätze hinsichtlich des Absorptionskoeffizienten am sinnvollsten erscheint, werden wie zuvor im Fall von Rubidiumatomen in 160 bar-Argon-Puffergas die zu beobachtenden Ablenkwinkel, die aus den jeweiligen Temperaturverteilungen resultieren, berechnet, und mit den gemessenen Werten verglichen. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.13 zu sehen.

Da aufgrund imperfekter Justage im Experiment die Messpunkte leicht asymmetrisch verteilt

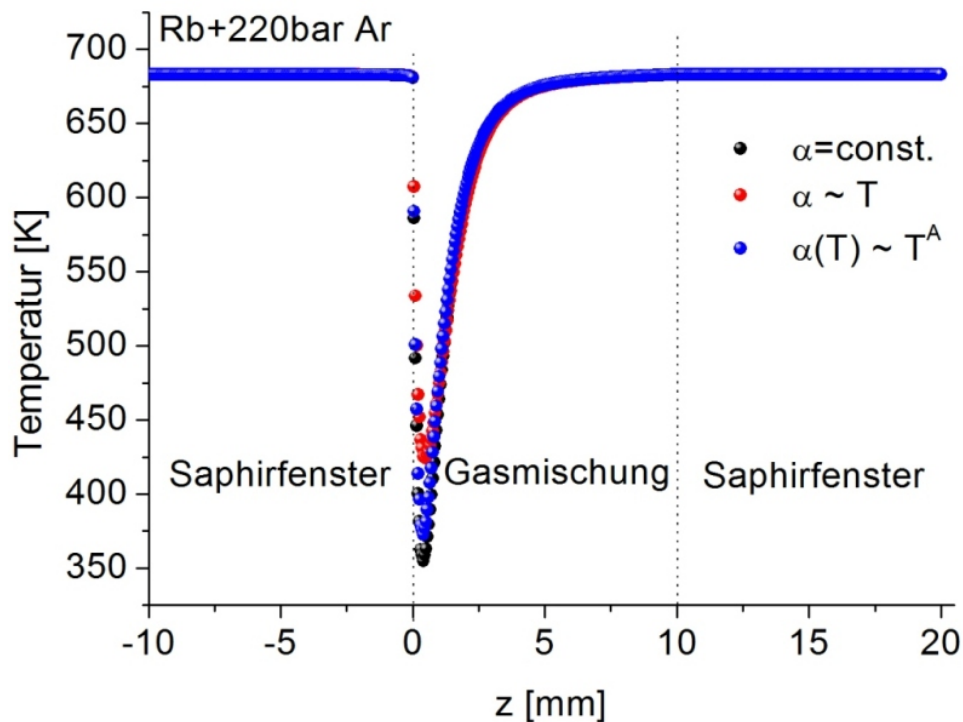


Abbildung 5.12: Temperaturverteilung als Funktion der z -Koordinate (Ausbreitungsrichtung des Kühllasers) für die drei simulierten Temperaturverteilungen für die dichte Rubidium-Argon-Mischung bei einem Puffergasdruck von 220 bar und einer anfänglichen Temperatur des Systems von 683 K.

sind, wird die Anpassung gemäß des theoretischen Verlaufs laut Gleichung 4.1 mit eingezeichnet. Die beste Übereinstimmung ergibt sich für die Simulation mit dem konstanten Absorptionskoeffizienten.

Eine deutliche Diskrepanz zwischen den aus den Messdaten berechneten Temperaturänderungen und den simulierten Werten ist auch deshalb zu erwarten, da sich zeigt, dass zwischen der im Rahmen der Herleitung zur thermischen Ablenkungspektroskopie angenommenen Ausbreitung der Temperaturänderung in Ausbreitungsrichtung des Kühllasers, Gleichung 3.11, und dem simulierten, tatsächlichen Verlauf der Temperaturänderung in z -Richtung, wie in den Abbildungen 5.7 und 5.12 erkennbar, eine große Diskrepanz besteht.

Im Rahmen der Experimente zur thermischen Ablenkungspektroskopie wurde stets angenommen, dass der Druck p sich in der Kühlregion nicht ändert, sondern konstant ist [84]. Für den Fall, dass eine eventuell auftretende Druckänderung mitbetrachtet werden sollte, würde sich eine Erweiterung des Ansatzes nach [117] zur temperatur- und druckabhängigen Absorption anbieten. Dies würde zu einer deutlicheren Änderung des Absorptionskoeffizienten führen. Ferner müsste eine solche Betrachtungsweise die genaue Linienform der stark druckverbreiterten Resonanzen implizieren, was den Ansatz deutlich verkomplizierte. Auch in diese Richtung wäre folglich die genaue Kenntnis der Linienformen durch Absorptions- und Fluoreszenzmessungen unabdingbar. Dass die gemachte Annahme hinsichtlich des konstanten Drucks in guter Näherung zutrifft, ist jedoch durch die Verträglichkeit von gemessenen zu berechneten Ablenkswinkeln bestätigt. Zukünftig kann es sich dennoch anbieten, den Absorptionskoeffizienten für eine Gasmischung und verschiedene Temperaturen zu messen, um den skalierenden Exponenten gemäß Gleichung

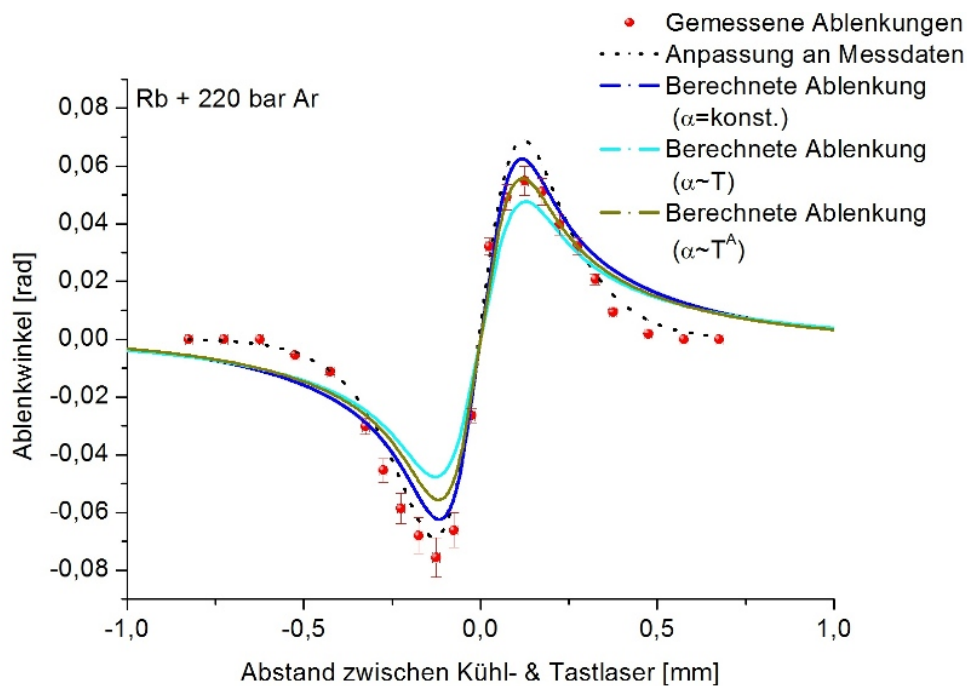


Abbildung 5.13: Vergleich der gemessenen Ablenkungswinkel (rote Punkte) als Funktion des Abstands zwischen Kühl- und Tastlaserstrahl mit den berechneten Ablenkungswinkeln für die drei unterschiedlichen Ansätze hinsichtlich der Absorption. Die beste Übereinstimmung zeigt sich für einen konstanten Absorptionskoeffizienten (blaue Kurve). Aufgrund der leicht asymmetrischen Verteilung der Messdaten wegen imperfekter Justage ist die theoretische Anpassung an die Messdaten wie schon in Abbildung 4.6 mit eingezeichnet (schwarz gestrichelt).

5.7 noch genauer bzw. unter Berücksichtigung der genauen Charakteristika, beispielsweise kleiner, den Kühleffekt schwächer, aber nicht auslöschender Verunreinigungen, der zu kühlenden Gasmischung zu bestimmen.

In den hier gezeigten Simulationen wurde die Effizienz, bzw. die Mittenfrequenz der Fluoreszenz jeweils als konstant angenommen, der jeweilige Wert wurde aus gemessenen Spektren der redistribuierten Fluoreszenz für den jeweiligen Puffergasdruck ermittelt, um die Temperaturverteilung zu berechnen. Es kann sich jedoch anbieten, diese auch temperaturabhängig zu betrachten, da aufgrund absinkender Temperatur ein Anstieg der Dichte sich auch auf das Fluoreszenzspektrum auswirken könnte. Wie in Abschnitt 4.2.3 bereits angedeutet, liegt es nahe, dass es einen optimalen Parametersatz bestehend aus Puffergasdruck und Verstimmung bzw. eingestrahelter Wellenlänge gibt, dies könnte unter Berücksichtigung einer temperaturabhängigen Mittenfrequenz dann auch simuliert werden.

Um die Aussagekraft der Simulationen einschätzen zu können, wurden für die zuvor gezeigten Daten für Rubidiumatome in Argonpuffergas bei 220 bar Druck und einer anfänglichen Temperatur der Gasmischung von 683 K verschiedene zusätzliche Simulationen durchgeführt, wo jeweils nur ein Parameter variiert wurde, um die Sensitivität der simulierten Ergebnisse hinsichtlich der Strahltaile des Kühllasers, der eingestrahelten Kühllaserleistung, sowie der Mittenfrequenz der redistribuierten Fluoreszenz zu überprüfen.

Abbildung 5.14 zeigt die berechneten Ablenkungswinkel als Funktion des Abstands zwischen Kühl- und Tastlaserstrahl für Temperaturverteilungen, die für unterschiedliche Strahlradien w_0 des Kühllaserstrahls berechnet wurden. Für Strahlradien zwischen $w_0 = 170 \mu\text{m}$ und $w_0 = 250 \mu\text{m}$ wurden jeweils die Temperaturverteilungen simuliert und daraus die erwarteten Ablenkungswinkel

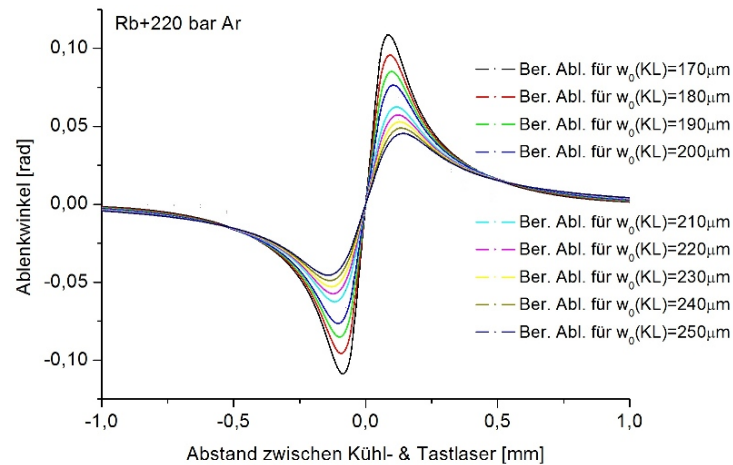


Abbildung 5.14: Ablenkungswinkel als Funktion des Abstandes der Laserstrahlen relativ zueinander für Temperaturverteilungen einer dichten Rubidium-Argon-Mischung, die für unterschiedliche Strahlradien w_0 des Kühllasers (KL) berechnet wurden. Für kleinere Strahlradien, also größere Kühllaserintensitäten, ergeben sich größere Ablenkungen.

berechnet, alle anderen Parameter blieben konstant. Es zeigt sich ein deutliches Ansteigen der maximal beobachtbaren Ablenkungen mit sinkendem Strahlradius, also steigender Kühllaserintensität.

Bei Variation der Kühllaserleistung ist ein ähnliches Verhalten beobachtbar. Mit steigender Leistung des Kühllasers bei konstantem Strahlradius, also ansteigender Kühllaserintensität steigt der Wert der maximal beobachtbaren Ablenkung ebenfalls an. Ergebnisse dieser Rechnung sind in Abb. 5.15 zu sehen. Die Kühllaserleistung wurde zwischen 250 mW und 2,5 W, dem Bereich der Ausgangsleistungen des Titan:Saphir-Lasers, variiert.

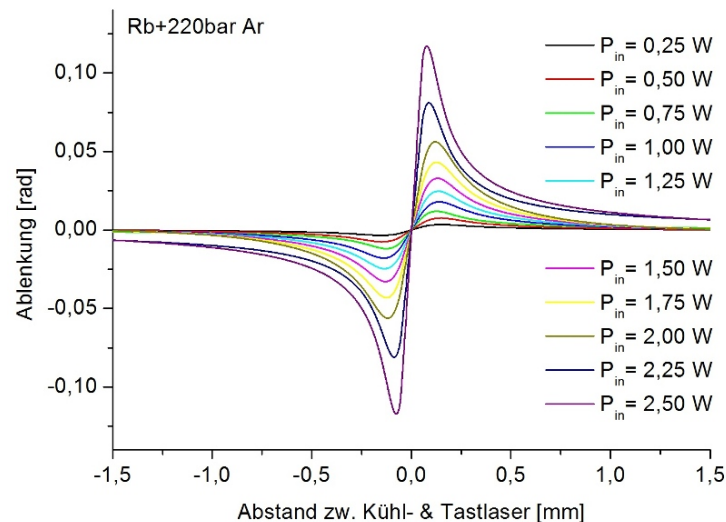


Abbildung 5.15: Für den Fall einer Rubidium-Argon-Mischung bei einem Puffergasdruck von 220 bar und einer anfänglichen Temperatur $T = 683$ K berechnete Ablenkungswinkel für unterschiedliche Leistungen des Kühllasers. Mit steigender eingestrahelter Leistung steigt auch die maximal zu beobachtende Ablenkung.

Um eine Abhängigkeit der Simulationen und ihrer Ergebnisse hinsichtlich der Mittenfrequenz

der Fluoreszenz zu überprüfen, die in die Effizienz des Kühlprozesses eingeht, wurde diese Frequenz in Schritten von 0,2 THz zwischen 378,2 THz und 379,2 THz variiert - dies entspricht Mittenfrequenzen der Fluoreszenz in einem Druckbereich zwischen 10 bar und 300 bar. Abbildung 5.16 zeigt die Ergebnisse der aus den simulierten Temperaturverteilungen berechneten Ablenkungen als Funktion des Abstands zwischen Kühl- und Tasterstrahl. Für die den Ablenkungen

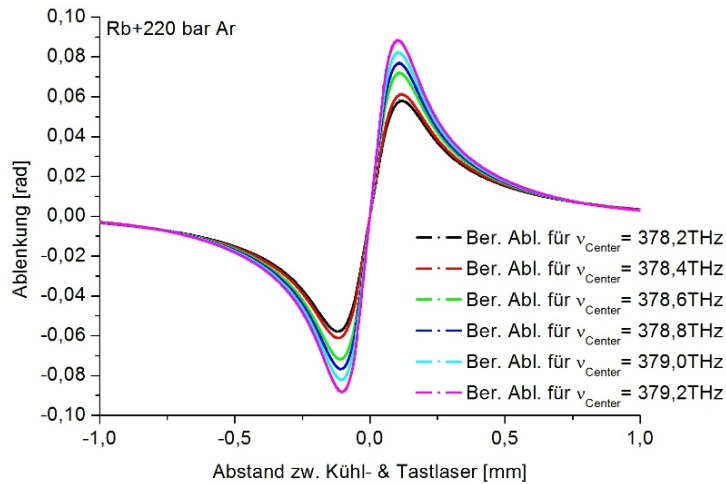


Abbildung 5.16: Berechnete Ablenkungswinkel für die Kühlung einer Rubidium-Argon-Mischung bei 220 bar Puffergasdruck für eine Variation der Mittenfrequenz des Fluoreszenzspektrums. Mit steigender Frequenz steigt auch die maximale Ablenkung, da bei konstant angenommener Absorptionswahrscheinlichkeit die Effizienz des Kühlprozesses steigt.

zugrunde liegenden Temperaturverteilungen wurde die Absorptionswahrscheinlichkeit, wie auch alle anderen Parameter abgesehen von der Mittenfrequenz der Fluoreszenz, als konstant angesetzt. Beobachtet wird ein Anstieg der maximalen Ablenkung mit steigender Mittenfrequenz, da aufgrund der konstanten Absorptionswahrscheinlichkeit somit die Effizienz des Kühlprozesses ansteigt. In der Realität wird eine solche Abhängigkeit der Mittenfrequenz aufgrund der Abhängigkeit von der Temperatur ortsabhängig sein.

Es zeigt sich eine deutliche Sensitivität der Simulationsergebnisse auf eine Variation unterschiedlicher Parameter in Form der Strahltaile des Kühllasers, der Kühllaserleistung, sowie der Mittenfrequenz der Fluoreszenz. Die durchgeführten Simulationen erscheinen daher geeignet, experimentell erzielte Temperaturänderungen betraglich besser einordnen zu können anhand eines Vergleichs der Ablenkungswinkel mit dem theoretisch berechneten Winkelverlauf.

6 Ausblick

Schwerpunkt dieser Arbeit waren Untersuchungen zum Prinzip der kollisionsinduzierten Redistributionskühlung. Hinsichtlich dieses Laserkühlprinzips wurden primär dichte Rubidium-Argon-Mischungen betrachtet und hinsichtlich der Parameterabhängigkeit des Kühleffekts untersucht. Abschließend erfolgte ein Vergleich zwischen gemessenen Daten und simulierten Temperaturverteilungen.

Ferner erfolgte im Rahmen dieser Arbeit die erste Redistributionslaserkühlung einer dichten Kalium-Argon-Mischung.

Zukünftig liegt es nahe, den bestehenden Aufbau respektive das untersuchte Verfahren in verschiedene Richtungen weiter zu betrachten. In den dieser Arbeit zugrunde liegenden Experimenten wurde das Verfahren der thermischen Ablenkungsspektroskopie angewandt, um eine qualitative Abschätzung hinsichtlich der beobachteten Temperaturänderung zu erhalten. Es zeigte sich, dass einige der in diese Rechnungen eingehenden Annahmen für Gasmischungen mit hohen optischen Dichten den Temperatureffekt überschätzen, weshalb es sich anbieten könnte, zukünftig auch andere Techniken zur Temperaturbestimmung zu nutzen.

Eine rein spektroskopische Technik stellt dabei, wie zuvor bereits angedeutet, der Ansatz genauer Messungen von Fluoreszenz und Absorption in der gekühlten Region und eine daraus mögliche Berechnung der spektralen Temperatur anhand der Kennard-Stepanov-Relation [100, 101] dar. Es bedarf hierzu jedoch genauerer Messungen der Spektren, als es bisher möglich war. Tendenziell stimmen erste Experimente in diese Richtung jedoch optimistisch, diese Technik auch zur Temperaturbestimmung in dichten Gasmischungen anzuwenden [102, 119].

Ein weiterer Ansatz, der ähnlich dem der thermischen Ablenkungsspektroskopie auf das Vermessen der durch die Temperaturänderung entstehenden thermischen Linse abzielt, liegt in der Verwendung eines Shack-Hartmann-Wellenfrontsensors [103, 104]. Mit einem Leihgerät wurden im Rahmen dieser Arbeit bereits erste Testaufnahmen gemacht; da jedoch bisher nur mit Sichtzellen mit einer optischen Achse gearbeitet wurde, konnte mit den Aufnahmen nicht auf eine dreidimensionale Temperaturverteilung geschlossen werden. Experimentieren mit der neuen Hochdrucksichtzelle, die, wie in Abschnitt 3.1.3 vorgestellt, vier optische Zugänge auf zwei optischen Achsen hat, wobei eine der beiden Weglängen innerhalb der Zelle senkrecht dazu vollständig eingesehen werden kann, könnte hier zukünftig Abhilfe schaffen.

Ebenfalls denkbar wäre eine interferometrische Messung der minimal in der Gasmischung erreichten Temperatur mithilfe eines Mach-Zehnder-Interferometers. Zu diesem Zweck wird der Tastlaser mit einem nicht-polarisierten Strahlteilerwürfel aufgespalten, und nur ein Teilstrahl mit der Hälfte der Intensität mit dem Kühllaser exakt überlagert und in die Zelle eingestrahlt, sodass der Tastlaserstrahl keine Ablenkung erfährt. Der andere Teilstrahl wird an der Zelle vorbei geführt und mit dem durch die Zelle propagierenden Teilstrahl im Anschluss daran mittels eines weiteren nicht-polarisierten Strahlteilerwürfels wieder überlagert. Es braucht zwei Messungen, eine mit eingestrahlttem Kühllaser, und eine ohne den Kühllaser, um aus der Änderung der Anzahl der beobachteten Interferenzstreifen auf den temperaturabhängigen Brechungsindex, und somit auf die minimale, in der Gasmischung auftretende Temperatur zurück zu rechnen. In bisherigen Versuchen hinsichtlich dieses Ansatzes konnte die Anzahländerung nicht eindeutig bestimmt werden; hier könnte zukünftig eine bessere Beobachtungsmethode hilfreich sein.

Ein Ziel der Experimente mit Alkaliatomen besteht in der Fragestellung, ob es möglich ist, durch die alleinige Verwendung von Laserkühlung einen Phasenübergang im dichten Gas beobachten zu können, wenn es gelingt, die Gasmischung lokal unterhalb des kritischen Punktes des verwendeten Edelgases zu kühlen. Xenon scheint diesbezüglich ein besonders geeigneter Kandidat zu sein und ist daher Gegenstand aktueller Experimente. Mit dieser kontaktfreien Kühltech-

nik könnten außerdem Experimente zur homogenen Keimbildung in unterkühlten Flüssigkeiten durchgeführt werden [120].

Der Einbau einer dünnen Saphirfaser unmittelbar hinter das Eintrittsfenster der Zelle würde eine Verlagerung der Kühlregion in die Mitte der Gasmischung bewirken und somit die momentane Limitierung der Ausbreitung der Temperaturänderung durch das Saphirfenster, das einen thermischen Kurzschluss darstellt, überwinden. Somit sollten noch deutlichere Temperaturänderungen beobachtbar sein. Eine schematische Ansicht dessen ist in Abbildung 6.1 dargestellt.

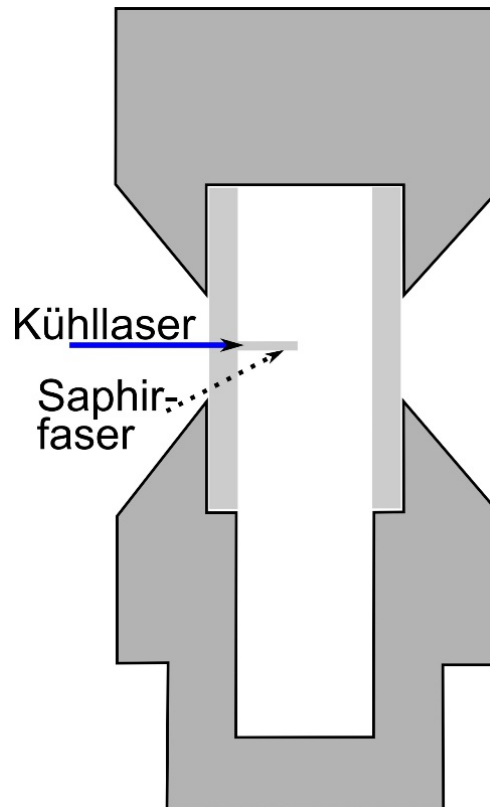


Abbildung 6.1: Schematische Ansicht einer in die Hochdruckzelle integrierten Saphirfaser zur Verlagerung der Kühlregion in die Mitte der Gasmischung. Die Faser ist zur besseren Sichtbarkeit nicht maßstabsgetreu hinsichtlich ihres Durchmessers eingezeichnet. Direkt im Anschluss an das Eintrittsfenster des Kühllaserstrahls wird die Saphirfaser montiert, die den Austritt des Kühllasers in das Gas weg vom Eintrittsfenster erlaubt. Das Saphirfenster fungiert nun nicht mehr als thermischer Kurzschluss, und es sind aufgrund der niedrigeren thermischen Leitfähigkeit des Edelgases höhere Temperaturänderungen zu erwarten.

Unmittelbar an das Eintrittsfenster des Kühllaserstrahls wird eine Saphirfaser befestigt. Die Position, an der der Laserstrahl in die dichte Gasmischung eintritt, verschiebt sich somit in die Zellenmitte. Saphir fungiert nur noch auf der wesentlich kleineren Kontaktfläche zur Gasmischung als thermischer Kurzschluss, sodass sich eine größere Temperaturänderung ausprägen kann.

Abbildung 6.2 zeigt Simulationen für zwei hinsichtlich ihres Durchmessers unterschiedliche Saphirfasern im Vergleich mit der jeweils experimentellen Situation ohne in die Gasmischung integrierte Faser. Für diese Simulationen wurde jeweils mit einem dem Faserdurchmesser entsprechenden Kühllaserdurchmesser gerechnet.

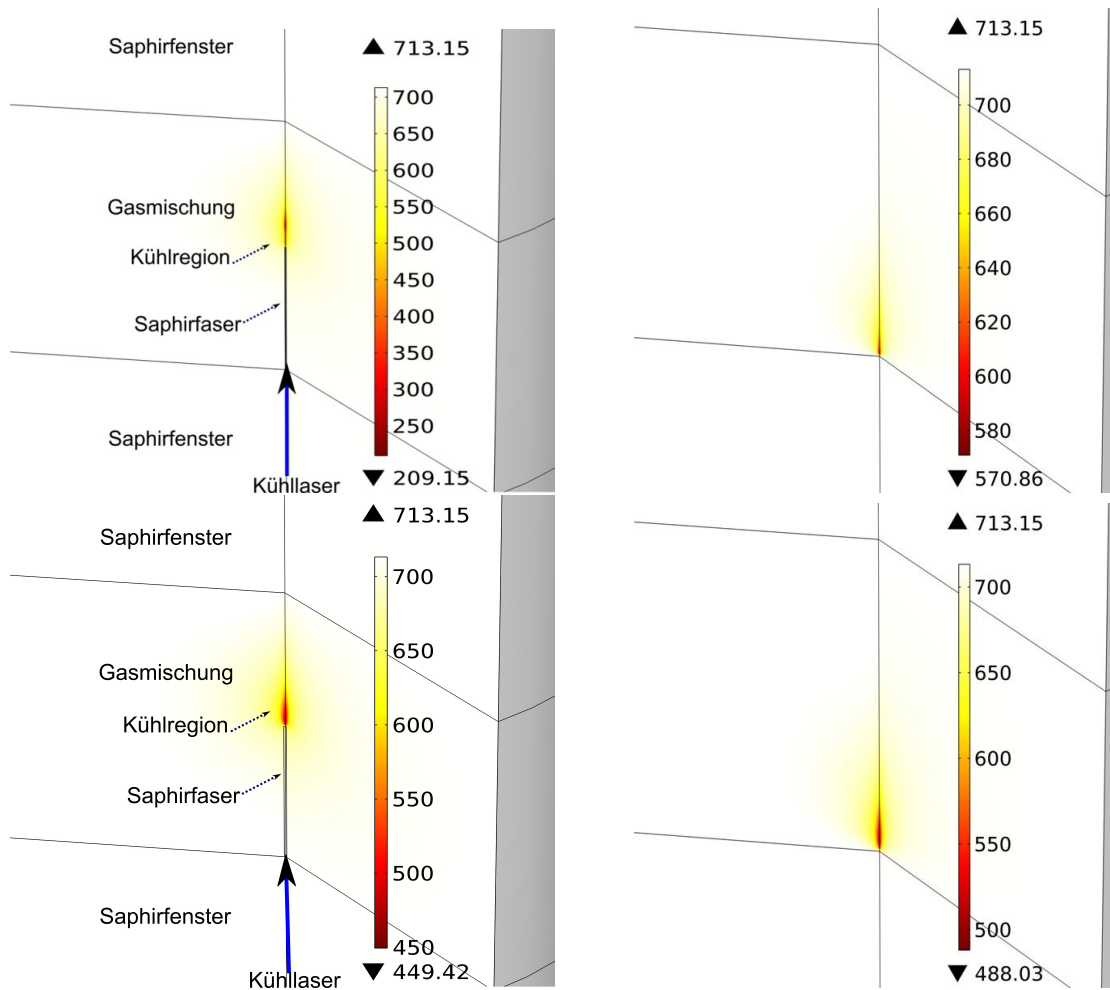


Abbildung 6.2: Vergleich der Temperaturverteilung der Gasmischung für den Fall integrierter Saphirfasern mit der sich ergebenden Temperaturverteilung in der bisherigen experimentellen Situation ohne Faser. Berechnet wurde für einen Beispielparametersatz die Temperaturverteilung für eine Faser mit Durchmesser $d = 20 \mu\text{m}$ (oben links), sowie für einen Faserdurchmesser $d = 100 \mu\text{m}$ (unten links), sowie für die Fälle einer Kühlung des Gases ohne Faser mit einem Kühllaserstrahldurchmesser von $20 \mu\text{m}$ (oben rechts) bzw. $100 \mu\text{m}$ (unten rechts). Für den kleineren Faserdurchmesser zeigt sich die größte Temperaturänderung. Zukünftig gilt es somit eine Faser mit einem Durchmesser in die Zelle zu implementieren, in die hinreichend Leistung des Lasers eingekoppelt werden kann.

Für Faserdurchmesser von $20 \mu\text{m}$ und $100 \mu\text{m}$ wurde die Temperaturverteilung für einen Beispielparametersatz berechnet. Mit integrierter Faser tritt aufgrund der geringeren Wärmeleitfähigkeit der Gasmischung als des Saphirs eine größere relative Temperaturänderung als für die Kühlung in einer Gasmischung ohne Saphirfaser auf. Für die Faser mit dem kleineren Durchmesser wird eine größere Temperaturänderung erreicht. Dies legt nahe, dass es sich in zukünftigen Experimenten anbietet, eine Saphirfaser in die Hochdruckzelle zu integrieren. Ferner gilt es, hinsichtlich der Faser einen Kompromiss zu finden aus Durchmesser und den damit verbundenen Verlusten der Laserleistung beim Einkoppeln in die Faser, um mit einer ausreichenden Kühllaser-

leistung experimentieren zu können. Für die beiden Simulationen hier wurde eine eingestrahlte Leistung des Kühllasers $P = 1,5 \text{ W}$ angenommen.

Außerdem wäre es interessant, das untersuchte Verfahren auf dichte molekulare Gasmischungen anzuwenden. Beide bisher verfolgten Ansätze, der Betrachtung von Alkalidimeren, sowie der Erzeugung eines zweiatomigen Moleküls durch Laserablation [121], erscheinen vielversprechend, können jedoch langfristig nur ein Zwischenschritt auf dem Weg zur eventuellen technischen Anwendbarkeit dieses Verfahrens sein, für das sich eine Kühlung eines (molekularen) Gases anbieten würde, das nicht erst erzeugt werden muss, sondern einfach in den entsprechenden Rezipienten eingefüllt werden kann, um damit kontaktfrei Materie zu kühlen.

A Experimente zur Redistribution in molekularen Gasen

Im Folgenden werden zwei unterschiedliche Ansätze dargestellt, die sich mit der Frage befassen, ob das Prinzip der Redistributionslaserkühlung auf dichte molekulare Gasmischungen anwendbar ist. Entscheidend ist es, zu untersuchen, ob das für Zwei-Niveau-Systeme gültige Prinzip der Redistributionslaserkühlung auch auf dichte molekulare Gasmischungen, also im Allgemeinen Mehr-Niveau-Systeme, anwendbar ist. Dies wäre ebenfalls ein Schritt in Richtung technischer Anwendbarkeit des Redistributionslaserkühlverfahrens, wenn es gelänge, ein Gas oder eine Gasmischung zu kühlen, die anders als die im Rahmen dieser Arbeit schwerpunktartig betrachteten Alkali-Edelgasmischungen bereits bei Raumtemperatur gasförmig sind, und somit ohne vorheriges Heizen direkt für das Kühlverfahren zur Verfügung stünden.

A.1 Ansatz zur Kühlung dichter Alkalidimer-Edelgas-Mischungen

An die Experimente mit Caesiumatomen, sowie die Experimente mit Rubidiumatomen, schließt sich der Ansatz zur Laserkühlung dichter molekularer Alkali-Edelgas-Mischungen an, wo erste Experimente zur Fluoreszenzredistribution mit den Dimeren Cs_2 sowie Rb_2 erfolgten [122]. In den vergangenen Jahren wurden bereits Doppler- und Sisyphuskühlung für unterschiedliche molekulare Spezies experimentell beobachtet [9, 123].

Im Hinblick darauf, ob das Verfahren der Redistributionslaserkühlung für molekulare Mischungen anwendbar ist, wurden verschiedene Experimente mit Alkali-Dimeren bei hohem Puffergasdruck durchgeführt [62, 122]. Beim Heizen der mit einem Alkalimetall, sowie dem Edelgas befüllten Hochdrucksichtzelle können bei geeignet hohen Temperaturen neben den Alkali-Monomeren auch ein geringer Prozentsatz Dimere durch Absorptionsmessungen detektiert werden [124]. Bei der Betrachtung dieser dichten Gasmischungen wird davon ausgegangen, dass ein Alkalimolekül durch Absorption eines Photons in einen elektronischen Zustand angeregt wird. Nach der Absorption thermalisiert der angeregte Zustand durch Stöße mit den umgebenen Puffergasatomen. Analog zu den bisher betrachteten, dichten atomaren Gasmischungen wird davon ausgegangen, dass ein Redistributionsprozess für molekulare Mischungen von verschiedenen Parametern, wie der Verstimmung, der eingestrahlten Leistung, dem Druck und der Temperatur, abhängig ist. Ferner darf keine Fluoreszenzlöschung auftreten, es muss molekulare Fluoreszenz detektierbar sein.

Erste Absorptionsmessungen zeigen das Auftreten sowohl von Cs_2 -, als auch von Rb_2 - Molekülen in den entsprechenden Gasmischungen, da verschiedene molekulare Absorptionsbande verglichen mit [92] detektiert werden können. Das Ergebnis einer solchen Messung, bei der die Absorption einer Breitband-Weißlichtlampe in eine dichte Rubidium-Argon-Gasmischung bei einem Puffergasdruck von 180 bar und einer Temperatur der Gasmischung $T = 680$ K eingestrahlt und hinter der Zelle spektral aufgelöst detektiert wurde, ist in Abbildung A.1 zu sehen.

Das Absorptionsspektrum weist Signaturen verschiedener Stärke auf. Das Signal bei einer Wellenlänge $\lambda \approx 420$ nm ist dem atomaren Übergang des Rubidiumatoms ($5S \rightarrow 6P$) zuzuordnen, zwischen ca. 730 nm und 880 nm ist der Absorptionskoeffizient aufgrund der druckverbreiterten D-Resonanzen (Übergang $5S \rightarrow 5P$) hoch. Bei einer Wellenlänge von ca. 680 nm ist ebenfalls eine erhöhte Absorption des eingestrahlten Weißlichtes erkennbar, dies wird dem ($X \rightarrow A$)-Übergang des Rubidiumdimers zugeschrieben. Ob im Bereich der roten Flanke im Bereich höherer Wellenlängen der D-Resonanzen noch eine Signatur des ($X \rightarrow A$)-Übergangs auftritt, ist aufgrund der Überlagerung mit dem starken Signal der atomaren Übergänge nicht eindeutig festzustellen. Ferner sind im Spektrum in den entsprechenden Bereichen erhöhte Absorptionskoeffizienten bei Wellenlängen von ungefähr $\lambda \approx 500$ nm, sowie $\lambda \approx 590$ nm zu erkennen, deren Ursprung zukünftig weiterer Untersuchungen bedarf.

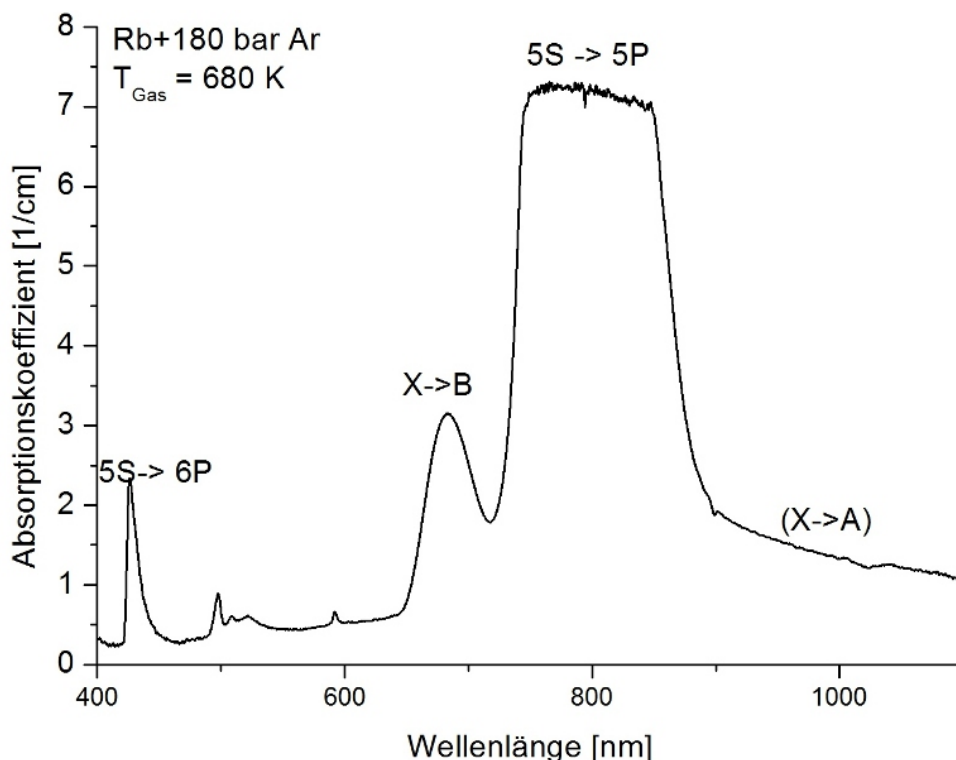


Abbildung A.1: Absorptionsspektrum einer Breitband-Weißlichtquelle, die in eine dichte Rubidium-Argon-Mischung bei einer Gastemperatur von 680 K und einem Puffergasdruck von 180 bar eingestrahlt wurde. Die größten Signaturen resultieren von den atomaren Rubidium-D-Übergängen, die aufgrund des hohen Drucks stark verbreitert sind. Bei einer Wellenlänge $\lambda \approx 420$ nm ist zudem der ($5S \rightarrow 6P$)-Übergang sichtbar. Anhand eines Vergleichs mit [92] lassen sich zwei Absorptionsbänder von Rb_2 erkennen, wobei der Übergang ($X \rightarrow A$) anhand der Überlagerung des Signals der D-Resonanzen nicht eindeutig zuzuordnen ist und somit eingeklammert eingezeichnet wird.

Hinsichtlich der Experimente mit Rb_2 konnte mittels eines Diodenlasers bei eingestrahelter Wellenlänge $\lambda = 920$ nm ein bekanntes, schwaches Fluoreszenzband im Bereich zwischen (800 – 1100) nm beobachtet werden [125]. Hier sind im Hinblick auf das Beobachten einer Temperaturänderung weitere Untersuchungen mit einer verstimmbaren Laserquelle notwendig, um eine klare Fluoreszenzredistribution beobachten zu können, als sie bisher erfolgen konnten [122].

A.2 Experimente zur Redistribution an Wasserdampf

Ein konträrer Ansatz zur Anwendung der Redistributionlaserkühlung auf eine dichte, molekulare Gasmischung liegt in der Betrachtung von Wasserdampf in dichtem Argon.

Anschließend an erste Experimente in diese Richtung [17] wurden im Rahmen dieser Arbeit auch Experimente dazu durchgeführt und hinsichtlich einer möglichen Fluoreszenzredistribution im Absorptionsband bei $1,5 \mu\text{m}$ untersucht [126]; Abbildung A.2 zeigt den Absorptionskoeffizienten als Funktion der Wellenlänge.

Die Experimente wurden mit Licht eines Optisch-Parametrischen-Oszillators (OPO) durchgeführt. Die Hochdrucksichtzelle wurde mit einem Milliliter Wasser und 100 bar Argon befüllt und auf $T = 150^\circ\text{C}$ geheizt. Da mit dem OPO eine durchstimmbare Lichtquelle zur Verfügung stand, konnten Fluoreszenzmessungen bei unterschiedlichen eingestrahelten Wellenlängen

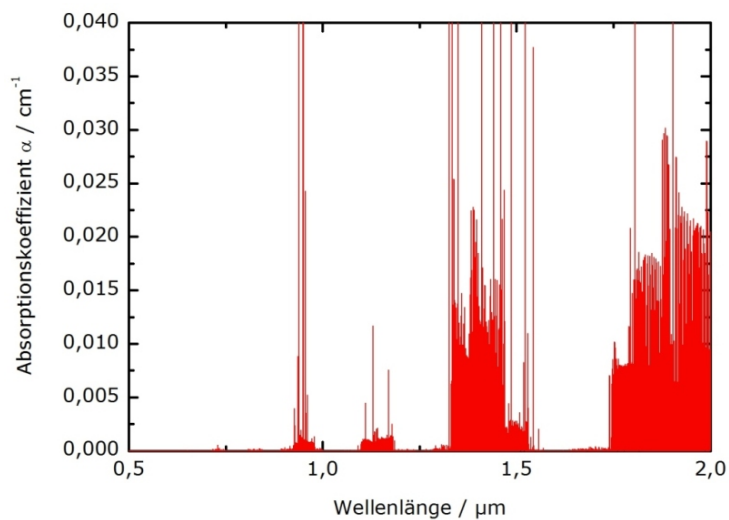


Abbildung A.2: Absorptionskoeffizient von Wasserdampf als Funktion der Wellenlänge gemäß der Daten aus [126].

zwischen $1,4 \mu\text{m}$ und $1,55 \mu\text{m}$ im Bereich des spektral breiten Absorptionsbands durchgeführt werden. Abbildung A.3 zeigt zwei solche Messungen.

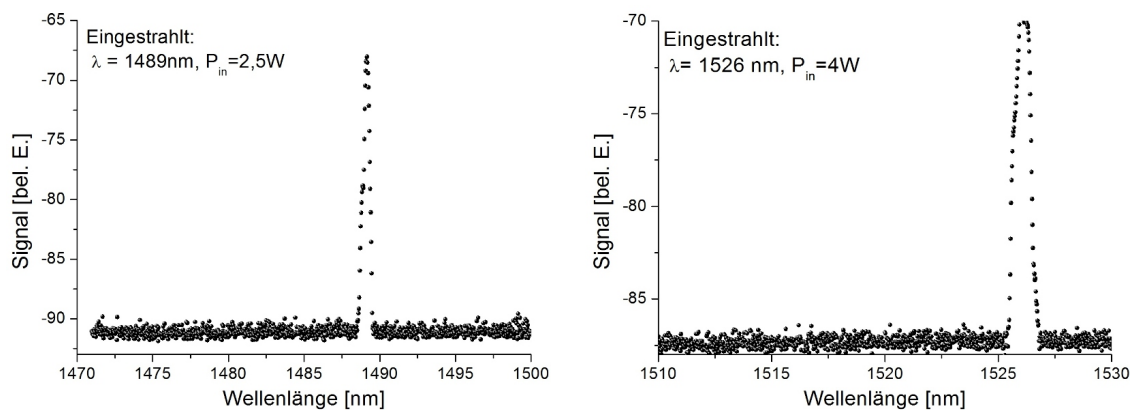


Abbildung A.3: Experimente mit einer dichten Wasserdampf-Argon-Mischung bei 100 bar Druck und einer Zelltemperatur von 150°C . Licht eines OPOs wird bei zwei unterschiedlichen Wellenlängen im Bereich eines Absorptionsbandes von Wasserdampf in die Hochdrucksichtzelle eingestrahlt. Jedoch kann keine (redistribuierte) Fluoreszenz detektiert werden.

Außer des transmittierten Lichts, das in die Zelle eingestrahlt wurde, konnte jedoch keine (redistribuierte) Fluoreszenz beobachtet werden. Es stellte sich in diesem Zusammenhang heraus, dass aufgrund nicht-radiativer Übergänge eine Abregung eines angeregten Niveaus über mehrere Zwischenniveaus erfolgt und somit keine Redistribution hin zu höheren Energien erfolgt [127]. Wasserdampf scheint somit - zumindest im betrachteten Wellenlängenbereich - kein geeigneter Kandidat für eine Redistributionslaserkühlung zu sein.

B Ablenkwinkelberechnung aus simuliertem Temperaturprofil

Im Folgenden wird die Befehlskette des Mathematica-Notebooks dargestellt und kommentiert, anhand derer eine Berechnung der Ablenkwinkel als Funktion der radialen Koordinate r aus der simulierten Temperaturverteilung erfolgt.

```

SetDirectory"... "
% Verzeichnis auswählen

DataComsol = Import[" ... "];
% Datensatz aus Datei importieren

Length[DataComsol]
% Länge des Datensatzes

r = Table[DataComsol[[i, 1]], {i, ..., ...}];
z = Table[DataComsol[[i, 2]], {i, ..., ...}];
Tf = Table[DataComsol[[i, 3]], {i, ..., ...}];
data = Table[{r[[i]], z[[i]], Tf[[i]]}, {i, ..., ...}];
ListPlot3D[data, PlotRange -> {... , ...}]
% Importieren und Darstellen der drei Datenreihen für die räumlichen Koordinaten r,
z, sowie der Temperatur T

F = Table[{r[[i]], z[[i]], Tf[[i]]}, {i, ..., ...}]
P = Interpolation[F]
Plot3D[P[x, y], {x, ..., ...}, {y, ..., ...}, PlotRange -> {... , ...}]
% Interpolation einer Funktion die die Verteilung beschreibt und Darstellung (zum
Vergleich) derer

H[x_, y_] = D[P[x, y], x]
Abl = Table[{r[[i]], z[[i]], H[r[[i]], z[[i]]}, {i, ..., ...}]
% Berechnung der Ableitung nach x (entspricht r) der interpolierten Funktion

pbar := 200
(n-1) := 0,000281
% Druck in [bar] für den jeweilig simuliert wurde, sowie Brechungsindex n des
Edelgases unter Normalbedingungen

Abl2 = Table[{r[[i]], z[[i]], (n-1)*pbar*273/(Tf[[i]])^2*H[r[[i]], z[[i]]}, {i, ..., ...}]
Q = Interpolation[Abl2]
% Berechnung von  $\varphi = \int dz (dn/dT) (dT/dr)$ 

J[x_] = N[Integrate[Q[x, y], {y, ..., ...}]]
% Integration über y (entspricht der z-Koordinate (gesamte Länge der Zelle))

Plot[J[x], {x, ..., ...}, PlotRange -> {... , ...}]
Phidata = Table[{x, J[x]}, {x, ..., ...}];
Export["Phidata.txt", Phidata, "List"]
% Darstellung und Export der berechneten Ablenkwinkel als Funktion der radialen
Koordinate r

```


C Berechnung der Skalierungsexponenten für die Simulationen zur temperaturabhängigen Absorption

Wie in Abschnitt 5.3 erläutert, wurde für die Simulationen zur Temperaturverteilung neben dem Ansatz zur linearen Abhängigkeit der Absorption von der Temperatur auch ein Ansatz mit Ursprung aus der Atmosphärenphysik betrachtet (Gleichung 5.7), für den es anhand von Messdaten galt, den Skalierungsexponenten A zu bestimmen. Zu diesem Zweck wurden für die beiden betrachteten Drücke jeweils aus mehreren Experimenten die Daten für die gemessene Absorption bei fester Kühlwellenlänge 810 nm betrachtet. Als Referenzwerte α_0, T_0 wurden jeweils der geringste, für den Absorptionskoeffizienten gemessene Wert, sowie die zugehörige Temperatur der Gasmischung gesetzt. Abbildung C.1 zeigt die beiden Messkurven sowie die linearen Anpassungen an die Daten. Für einen Druck $p = 160$ bar ergibt sich $A = -(0,10 \pm 0,03)$, für den höheren Druck $p = 220$ bar liefert die lineare Anpassung $A = -(0,09 \pm 0,02)$. Dass es in beiden Messkurven Abweichungen des Verlaufs von einer Gerade gibt, resultiert daraus, dass jeweils unterschiedliche Messreihen aus dem gesamten Verlauf dieser Arbeit miteinander verglichen wurden.

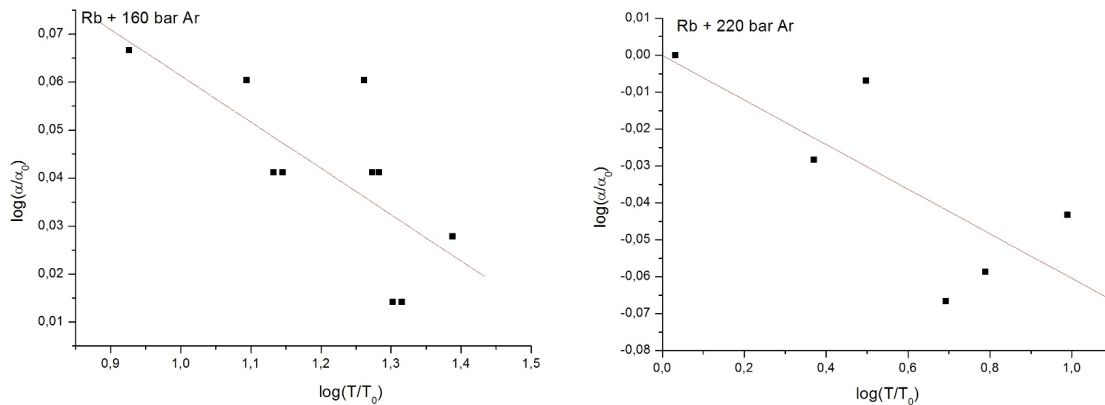


Abbildung C.1: Anhand von mehreren Messdaten für die optische Dichte bei fester Wellenlänge $\lambda = 810$ nm, sowie verschiedenen anfänglichen Gastemperaturen wurde der Logarithmus der Absorptionskoeffizienten als Funktion des Logarithmus der Temperaturen aufgetragen. Die Steigung der linearen Anpassung liefert den Skalierungsexponenten. Die linke Abbildung zeigt die Daten für einen Druck $p = 160$ bar, rechts sind die Daten für 220 bar dargestellt. Als Referenzwerte α_0, T_0 wurden der geringste, gemessene Wert des Absorptionskoeffizienten sowie die zugehörige Temperatur angenommen.

D Simulationen für Rubidiumatome in 60 bar Argon-Puffergas

Für die Parameter der in Abschnitt 4.2.3 gezeigten Messung für Rubidiumatome in 60 bar Argon-Puffergas wurden analog zu den in Kapitel 5 gezeigten Simulationen die relativen Temperaturänderungen für die drei Ansätze hinsichtlich des Absorptionskoeffizienten und die damit zusammenhängenden Winkelverteilungen berechnet. Bei einer ursprünglichen Temperatur der Gasmischung $T = 710$ K ergab sich für die relative Temperaturänderung für eine konstante, eine linear von der Temperatur abhängige, sowie für eine mit einer Potenz A von der Temperatur T skalierende Absorption Werte von $(\Delta T_{\text{sim}} = -251 \text{ K})_{\text{const.}}$, $(\Delta T_{\text{sim}} = -240 \text{ K})_{\text{lin.}}$, $(\Delta T_{\text{sim}} = -234 \text{ K})_{\text{pot.}}$; diese Werte fallen circa einen Faktor zwei geringer aus als die direkt aus den experimentellen Daten berechnete Temperaturänderung von $\Delta T_{\text{exp}} = -500$ K. Die folgende Abbildung D.1 zeigt den Vergleich zwischen den gemessenen Ablenkungen und den berechneten.

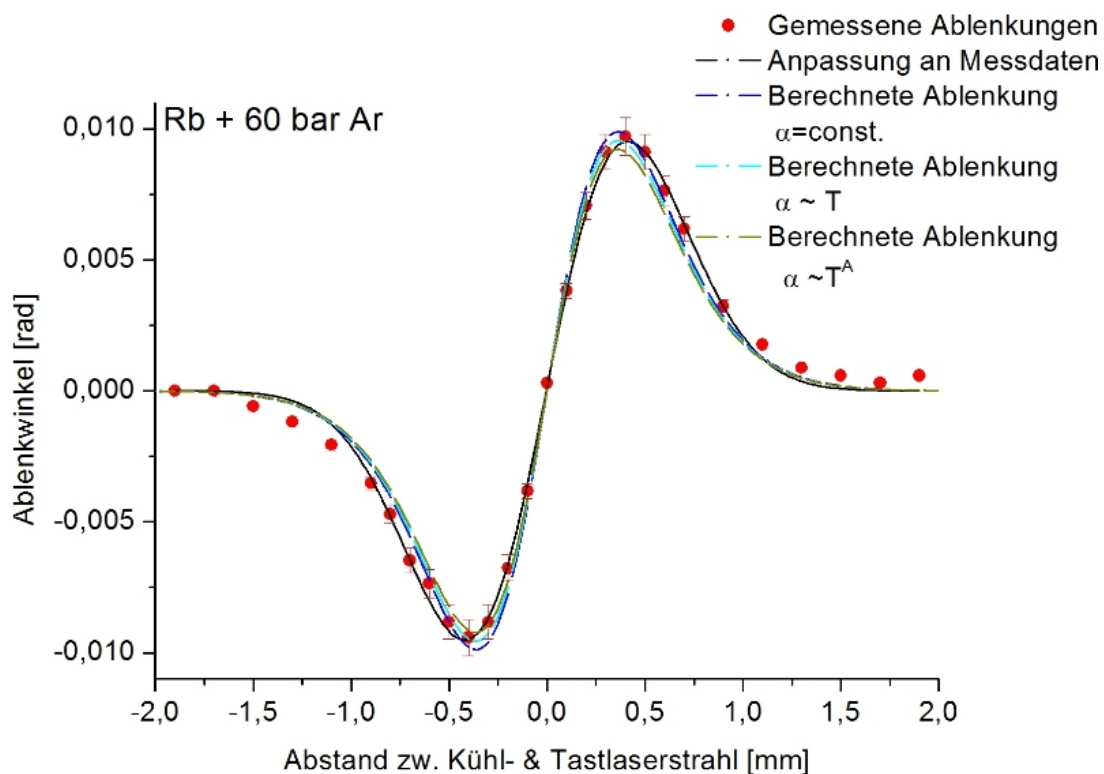


Abbildung D.1: Vergleich der gemessenen Ablenkungswinkel für eine Rubidium-Argon-Gasmischung bei 60 bar mit den aus den simulierten Temperaturverteilungen berechneten Winkelverteilungen.

Die für eine linear mit der Temperatur skalierende Absorption simulierte Temperaturverteilung liefert eine Verteilung der Ablenkungswinkel, die der gemessenen am nächsten kommt, die Unterschiede zu den beiden anderen Ansätzen sind jedoch, wie im Beispiel von Rubidiumatomen in 160 bar Argon-Puffergas nicht signifikant. Leichte Abweichungen resultieren vermutlich aus einer Diskrepanz zwischen theoretisch angenommenem und dem im Experiment realisiertem Strahldurchmesser im Bereich weniger Mikrometer.

Literatur

- [1] P. Pringsheim. Zwei Bemerkungen über den Unterschied von Lumineszenz und Temperaturstrahlung. *Z. Phys. A*, 57:739, 1929.
- [2] T. H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187:4736, 1960.
- [3] T. W. Hänsch and A. L. Schawlow. Cooling of gases by laser radiation. *Opt. Commun.*, 13:68, 1975.
- [4] D. J. Wineland and W. M. Itano. Laser cooling of atoms. *Phys. Rev. A*, 20:1521, 1979.
- [5] C. S. Adams and E. Riis. Laser cooling and trapping of neutral atoms. *Quantum Electron.*, 21:1, 1997.
- [6] S. Chu, L. Hollberg, J. E. Bjorkholm, A. Cable, and A. Ashkin. Three-dimensional viscous confinement and cooling of atoms by resonance radiation pressure. *Phys. Rev. Lett.*, 55:48, 1985.
- [7] M. H. Anderson, J. R. Ensher, M. R. Matthews, C. E. Wieman, and E. A. Cornell. Observation of Bose-Einstein Condensation in a dilute atomic vapor. *Science*, 269:5221, 1995.
- [8] K. B. Davis, M. O. Mewes, M. R. Andrews, N. J. van Druten, D. S. Durfee, D. M. Kurn, and W. Ketterle. Bose-Einstein Condensation in a Gas of Sodium Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 75:3969, 1995.
- [9] E. S. Shuman, J. F. Barry, and D. DeMille. Laser cooling of a diatomic molecule. *Nature*, 467:820, 2010.
- [10] A. Kastler. Quelques suggestions concernant la production optique et la détection optique d'une inégalité de population des niveaux de quantification spatiale des atomes. *J. Phys. Radium*, 11:255, 1950.
- [11] N. Djeu and W. T. Whitney. Laser cooling by spontaneous anti-stokes scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 46:236, 1981.
- [12] R. I. Epstein, M. I. Buchwald, B. C. Edwards, T. R. Gosnell, and C. E. Mungan. Observation of laser-induced fluorescent cooling of a solid. *Nature*, 377:500, 1995.
- [13] D. V. Seletskiy, S. D. Melgaard, S. Bigotta, A. Di Lieto, M. Tonell, and M. Sheik-Bahae. Laser cooling of solids to cryogenic temperatures. *Nat. Photonics*, 4:161, 2010.
- [14] S. Yeh and P. R. Berman. Theory of collisionally aided radiative excitation. *Phys. Rev. A*, 19:1106, 1979.
- [15] P. R. Berman and S. Stenholm. Heating or cooling using collisionally aided fluorescence. *Opt. Commun.*, 24:155, 1978.
- [16] U. Vogl and M. Weitz. Laser cooling by collisional redistribution of radiation. *Nature*, 461:70, 2009.
- [17] U. Vogl. *Kollektive Effekte und stoßinduzierte Redistributionskühlung in dichten atomaren Gasen*. Dissertation. Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, 2010.
- [18] R. C. Weast. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*. 69th edition CRC Press, Inc, Boca Raton, 1988.

- [19] C. B. Alcock, V. P. Itkin, and M. K. Horrigan. Vapor pressure equations for the metallic elements. *Canadian Metallurgical Quarterly*, 23:309, 1984.
- [20] C. L. Yaws. *Handbook of Vapor Pressure: Volume 4: Inorganic Compounds and Elements*. Gulf Professional Publishing, Houston, 1995.
- [21] B. Shirinzadeh and C. C. Wang. Accurate determination of the vapor pressure of potassium using optical absorption. *Appl. Opt.*, 22:3265, 1983.
- [22] H. Mayer. Über eine neue Methode zur Messung kleinster Dampfdrücke. Die Dampfdrücke von Quecksilber und Kalium. *Zeits. f. Physik*, 67:240, 1931.
- [23] A. Bondi. van der Waals Volumes and Radii. *The Journal of Physical Chemistry*, 68(3):441–451, 1964.
- [24] C. Mortimer. *Chemie - Das Basiswissen der Chemie*. Georg Thieme Verlag, Stuttgart, 1996 (6th edition).
- [25] D. Steck. Rubidium 85 D Line Data. <http://steck.us/alkalidata>. Accessed: 2014-02-01.
- [26] T. Tiece/Van der Waals-Zeeman Institute. Properties of Potassium. <http://www.tobiastiece.nl/archive/PotassiumProperties.pdf>. Accessed: 2014-02-01.
- [27] N. Allard and J. Kielkopf. The effect of neutral nonresonant collisions on atomic spectral lines. *Rev. Mod. Phys.*, 54, 1982.
- [28] W. R. Hindmarsh and J. M. Farr. *Collisional Broadening of Spectral lines by neutral atoms*. Pergamon Press, Oxford, 1973.
- [29] 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.
- [30] W. Demtröder. *Laser Spectroscopy, Basic Concepts and Instrumentation*. 2nd edition Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 1998.
- [31] A. A. Michelson. On the broadening of spectral lines. *The Astrophysical Journal*, 2:251, 1895.
- [32] H. A. Lorentz. The absorption and emission lines of gaseous bodies. *KNAW Proceedings (Amsterdam)*, 8 II:591, 1906.
- [33] J. H. Van Vleck and V. F. Weisskopf. On the shape of collision-broadened lines. *Rev. Mod. Phys.*, 17:227, 1945.
- [34] V. F. Weisskopf. Zur Theorie der Kopplungsbreite und der Stoßdämpfung. *Zeits. f. Physik*, 75:287, 1932.
- [35] V. F. Weisskopf. Zur Theorie der Kopplungsbreite. *Zeits. f. Physik*, 75:398, 1932.
- [36] W. Lenz. Allgemeine Theorie der Verbreiterung von Spektrallinien. *Zeits. f. Physik*, 80:423, 1933.
- [37] M. Baranger. General impact theory of pressure broadening. *Phys.Rev.*, 112:855, 1958.
- [38] H. Van Regemorter. Beyond the impact approximation. *Phys. Lett.*, 30A:365, 1969.

- [39] H. Margenau and M. Lewis. Structure of spectral lines from plasmas. *Rev. Mod. Phys.*, 31:569, 1959.
- [40] H. Margenau. Statistical theory of pressure broadening. *Phys. Rev.*, 82:156, 1951.
- [41] H. Kuhn. Pressure shift and broadening of spectral lines. *Philos. Mag.*, 7:987, 1934.
- [42] H. Kuhn and F. London. Pressure shift of spectral lines. *Philos. Mag.*, 7:983, 1934.
- [43] H. Kuhn. Pressure shift of spectral lines. *Phys. Rev.*, 52:133, 1937.
- [44] H. Margenau. Theory of pressure effects of foreign gases on spectral lines. *Phys. Rev.*, 48:755, 1935.
- [45] H. Margenau. Zur Theorie der Verbreiterung von Spektrallinien. *Zeits. f. Physik*, 86:523, 1933.
- [46] G. Peach. Unified theories of the pressure broadening and shift of spectral lines: I. General formulation of multipole interactions. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 17:2599, 1984.
- [47] B. N. I. Al-Saqabi and G. Peach. Unified theories of the pressure broadening and shift of spectral lines: II. Van der Waals interactions. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 20:1175, 1987.
- [48] G. Peach. Theory of the pressure broadening and shift of spectral lines. *Adv. in phys.*, 30:367, 1981.
- [49] W. Anderson and J. D. Talman. *Pressure Broadening of Spectral lines at general pressures*. Bell System Technical Publication No. 3317, 1956 (New Jersey).
- [50] R. H. Dicke. The effect of collisions upon the doppler width of spectral lines. *Phys. Rev.*, 89:472, 1953.
- [51] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Poc, and G. Grynberg. *Atom-Photon Interactions: Basic processes and applications*. Wiley, New York, 1998.
- [52] R. Loudon. *The Quantum Theory of Light*. Oxford University Press, Oxford, 2000.
- [53] C. Shang-Yi. Broadening, asymmetry and shift of rubidium resonance lines under different pressures of helium and argon up to 100 atmospheres. *Phys. Rev.*, 58:1051, 1940.
- [54] K. Burnett. Collisional redistribution of radiation. *Physics Reports*, 118:339, 1985.
- [55] J. L. Carlsten, A. Szöke, and M. G. Raymer. Collisional redistribution and saturation of near-resonance scattered light. *Phys. Rev. A*, 15:1029, 1977.
- [56] J. L. Carlsten and A. Szöke. Spectral resolution of near-resonant rayleigh scattering and collision-induced resonance fluorescence. *Phys. Rev. Lett.*, 36:667, 1976.
- [57] D. L. Huber. Resonant scattering of monochromatic light in gases. *Phys. Rev.*, 178:93, 1969.
- [58] A. Omont, E. W. Smith, and J. Cooper. Redistribution of resonance radiation: The effect of collisions. *Astrophys. J.*, 175:185, 1972.
- [59] J. Dhiflaoui, H. Berriche, and M. C. Heaven. Electronic absorption spectra of the RbAr Van der Waals Complex. *AIP Conf. Proc.*, 1370:234, 2011.

- [60] U. Vogl, A. Saß, S. Haßelmann, and M. Weitz. Collisional redistribution laser cooling of a high-pressure atomic gas. *J. Mod. Opt.*, 58:1300, 2011.
- [61] A. Saß, U. Vogl, and M. Weitz. Laser cooling of a potassium-argon mixture using collisional redistribution of radiation. *Appl. Phys. B*, 102:503, 2011.
- [62] A. Saß, R. Forge, S. Christopoulos, K. Knicker, P. Moroshkin, and M. Weitz. Laser cooling of dense atomic gases by collisional redistribution of radiation and spectroscopy of molecular dimers in a dense buffer gas environment. In R. I. Epstein, D. E. Seletskiy, and M. Sheik-Bahae, editors, *Laser Refrigeration of Solids VII*, volume 9000 of *Proc. SPIE*, 2014.
- [63] 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.
- [64] O. Klein and S. Rosseland. Über Zusammenstöße zwischen Atomen und freien Elektronen. *Zeits. f. Physik*, 4:46, 1921.
- [65] J. Franck. Einige aus der Theorie von Klein und Rosseland zu ziehende Folgerungen über Fluoreszenz, photochemische Prozesse und die Elektronenemission glühender Körper. *Zeits. f. Physik*, 9:259, 1922.
- [66] T. Förster. Zwischenmolekulare Energiewanderung und Fluoreszenz. *Ann. d. Physik*, 437:55, 1948.
- [67] M. Allegrini, C. Gabbanini, and L. Moi. Energy-pooling processes in laser-excited alkali vapors: An update on experiments. *J. Phys. (Paris) Colloq*, 46:c1–61, 1985.
- [68] L. Barbier and M. Cheret. Energy pooling process in rubidium vapour. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 16:3213, 1983.
- [69] W. Demtröder. *Experimentalphysik I: Mechanik und Wärme*. 5th edition Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 2008.
- [70] J. H. Lienhard IV and J. H. Lienhard V. *A heat transfer textbook*. 4th edition Phlogiston Press Cambridge, MA, 2012.
- [71] R. P. Feynman and R. B. Leighton and M. Sands. *The Feynman Lectures on Physics: The Electromagnetic Field*. Addison-Wesley Publishing Company, Inc, Reading MA Palo Alto London, 1965.
- [72] J. Nipper. *Spektroskopie und Untersuchungen zu einer Fluoreszenzkühlung in dichten atomaren Gasen*. Diplomarbeit. Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, 2008.
- [73] R. Langen. *Technische Dokumentation zur Hochdrucksichtzelle*. Feinmechanische Werkstatt des Instituts für Angewandte Physik der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, 2008.
- [74] U. Vogl, A. Saß, F. Vewinger, M. Weitz, A. Solovev, Y. Mei, and O. G. Schmidt. Light confinement by a cylindrical metallic waveguide in a dense buffer-gas environment. *Phys. Rev. A*, 83:053403, 2011.
- [75] P. W. Bridgman. Recent work in the field of high pressures. *Rev. Mod. Phys.*, 18:1, 1946.

- [76] Sitec Sieber Engineering AG. Datenblatt zur Hochdrucksichtzelle, 2012.
- [77] G. W. Faris and R. L. Byer. Beam-deflection optical tomography. *Opt. Lett.*, 12:72, 1987.
- [78] G. W. Faris and R. L. Byer. Quantitative three-dimensional optical tomography imaging of supersonic flows. *Science*, 238:1700, 1987.
- [79] G. W. Faris and R. L. Byer. Three-dimensional beam-deflection optical tomography of a supersonic jet. *Appl. Opt.*, 27:5202, 1988.
- [80] O. Sasaki and T. Kobayashi. Beam-deflection optical tomography of the refractive-index distribution based on the Rytov approximation. *Appl. Opt.*, 32:746, 1993.
- [81] G. W. Faris, E. A. Brinkman, and J. B. Jeffries. Density measurements in a DC arcjet using scanned beam deflection tomography. *Opt. Expr.*, 7:447, 2000.
- [82] Nova Swiss. Datenblatt zur Hochdrucksichtzelle, 2013.
- [83] J. D. Spear, R. E. Russo, and R. J. Silva. Collinear photothermal deflection spectroscopy with light-scattering samples. *Appl. Opt.*, 29:4225, 1990.
- [84] W. B. Jackson, N. M. Amer, A. C. Boccara, and D. Fournier. Photothermal deflection spectroscopy and detection. *Appl. Opt.*, 20:1333, 1981.
- [85] J. R. Whinnery. Laser measurement of optical absorption in liquids. *Acc. of Chem. Res.*, 7:225, 1974.
- [86] L. W. Casperson. Gaussian light beams in inhomogeneous media. *Appl. Opt.*, 12:2434, 1973.
- [87] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*. Pergamon, Elmsford, 1999 (7th edition).
- [88] H. J. Achtermann, J. G. Hong, G. Magnus, R. A. Aziz, and M. J. Slaman. Experimental determination of the refractivity virial coefficients of atomic gases. *J. Chem. Phys.*, 98:2308, 1993.
- [89] P. J. Leonard. Refractive indices, verdet constants and polarizabilities of the inert gases. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 14:21, 1974.
- [90] C. Cuthbertson and M. Cuthbertson. On the refraction and dispersion of krypton and xenon and their relation to those of helium and argon. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 81:440, 1908.
- [91] A. C. Sinnock. Refractive indices of the condensed rare gases, argon, krypton and xenon. *J. Phys. C: Solid St. Phys.*, 13:2375, 1980.
- [92] S. Vdovic, D. Sarkisyan, and G. Pichler. Absorption spectrum of rubidium and cesium dimers by compact computer operated spectrometer. *Opt. Commun.*, 286:58, 2006.
- [93] R. Forge. *Optischer Nachweis einer Laserkühlung ultradichter Gase*. Bachelorarbeit. Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, 2011.
- [94] 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.

- [95] D. L. Drummond and A. Gallagher. Potentials and continuum spectra of Rb-noble gas molecules. *Journal of Chem. Phys.*, 60:3426, 1974.
- [96] J. P. Gordon, R. C. C. Leite, R. S. Moore, S. P. S. Porto, and J. R. Whinnery. Long-transient effects in lasers with inserted liquid samples. *J. Appl. Phys.*, 36:3, 1965.
- [97] G. G. Simeoni, T. Bryk, F. A. Gorelli, M. Krisch, G. Ruocco, M. Santoro, and T. Scopigno. The widom line as the crossover between liquid-like and gas-like behaviour in supercritical fluids. *Nature Phys.*, 6:503, 2010.
- [98] K. Iland, J. Wölk, R. Strey, and D. Kashchiev. Argon nucleation in a cryogenic nucleation pulse chamber. *J. Chem. Phys.*, 127:154506, 2007.
- [99] V. I. Kalikmanov, J. Wölk, and T. Kraska. Argon nucleation: Bringing together theory, simulations, and experiments. *J. Chem. Phys.*, 128:124506, 2008.
- [100] E. H. Kennard. On the thermodynamics of fluorescence. *Phys. Rev.*, 11:29, 1918.
- [101] B. I. Stepanov. Universal relation between the absorption spectra and luminescence spectra of complex molecules. *Doklady Akademii Nauk SSSR.*, 112:839, 1957.
- [102] P. Moroshkin, L. Weller, A. Saß, J. Klaers, and M. Weitz. Kennard-stepanov relation connecting absorption and emission spectra in an atomic gas. *Phys. Rev. Lett.*, 113:063002, 2014.
- [103] J. Hartmann. Bemerkungen über den Bau und die Justierung von Spektrographen. *Z. Instrumentenk.*, 20:47, 1900.
- [104] R. V. Shack. Production and use of a lenticular Hartmann screen. *JOSA*, 61:648, 1971.
- [105] T. Holstein. Imprisonment of resonance radiation in gases. *Phys. Rev.*, 72:1212, 1947.
- [106] A. Molisch and B. P. Oehry. *Radiation trapping in atomic vapours*. Oxford University Press, New York, 1998.
- [107] S. Haßelmann. *Laserkühlung ultradichter atomarer Gase mit einem Hochleistungsdiodenlaser*. Diplomarbeit. Universität Bonn, 2011.
- [108] M. B. Hadj Rhouma, H. Berriche, Z. B. Lakhdar, and F. Spiegelman. One-electron pseudopotential calculations of excited states of LiAr, NaAr, and KAr. *J. Chem. Phys.*, 116:1839, 2002.
- [109] C. Figl. *Optical collisions in crossed beams and Bose-Einstein condensation in a microtrap*. Dissertation. Universität Hannover, 2004.
- [110] H. Kuhn and O. Oldenberg. Evidence of space quantization of atoms upon impact. *Phys. Rev.*, 41:72, 1932.
- [111] J. F. Kielkopf and J. A. Gwinn. Semiclassical theory of satellite bands produced in the spectra of alkali metals by interaction with foreign gases. *J. Chem. Phys.*, 48:12, 1968.
- [112] D. Steck. Cesium D Line Data. <http://steck.us/alkalidata>. Accessed: 2014-02-24.
- [113] Q. Zhu, B. Pan, L. Chen, Y. Wang, and X. Zhang. Analysis of temperature distributions in diode-pumped alkali-vapor lasers. *Opt. Commun.*, 283:2406, 2010.

- [114] E. Bich, J. Millat, and E. Vogel. The viscosity and thermal conductivity of pure monatomic gases from their normal boiling point up to 5000K in the limit of zero density and at 0.101325 MPa. *J. Chem. Ref. Data*, 19:1289, 1990.
- [115] Eigenschaften von Monokristall-Saphir. http://www.sappro.de/contentDEU/GWI_Saphir_Eigenschaften.pdf. Accessed: 2014-06-13.
- [116] J. E. Harries. The temperature dependence of collision-induced absorption in gaseous N_2 . *J. Opt. Soc. Am.*, 69:386, 1979.
- [117] G. Shi and H. Zhang. The relationship between absorption coefficient and temperature and their effect on the atmospheric cooling rate. *J. Quant. Spec. Rad. Trans.*, 105:459, 2007.
- [118] F. Aousgi, S. Haddad, and H. Aroui. On the pressure and temperature dependence of the absorption coefficient of NH_3 . *Int. J. Spec.*, 2011:Article ID 816548, 2011.
- [119] L. C. Weller. *Kennard-Stepanov relation for pressure broadened atomic spectral lines*. Masterarbeit. Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, 2013.
- [120] A. Fladerer and R. Strey. Homogeneous nucleation and droplet growth in supersaturated argon vapor: The cryogenic nucleation pulse chamber. *J. Chem. Phys.*, 124:164710, 2006.
- [121] P. Simon, P. Moroshkin, L. Weller, A. Saß, and M. Weitz. Towards redistribution laser cooling of molecular gases: production of candidate molecules SrH by laser ablation. In R. I. Epstein, D. E. Seletskiy, and M. Sheik-Bahae, editors, *Laser Refrigeration of Solids VI*, volume 8638 of *Proc. SPIE*, 2013.
- [122] R. Forge. *Spectroscopy of Rubidium and Caesium Molecular Dimers in Dense Noble Buffer Gases for Redistribution Laser Cooling*. Masterarbeit. Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, 2013.
- [123] M. Zeppenfeld, B. G. U. Englert, R. Glöckner, A. Prehn, M. Mielenz, C. Sommer, L. D. van Buuren, M. Motsch, and G. Rempe. Sisyphus cooling of electrically trapped polyatomic molecules. *Nature*, 491:570, 2012.
- [124] R. Gupta, W. Happer, J. Wagner, and E. Wennmyr. Absorption studies of Cs_2 and Rb_2 molecular bands in the visible and near visible. *J. Chem. Phys.*, 68:799, 1978.
- [125] R. Beuc, M. Movre, V. Horvatic, C. Vadla, O. Dulieu, and M. Aymar. Absorption spectroscopy of the rubidium dimer in an overheated vapor: An accurate check of molecular structure and dynamics. *Phys. Rev. A*, 75:032512, 2007.
- [126] Hitran absorption coefficient of water vapor. <http://www.cfa.harvard.edu/hitran/>. Accessed: 2011-04-13.
- [127] H. Li, R. K. Hanson, and J. B. Jeffries. Diode laser-induced infrared fluorescence of water vapour. *Meas. Sci. Technol.*, 15:1285, 2004.