



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

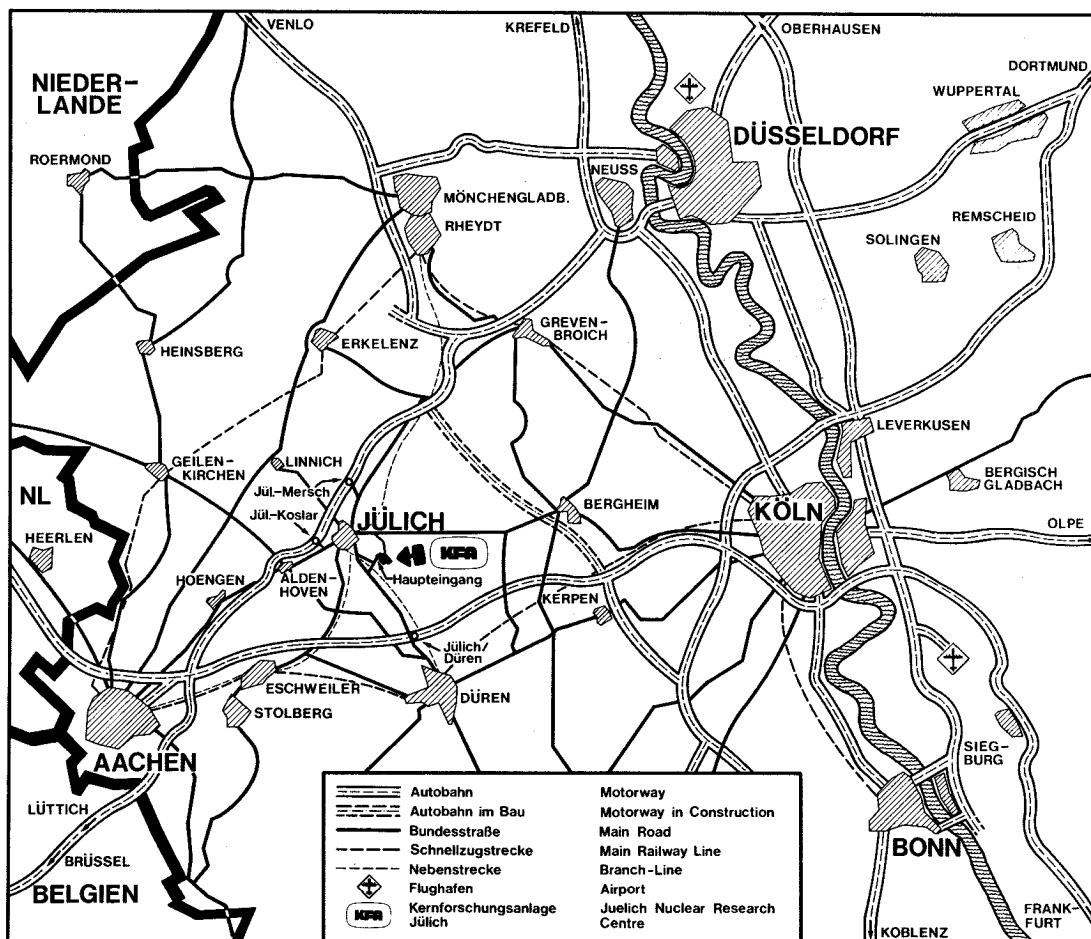
Institut für Plasmaphysik
Association EURATOM - KFA

**Fluoreszenzspektroskopische Messungen
der Geschwindigkeitsverteilungen
verdampfter und zerstäubter Zr-Atome
mit Hilfe eines Dauerstrich-Farbstofflasers**

von

W. Berres

Jül - 1828
Februar 1983
ISSN 0366 - 0885



Als Manuskript gedruckt

Berichte der Kernforschungsanlage Jülich - Nr. 1828
 Institut für Plasmaphysik Association EURATOM - KFA Jül - 1828

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH
 Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)
 Telefon: (0 24 61) 610 · Telex: 8 33 556 kfa d

**Fluoreszenzspektroskopische Messungen
der Geschwindigkeitsverteilungen
verdampfter und zerstäubter Zr-Atome
mit Hilfe eines Dauerstrich-Farbstofflasers**

von

W. Berres

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird ein Verfahren zur Bestimmung von Geschwindigkeitsverteilungen in Atomstrahlen aus der Doppler-Verschiebung von im sichtbaren Bereich liegenden Spektrallinien beschrieben. Um eine hohe spektrale Auflösung zu erzielen, erfolgt die Anregung der Atome mit Hilfe eines auf nur einer durchstimmbaren Frequenz arbeitenden Dauerstrich-Farbstofflasers. Beobachtet wird die spontane Emission der angeregten Atome in eines von im allgemeinen mehreren metastabilen Niveaus als Fluoreszenzstrahlung (Drei-Niveau-System). Aus der Abhängigkeit dieser Fluoreszenz von der Frequenz des anregenden Laserlichtes läßt sich sodann die Geschwindigkeitsverteilung quantitativ ermitteln.

Dieses Meßverfahren wurde dann dazu benutzt, die Geschwindigkeitsverteilungen der von niederenergetischen Ar-, He- und D-Ionen zerstäubten Zr-Atome zu bestimmen. Die hohe Geschwindigkeitsauflösung des Verfahrens ($\Delta v < 10 \text{ m/s}$) ermöglichte es, erstmalig zu zeigen, daß die Geschwindigkeitsverteilungen zerstäubter Atome von der Masse der Zerstäubungsionen abhängig ist.

Da die Atome durch das Laserlicht in metastabile Zustände übergepumpt werden, verringert sich laufend die Zahl der anregbaren Atome. Die quantitative Auswertung der Messungen erfordert daher zum einen eine zeitabhängige Lösung der Bilanzgleichungen im Drei-Niveau-System und zum andern eine gute Definition der Anregungs- und Beobachtungsgeometrie, sodaß sich die Dauer der Anregung ermitteln läßt. Zu diesem Zweck fällt der Laserstrahl senkrecht auf die den Atomstrahl emittierende Fläche. Die Fluoreszenzstrahlung wird senkrecht zum Laserstrahl, d.h. parallel zur emittierenden Fläche in einem Streuvolumen beobachtet, das einen variablen aber definierten Abstand von der emittierenden Fläche hat. Die Anregungsdauer ist daher durch den Abstand des Streuvolumens von der emittierenden Fläche und die aus der Frequenzverstimmung des Lasers folgende Geschwindigkeit der Atome gegeben.

Zur Auswertung der Messungen wurden die folgenden physika-

lischen Annahmen gemacht: 1. Die Absorptionslinie hat ein Lorentz-Profil, dessen Breite durch die Lebensdauer des angeregten Zustandes bestimmt ist. 2. Die spektrale Verteilung der Laserlinie (instantane Breite) wird als δ -Distribution behandelt; d.h. die Laserstrahlung wird als monochromatisch angesehen. 3. Die Laserfrequenz soll sich nur so langsam ändern, daß die Laserlinie während der Aufenthaltszeit der Atome im Laserlicht nicht aus dem Zentrum der Absorptionslinie wandert.

Zur Überprüfung des Meßverfahrens wurde die Geschwindigkeitsverteilung von Zr-Atomen gemessen, die von einer elektrisch geheizten Zr-Folie abgedampft wurden. Für große Geschwindigkeiten, d.h. kleine Aufenthaltszeiten im Laserlicht ergibt die den obigen Annahmen entsprechende Auswertung gute Übereinstimmung mit der aus der Theorie von Langmuir erwarteten Geschwindigkeitsverteilung. Nur für kleine Geschwindigkeiten, d.h. für lange Aufenthaltsdauern der Atome im anregenden Laserlicht, ergeben sich Abweichungen, da der Laser über längere Zeiten nicht genügend frequenzstabil ist. Diese Abweichungen sind jedoch für die Messung der Geschwindigkeitsverteilungen zerstäubter Atome unerheblich.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Theoretische Grundlagen	5
2.1. Geometrie der experimentellen Anordnung	5
2.2. Spektroskopische Grundlagen	7
2.3. Anregung im Zwei-Niveau-System	11
2.4. Anregung im Drei-Niveau-System	15
2.5. Anregung geschwindigkeitsverteilter Atome	21
2.6. Thermische Geschwindigkeitsverteilung	27
3. Experimenteller Aufbau	32
3.1. Das Lasersystem	34
3.1.1. Theoretische Grundlagen	34
3.1.2. Der Aufbau des Farbstofflasers	35
3.1.3. Eigenschaften des Dauerstrich-Farbstofflasers	37
3.1.4. Instantane Laserlinienbreite und scheinbare Breite des Lasers	42
3.2. Das Verdampfersystem	44
3.3. Das Nachweissystem	46
4. Messung der Geschwindigkeitsverteilung verdampfter Zr-Atome	50
4.1. Versuchsvorbereitungen	50
4.1.1. Auswahl des Absorptions- und Emissionsüberganges	50
4.1.2. Einstellung der Absorptionswellenlänge	51
4.1.3. Streuvolumen- und Abstandsmessung	52
4.2. Vorversuche	53
4.2.1. Einfluß der Folientemperatur auf das Meßsignal	53
4.2.2. Einfluß der Streuvolumendicke auf das Meßsignal	56
4.3. Abhängigkeit des Meßsignals von der Laserleistungs- dichte, Einfluß der Sättigungsverbreiterung	57
4.3.1. Aufnahme der Meßkurven und ihre Beschreibung	58
4.3.2. Isotopieverschiebung und Hyperfeinstrukturauf- spaltung	60
4.3.3. Entzerrung und Nullpunktbestimmung	62
4.3.4. Auswertung und Diskussion	64
4.4. Messung der Geschwindigkeitsverteilung	67
4.4.1. Aufnahme der Meßkurven und ihre Entzerrung	67
4.4.2. Auswertung	68

	Seite
4.4.3. Diskussion der Ergebnisse und ihre Interpretation	70
4.5. Fehlerbetrachtungen	77
4.6. Nachweisgrenzen der Meßmethode	80
5. Messung der Geschwindigkeitsverteilung zerstäubter Zr-Atome	83
5.1. Experimenteller Aufbau	83
5.2. Experimentelle Bestimmung der Anregungswahrscheinlichkeit $F(S_m, \alpha, \theta)$	84
5.3. Die Geschwindigkeitsverteilungen Ar-, He- und D-zerstäubter Zr-Atome; Auswertung und Diskussion der Ergebnisse	86
5.4. Fehlerbetrachtungen	90
6. Anhang	92
6.1. Numerische Berechnung der F-Funktion	92
6.2. Analytische Näherungslösung des Integrals (6.7) für große θ und S_m	93
6.3. Näherungsweise Berechnung der Anregungswahrscheinlichkeit bei breitbandiger Anregung und driftender Laserlinie	95
Literaturverzeichnis	98

1. Einleitung

Energie- bzw. Geschwindigkeitsverteilungen von Atomstrahlen wurden bis zur Entwicklung spektroskopischer Nachweismethoden im wesentlichen mit Hilfe mechanischer Geschwindigkeitsselektoren aus Flugzeitmessungen bestimmt /1-5/. Eine weitere Methode ist die der Ionisation der Atome und anschließender energieaufgelöster Messung des Ionenstromes durch Anlegen eines elektrischen Gegenfeldes (z.B./6/). Die erstgenannte Methode erfordert einen komplizierten mechanischen Aufbau, die zweite Methode ist wegen geringer Ionisationsausbeuten zur Messung kleiner Dichten ungeeignet.

Die oben genannten Schwierigkeiten lassen sich umgehen, wenn man die Geschwindigkeitsverteilungen mit Hilfe von Farbstofflasern unter Ausnutzung ihrer besonderen Eigenschaften (geringe spektrale Breite, Abstimbarkeit über das Dopplerprofil) fluoreszenzspektroskopisch bestimmt. So konnte bereits durch Einsatz gepulster Farbstofflaser experimentell gezeigt werden /7-9/, daß die Atom-Fluoreszenzspektroskopie (AFS) die Möglichkeit bietet, die Dichte einer Anzahl von Metallen bis herab zu Werten von 10^5 cm^{-3} anzugeben; mit Dauerstrich-Farbstofflasern sind sogar nur 100 Atome pro cm^3 nachgewiesen worden /10/.

Geschwindigkeits- und damit Energieverteilungsmessungen mittels AFS beruhen darauf, daß das dopplerverbreiterte Absorptionsprofil der Atome durch Abstimmen des Farbstofflasers abgetastet wird: im Pulsbetrieb schrittweise /11/, im Dauerstrichbetrieb kontinuierlich /12/. Gemessen wird das Fluoreszenzlicht der angeregten Atome, dessen Intensitätsverteilung, in Abhängigkeit von der Frequenzverschiebung des Lasers aufgenommen, die Geschwindigkeitsverteilung implizit enthält. Der Vorteil von Dauerstrich-Farbstofflasern gegenüber gepulsten Lasern liegt einmal darin, das erstere eine wesentlich bessere Nachweisempfindlichkeit erlauben, da im Prinzip die Möglichkeit besteht, das Signal über beliebig lange Meßzeiten aufzuintegrieren. Ein weiterer Vorteil ist ihre bedeutend geringere spektrale Breite, sodaß auch geringe Dopplerverschiebungen aufgelöst werden können. Damit sind Messungen auch bei

kleinen Energien möglich./13/.

Mit gepulsten Lasern wird - anschaulich - eine „Momentaufnahme“ der Atome in einem bestimmten Anregungsvolumen gemacht; d.h. wegen der Kürze des Pulses (≤ 500 ns) kann im allgemeinen der Teilchenfluß durch das Beobachtungsvolumen, das mit dem Anregungsvolumen identisch ist, vernachlässigt werden. Die Anzahl der angeregten Atome hängt dann nur von der Atomdichte und bei hohen Laserleistungen schwach von der Energiedichte des Strahlungsfeldes ab. Bei der Anregung durch Dauerstrichlaser spielt dagegen der Fluß der Atome durch das Anregungsvolumen, das in diesem Fall nicht mit dem Beobachtungsvolumen übereinzustimmen braucht, eine wesentliche Rolle, da die Meßzeiten im Gegensatz zu den gepulsten Lasern sehr lang sind.

Bei der laserangeregten AFS entsteht im allgemeinen Fluoreszenzlicht nicht nur durch Übergänge in den Grundzustand (Zwei-Niveau-System), sondern auch durch Übergänge in andere, wegen der Auswahlregeln metastabile Zustände (Drei-Niveau-System). Die Atome in metastabilen Zuständen können nicht mehr angeregt werden. Ihre Anzahl nimmt mit wachsender Aufenthaltszeit im Laserstrahlungsfeld so lange zu, bis alle Atome aus dem Grundzustand in metastabile Zustände übergepumpt sind. Man muß daher bei Anwendung von Dauerstrichlasern im Falle des Drei-Niveau-Systems die Aufenthaltsdauer der Atome im Anregungsvolumen berücksichtigen. Durch Wahl einer passenden Anregungsgeometrie ist es möglich, die Anregungsdauer aus der mittels Dopplerverschiebung bestimmten Geschwindigkeit und der Länge des im Laserstrahlungsfeld zurückgelegten Weges zu ermitteln.

In der vorliegenden Arbeit werden zweierlei Dinge behandelt: Zum einen wird die Zeitabhängigkeit der Anregung von Atomen im Strahlungsfeld eines Dauerstrichlasers unter Berücksichtigung metastabiler Niveaus, d.h. für ein Drei-Niveau-System, untersucht. Zum anderen wird eine Meßanordnung beschrieben, die die Möglichkeit bietet, Geschwindigkeitsverteilungen zu bestimmen, wobei die in die Anregungswahrscheinlichkeit eingehenden Parameter (Energiedichte des Strahlungs-

feldes und Aufenthaltsdauer der Atome darin) wohl definiert sind.

Von speziellem Interesse für die Plasma-Wand-Wechselwirkung ist die Kenntnis der Transportgeschwindigkeiten von Verunreinigungsatomen, die während der Entladung von der Wand abgedampft, durch hochenergetische Teilchen zerstäubt oder anderweitig losgelöst werden. Es interessiert darum vor allem die Verteilung der Geschwindigkeitskomponente normal zur emittierenden Fläche. Dem wird in dieser Arbeit durch eine spezielle Wahl der Anregungsgeometrie Rechnung getragen.

Diese bisher noch nicht verwendete experimentelle Anordnung besteht darin, daß das Laserlicht senkrecht auf das Target gelenkt wird, von dem die Atome emittiert werden (s. Abb. 2.1 S.5). Das Beobachtungsvolumen befindet sich in einem variablen aber genau definierten Abstand vom Target. Hierdurch erreicht man, daß

1. die Atome von der Targetoberfläche bis zum Beobachtungsvolumen durch das anregende Laserlicht fliegen, der zeitliche Verlauf der Anregung somit durch eine Sprungfunktion beschrieben werden kann,
2. die Anregungsdauer durch den Abstand des Streuvolumens vom Target und die aus dem Dopplereffekt bestimmte Geschwindigkeitskomponente senkrecht zum Target gegeben ist,
3. wegen der Reflexion des Laserlichtes an der Targetoberfläche das Dopplerprofil der Absorptionslinie zweimal abgetastet wird, sodaß sich zumindest für einisotopige Atome eine einfache Festlegung des Nullpunktes der Geschwindigkeitsskala ergibt, eine dazu sonst notwendige gleichzeitige Messung bei parallel zum Target eingestrahlttem Laserlicht also entfällt.

Außerdem wurde die experimentelle Anordnung so gewählt, daß sie leicht zu justieren ist.

Als Test für die Anwendbarkeit der Methode wurde die Geschwindigkeitsverteilung der von einer ebenen Fläche abdampfenden Zirkon-Atome bei verschiedenen Abständen des Beobachtungsvolumens von der Fläche aufgenommen und mit der aus der kinetischen Theorie folgenden Verteilung verglichen, wobei

die spezielle Geometrie der Versuchsanordnung berücksichtigt wurde. Im Anschluß an diesen Test wurden zum ersten Male die Geschwindigkeitsverteilungen von Argon-, Helium- und Deuterium-zerstäubten Zirkon-Atomen gemessen.

Eine Beschränkung des Einsatzes von Dauerstrich-Farbstofflasern zu solchen Messungen liegt darin, daß diese Laser wegen ihrer im Vergleich zu gepulsten Farbstofflasern geringen Leistung, die selbst bei Ringlasern nur in der Größenordnung von 1 W liegt, bisher keine oder nur ungenügend reproduzierbare Frequenzverdopplung zulassen, wie sie zum Nachweis der meisten Metalle erforderlich ist, weil deren Resonanzlinien im nahen UV-Bereich liegen. Aus diesem Grund wurde bei allen Messungen nur Zirkon (Zr) als Targetmaterial verwendet, weil Zr zu den wenigen technisch wichtigen Metallen gehört, die im sichtbaren Wellenlängenbereich vom Grundzustand aus absorbieren können.

2. Theoretische Grundlagen

2.1. Geometrie der experimentellen Anordnung

Wie in der Einleitung erwähnt, liegt das Ziel der Arbeit darin, ein Verfahren zu entwickeln, das insbesondere die Bestimmung von Transportgeschwindigkeiten von abgedampften, zerstäubten oder anderweitig von einem Target losgelösten Atomen gestattet. Zu diesem Zweck muß die Geschwindigkeitsverteilung in Richtung normal zum Target ermittelt werden.

Dazu wurde folgende in der Abb. 2.1 schematisch dargestellte Versuchsanordnung erstmals verwendet: Die aus der in der (x,y) -Ebene liegenden Targetoberfläche austretenden Atome werden durch Laserlicht angeregt, das senkrecht auf das Target trifft. Die Blende vor der Folie dient dazu, eine wohldefinierte Geometrie für die Teilchenemission zu erreichen. Eine Anregung erfolgt nur dann, wenn die Laserfrequenz und die durch Dopplereffekt verschobene Resonanzfrequenz der Atome nahezu gleich sind. Für die Dopplerverschiebung ist die Geschwindigkeitskomponente v_z , d.h. normal zum Target, maßgebend. Die angeregten Atome fallen nach kurzer Zeit in den Ausgangszustand zurück, in vielen Fällen aber auch in andere metastabile Zustände und senden dabei Fluoreszenzlicht aus.

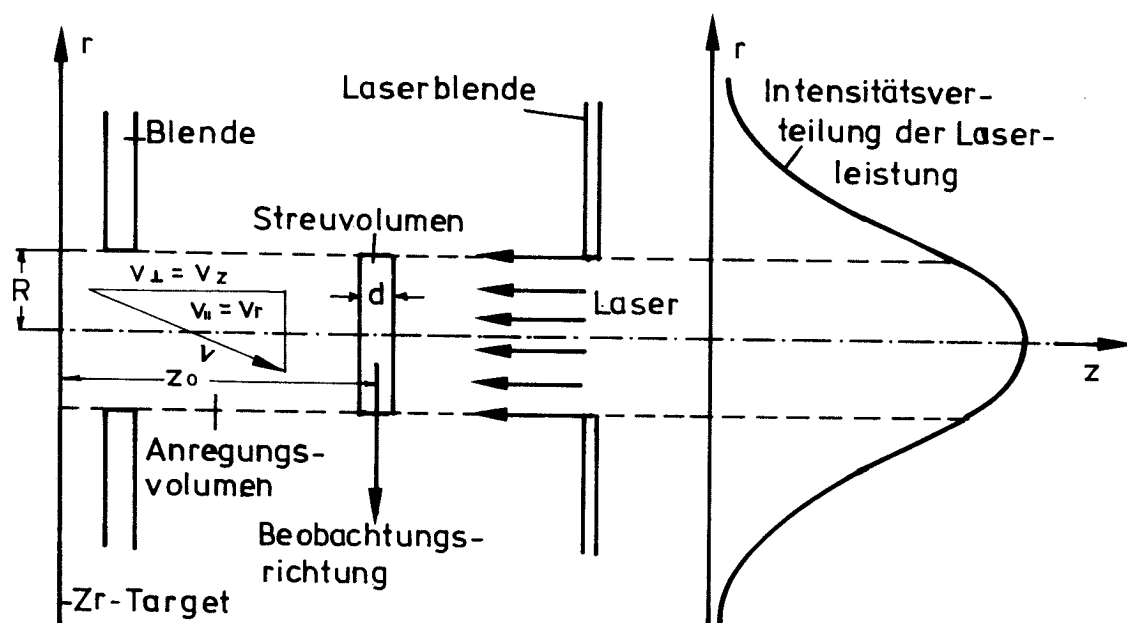


Abb. 2.1: Schematische Darstellung der Versuchsanordnung

In diesem Experiment wird das Fluoreszenzlicht beim Übergang in einen bestimmten metastabilen Zustand beobachtet, da auf diese Weise leicht eine Trennung des störenden Anregungslichtes vom Fluoreszenzlicht möglich ist. Eine spektrale Zerlegung der einzelnen Fluoreszenzlinien ist nicht notwendig.

Die Anregung erfolgt durch einen Einmoden-Dauerstrich-Farbstofflaser, dessen Intensitätsverteilung über den Strahlquerschnitt in Abb. 2.1 ebenfalls angedeutet ist. Dieser Laser (hier: Spectra Physics: Single Frequency Dye Laser System, Model 580 A) strahlt nur in einer einzigen transversalen und longitudinalen Mode (s. Kapitel 3.), deren Frequenzbreite zunächst als beliebig schmal angesehen wird. Um allen Atomen die gleiche Energiedichte u anbieten zu können, wird der Laserstrahl aufgeweitet und dann durch die Laserblende so abgeblendet, daß die Intensität am Rand des als Anregungsvolumen bezeichneten Zylinders um die z -Achse noch mindestens 80% des Maximalwertes beträgt.

Ein Meßvorgang besteht darin, daß man die dopplerverbreiterte Absorptionslinie mit der schmalen Laserlinie abtastet und die Intensität des Fluoreszenzlichtes registriert. Man erhält so eine frequenzabhängige Intensitätsverteilung; diese ist proportional zur Geschwindigkeitsverteilung im Streuvolumen im Abstand z_0 von der Targetoberfläche und zur Wahrscheinlichkeit, daß die Atome bei ihrer Ankunft im Streuvolumen im angeregten Zustand sind, d.h. Fluoreszenzlicht aussenden können. Diese Anregungswahrscheinlichkeit hängt entscheidend von der Aufenthaltszeit t der Atome im Strahlungsfeld des Lasers ab.

Betrachten wir dazu ein Atom der Geschwindigkeit v : seine Geschwindigkeitskomponente parallel zum Target sei $v_{\parallel} = v_r$, senkrecht dazu $v_{\perp} = v_z$. Bei seiner Ankunft im Streuvolumen war es für die Zeit $t = z_0/v_z$ der Laserstrahlung ausgesetzt. Bei Einstrahlung senkrecht zum Target ist v_z über die Dopplerverschiebung bekannt und bei Beobachtung senkrecht zur Einfallrichtung des Laserlichtes, d.h. parallel zum Target ist auch z_0 und damit t definiert. Kennt man außerdem noch die Energiedichte u des Lasers, die Lebensdauer τ des ange-

regten Zustandes und, da im allgemeinen mehrere Emissionsübergänge vom angeregten Niveau aus möglich sind, das Verzweigungsverhältnis in den Grundzustand, so läßt sich die gesuchte Anregungswahrscheinlichkeit berechnen, wie in den Abschnitten 2.3. bis 2.5. ausführlich besprochen werden wird.

2.2. Spektroskopische Grundlagen

Zur Ermittlung der Anregungswahrscheinlichkeit gehen wir von folgenden Annahmen aus:

Die Form der Absorptionslinie eines einzelnen Atoms läßt sich durch eine Dispersionsfunktion beschreiben /14/:

$$D_\nu = \frac{\gamma/4\pi^2}{(\nu-\nu_0)^2 + \gamma^2/16\pi^2} = \frac{4}{\gamma} \cdot \frac{1}{1 + \xi^2} \quad (2.1)$$

$$\text{mit } \xi = 4\pi(\nu-\nu_0)/\gamma \quad (2.1a)$$

$$\text{und } \int_0^\infty D_\nu d\nu = \frac{1}{\pi} \int_0^\infty (1+\xi^2)^{-1} d\xi = 1 \quad (2.1b)$$

Dabei ist $\gamma/2\pi$ die volle Halbwertsbreite der Linie. Bei geringen Dichten kann man Stoßverbreiterungen vernachlässigen, und γ wird gleich der Summe der Kehrwerte der Lebensdauern von Ausgangs- und Endzustand. Ist der Ausgangszustand der Grundzustand ($\tau_A = \infty$), so gilt:

$$\gamma = \tau^{-1} = \sum_k A_{2k}; \quad (2.1c)$$

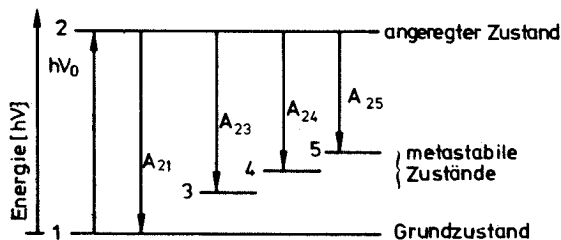


Abb. 2.2: Übergangswahrscheinlichkeiten in einem Atom

d.h. γ ist gleich der Summe aller Übergangswahrscheinlichkeiten A_{2k} aus dem angeregten Zustand 2 in den Grundzustand 1 und in die metastabilen Zustände 3, 4, 5, ... (Abb. 2.2). (A_{2k} wird nach Einstein (s.u.) Übergangswahrscheinlichkeit für spontane Emission genannt.)

ν_0 ist die Resonanzfrequenz des ruhenden Atoms. Wenn das Atom in z-Richtung eine Geschwindigkeitskomponente v_z besitzt, ist seine Resonanzfrequenz durch den Dopplereffekt um

$$\nu_D - \nu_0 = \nu_0(v_z/c) \quad (2.2)$$

verschoben. Bei dieser Verschiebung ändert sich die Linienform D_ν nicht (Abb. 2.3); in Gl.(2.1) ist ν_0 durch die dopplerverschobene Frequenz ν_D nach Gl.(2.2) zu ersetzen; c ist die Lichtgeschwindigkeit. Die Bewegung der Atome bewirkt also zunächst reine Dopplerverschiebungen des natürlichen Linienprofils. Erst wenn man sehr viele Atome mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten betrachtet - z.B. die Atome eines sich mit seiner Umgebung im thermischen Gleichgewicht befindlichen Gases - entsteht eine Dopplerverbreiterung (Abb. 2.4). Im Falle des thermischen Gleichgewichts kann man diese aus der Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung (z.B./14-16/)

$$f(v_z) = \sqrt{\beta/\pi} \cdot \exp\{-\beta \cdot v_z^2\} \text{ mit } \beta = m/(2kT)$$

berechnen, indem man die Geschwindigkeitskomponente v_z durch die entsprechende Frequenzverschiebung nach Gl.(2.2) ersetzt und die sich dann ergebende Frequenzverteilung mit der Dispersionsfunktion D_ν der natürlichen Breite faltet. (m ist die Masse des Atoms, k die Boltzmannsche Konstante und T die Temperatur in Kelvin.) Auf die dann entstehenden Voigt-Funktionen braucht aber nicht eingegangen zu werden, da das Fluoreszenzlicht über einen so großen spektralen Bereich beobachtet wird, daß seine Dopplerverbreiterung voll überdeckt wird.

Ist die Lebensdauer des angeregten Zustandes bekannt, - z. B. aus dem Abklingen des Fluoreszenzlichtes experimentell bestimmt - und sind Stöße zu vernachlässigen, dann wird die

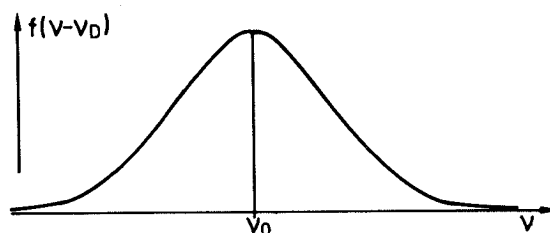
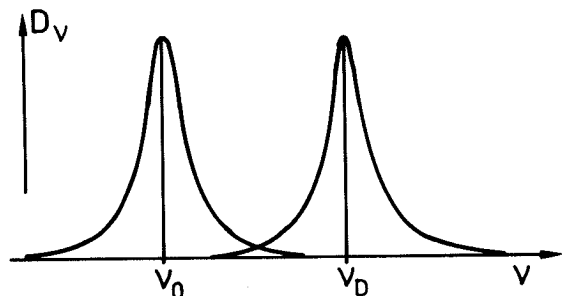


Abb. 2.3: Dopplerverschiebung Abb. 2.4: Dopplerverbreiterung

Form der Absorptionslinie durch die Dispersionsfunktion D_ν mit $\gamma = \tau^{-1}$ gegeben. Wir nehmen an, daß für das Einzelatom die Linienbreite $\gamma/2\pi$ auch in einem starken Strahlungsfeld des zur Anregung der Atome benutzten Lasers keine Änderung erfährt. Diese Annahme wird später durch die Übereinstimmung der theoretisch berechneten Absorptionsprofile mit experimentellen Ergebnissen /17/ gerechtfertigt.

Nach Einstein /18/ kann der Absorptionsprozess folgendermaßen beschrieben werden: Es liege ein isotropes Strahlungskontinuum vor; d.h. die spektrale Energiedichte u_ν , nämlich die Energiedichte pro Frequenzintervall $d\nu$, ist in der Umgebung der Absorptionslinie konstant. Die Wahrscheinlichkeit, daß ein Atom vom Zustand 1 in den Zustand 2 angeregt wird, ist proportional zu u_ν . Mit Hilfe des Einstein-Koeffizienten B_{12} für Absorption können wir diese Wahrscheinlichkeit durch

$$(dw/dt)_{12} = B_{12}u_\nu \quad (2.3a)$$

ausdrücken. Dabei ist zu beachten, daß keinerlei Annahme über das Profil der Absorptionslinie gemacht werden muß.

Läßt sich das Linienprofil des absorbierenden Atoms durch eine Dispersionsfunktion D_ν nach Gl.(2.1) beschreiben, so muß die Wahrscheinlichkeit für Absorption folgende spektrale Abhängigkeit besitzen:

$$\frac{d}{d\nu}(dw/dt)_{12} = B_{12} \cdot D_\nu u_\nu; \quad (2.3b)$$

durch Integration über ν folgt wegen der Normierung von D_ν nach Gl.(2.1b) und wegen $u_\nu = \text{konst}$ über der Linie wieder die Gesamtwahrscheinlichkeit (2.3a):

$$(dw/dt)_{12} = \int_0^\infty \frac{d}{d\nu}(dw/dt)_{12} d\nu = \int_0^\infty B_{12} D_\nu u_\nu d\nu = B_{12} u_\nu.$$

Statt eines Strahlungskontinuums dient in unserem Fall ein praktisch monochromatisch strahlender Laser als Lichtquelle; seine geringe spektrale Breite kann wie eine δ -Distribution behandelt werden, sodaß die von ihm erzeugte Energiedichte als $u_\nu = u \cdot \delta(\nu - \nu_L)$ geschrieben werden kann, wobei ν_L die Laserfrequenz ist. Die Wahrscheinlichkeit für Absorption wird damit:

$$(dw/dt)_{12} = \int_0^\infty B_{12} D_\nu u \cdot \delta(\nu - \nu_L) d\nu = B_{12} \cdot u \cdot D_\nu(\nu = \nu_L). \quad (2.3c)$$

Wegen des Dispersionsprofils der Resonanzlinie ist der Laser in der Lage, sowohl Atome, deren Absorptionslinienmitte ν_D mit der Laserlinie ν_L übereinstimmt, als auch solche, bei denen die Laserlinie in einen anderen Bereich von D_ν fällt, anzuregen, wie in Abb. 2.5 dargestellt. Anschaulich bedeutet Gl.(2.3c) folgendes: Aus dem dopplerverbreiterten Geschwindigkeitsspektrum können von der schmalen Laserlinie alle Atome angeregt werden, die mit ihren Dispersionsflügeln D_ν in den Bereich der Laserlinie hineinragen (Abb. 2.6).

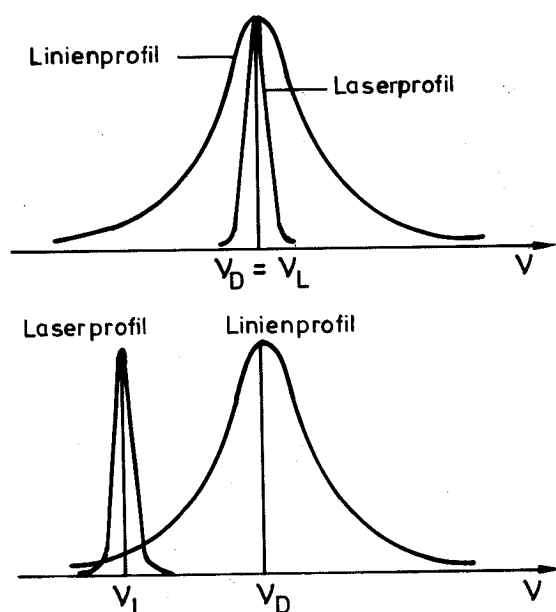


Abb. 2.5: Anregung der Atome durch einen fast monochromatischen Laser

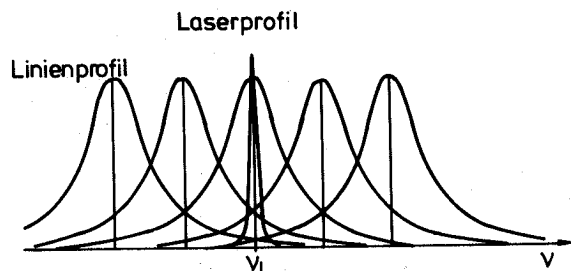


Abb. 2.6: Die Dispersionsprofile ragen mit ihren Flügeln in den Bereich der schmalen Laserlinie

Neben dem Koeffizienten B_{12} für Absorption ist bei Anwesenheit eines Strahlungsfeldes auch der Koeffizient B_{21} für den Umkehrprozess, die induzierte Emission [14, 18], zu berücksichtigen, für den die Beziehungen (2.3) in analoger Weise gelten. Nach Einstein [18] sind die drei Koeffizienten für spontane Emission, A_{21} , erzwungene Emission, B_{21} , und Absorption, B_{12} , voneinander abhängig:

$$gA_{21} = g u_\nu^0 B_{21} = u_\nu^0 B_{12} \quad (2.4)$$

$$\text{mit } u_\nu^0 = 8\pi h/\lambda^3 \quad (2.4a)$$

$$\text{und } g = g_2/g_1. \quad (2.4b)$$

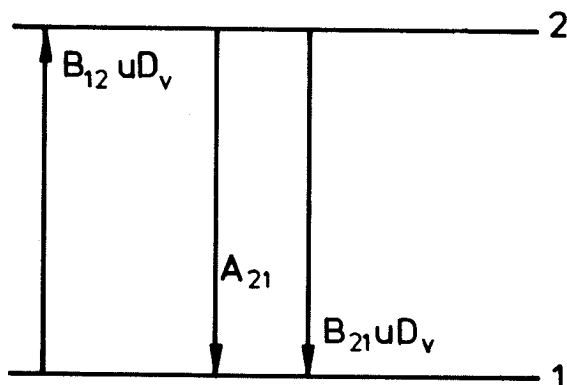
λ ist die Wellenlänge des betrachteten Überganges, d.h. praktisch die Laserwellenlänge, h die Plancksche Konstante und g_1, g_2 die statistischen Gewichte vom Grundzustand 1 und vom angeregten Zustand 2.

Desweiteren nehmen wir näherungsweise an, daß die Geschwindigkeiten der Atome im

Bereich des Dispersionsprofils gleichverteilt sind. Daß diese Näherung gerechtfertigt ist, zeigt folgende Abschätzung: Die Lebensdauern von Zr sind typisch $\tau > 100$ ns; d.h. die volle Halbwertsbreite $\gamma/2\pi$ ist kleiner als 1,6 MHz; $\gamma/2\pi$ ist also um rund drei Größenordnungen kleiner als die volle Halbwertsbreite der Dopplerverbreiterung $\Delta\nu_D$, die bei 2100 K ca. 1,7 GHz beträgt.

2.3. Anregung im Zwei-Niveau-System

Wir wollen zunächst die Anregungswahrscheinlichkeit eines Atoms berechnen, d.h. die Wahrscheinlichkeit w_2 dafür, daß



sich das Atom im angeregten Zustand befindet. Dazu betrachten wir als erstes der Einfachheit halber die Anregung in einem Zwei-Niveau-System (Abb. 2.7), in dem nur Übergänge zwischen dem Grund- und dem angeregten Zustand erlaubt sind.

Abb. 2.7: Strahlungsübergänge im Zwei-Niveau-System

Unter Berücksichtigung der in Abb. 2.7 mit den zugehöri-

gen Übergangswahrscheinlichkeiten dargestellten Prozesse läßt sich für die Besetzung des angeregten Niveaus die folgende Ratengleichung aufstellen:

$$\begin{aligned}\dot{w}_2 &= -\dot{w}_1 \\ &= w_1 B_{12} D_v u - w_2 (B_{21} D_v u + A_{21}).\end{aligned}\quad (2.5)$$

Dabei bedeuten die w_i ($i=1,2$) die Wahrscheinlichkeiten des Atoms, in einem der beiden Zustände 1 (Grundzustand) oder 2 (angeregter Zustand) zu sein, A_{21} , B_{21} und B_{12} die Einsteinschen Übergangswahrscheinlichkeiten /18/, D_v das Dispersionsprofil der Fluoreszenzlinie und u die Laserenergiedichte. Der Punkt über den w_i bedeutet die zeitliche Ableitung d/dt .

Da sich das Atom nur in den beiden Zuständen befinden kann, gilt $w_1 + w_2 = 1$. Zusammen mit Gl.(2.4) erhält man daher:

$$\dot{w}_2 = (1-w_2) g A_{21} D_v u / u_v^0 - w_2 A_{21} (D_v u / u_v^0 + 1).$$

Mit den Abkürzungen

$$\begin{aligned}S(\xi) &= D_v u / u_v^0 = (4u / u_v^0 \gamma) \frac{1}{1 + \xi^2} \\ &= S_m \frac{1}{1 + \xi^2}\end{aligned}\quad (2.6a)$$

und ξ nach Gl.(2.1a) erhält man daraus:

$$w_2 = g A_{21} S(\xi) - w_2 A_{21} [(g+1)S(\xi) + 1].\quad (2.7)$$

Den Maximalwert von $S(\xi)$, nämlich $S(\xi=0) = S_m = 4u / u_v^0 \gamma$ kann man als Sättigungsparameter bezeichnen. Im stoßfreien Fall gilt Gl.(2.1c), $\gamma = \tau^{-1}$, und es gilt

$$S_m = 8,01 \cdot 10^{-9} \cdot \varphi_L \cdot \lambda^3 \tau, \quad (2.6b)$$

wobei die Leistungsdichte des Lasers, $\varphi_L = u \cdot c$, in mW/cm^2 , die Wellenlänge λ in nm und die Lebensdauer τ in μs einzusetzen sind.

Da die Energiedichte u als zeitlich konstant angesehen werden kann, ist Gl.(2.7) eine inhomogene Differentialgleichung 1. Ordnung mit konstanten Koeffizienten. Die dazugehörige homogene Differentialgleichung hat die Lösung:

$$w_{2,H} = C \cdot \exp\{-A_{21} [(g+1)S(\xi) + 1] t\}.\quad (2.8a)$$

Eine partikuläre Lösung der inhomogenen Differentialgleichung

ist

$$w_{2,I} = \frac{gS(\xi)}{(g+1)S(\xi) + 1}. \quad (2.8b)$$

Damit folgt für die allgemeine Lösung von Gl.(2.7):

$$w_2 = C \cdot \exp \left\{ -A_{21} \cdot [(g+1)S(\xi) + 1] t \right\} + \frac{gS(\xi)}{(g+1)S(\xi) + 1}.$$

Für den Wert der Konstanten C erhält man mit der Anfangsbedingung $w_2(t=0) = 0$:

$$C = -\frac{gS(\xi)}{(g+1)S(\xi) + 1},$$

und die spezielle Lösung von Gl.(2.7) lautet:

$$w_2 = \frac{gS(\xi)}{(g+1)S(\xi) + 1} \left[1 - \exp \left\{ -\theta [(g+1)S(\xi) + 1] \right\} \right], \quad (2.9)$$

wobei

$$\theta = t/\tau = t \cdot \gamma = t \cdot A_{21} \quad (2.10)$$

eine in Lebensdauern normierte Zeit ist.

Gl.(2.9) stellt die Abhängigkeit der Anregungswahrscheinlichkeit von der normierten Frequenz ξ mit S_m und θ als Parametern dar. Sie besteht aus einem zeitabhängigen Term, der den Einschwingvorgang beschreibt, und einem den Gleichgewichtszustand darstellenden Faktor. In Abb. 2.8 ist w_2 nach Gl.(2.9) für verschiedene Werte des Sättigungsparameters S_m und der Zeit θ als Funktion der Frequenzdifferenz ξ aufgetragen.

Der Einschwingvorgang ist innerhalb weniger Lebensdauern, d.h. $\theta > 3$, abgeschlossen. Dies bedeutet, daß im Zwei-Niveau-System die Anregungswahrscheinlichkeit w_2 sehr schnell einem Gleichgewichtszustand zustrebt. In der Nähe der Absorptionslinienmitte kann der Einschwingvorgang durch Vergrößern von S_m beliebig kurz gemacht werden. Für $\xi = 0$ wird der Gleichgewichtszustand für $\theta \geq 3/[1+(g+1)S_m]$ erreicht. Für große Laserleistung, d.h. $S_m \gg 1$, hängt w_2 dort nur noch von den statistischen Gewichten g ab; es gilt dann: $w_2 \approx g/(g+1)$ für $\xi = 0$.

Nach Erreichen des Gleichgewichtszustandes wird die Frequenzabhängigkeit von w_2 wieder durch ein Dispersionsprofil beschrieben:

$$w_2(\theta=\infty) = \frac{gS(\xi)}{(g+1)S(\xi) + 1} = \frac{g \cdot S_m}{(g+1)S_m + 1 + \xi^2}$$

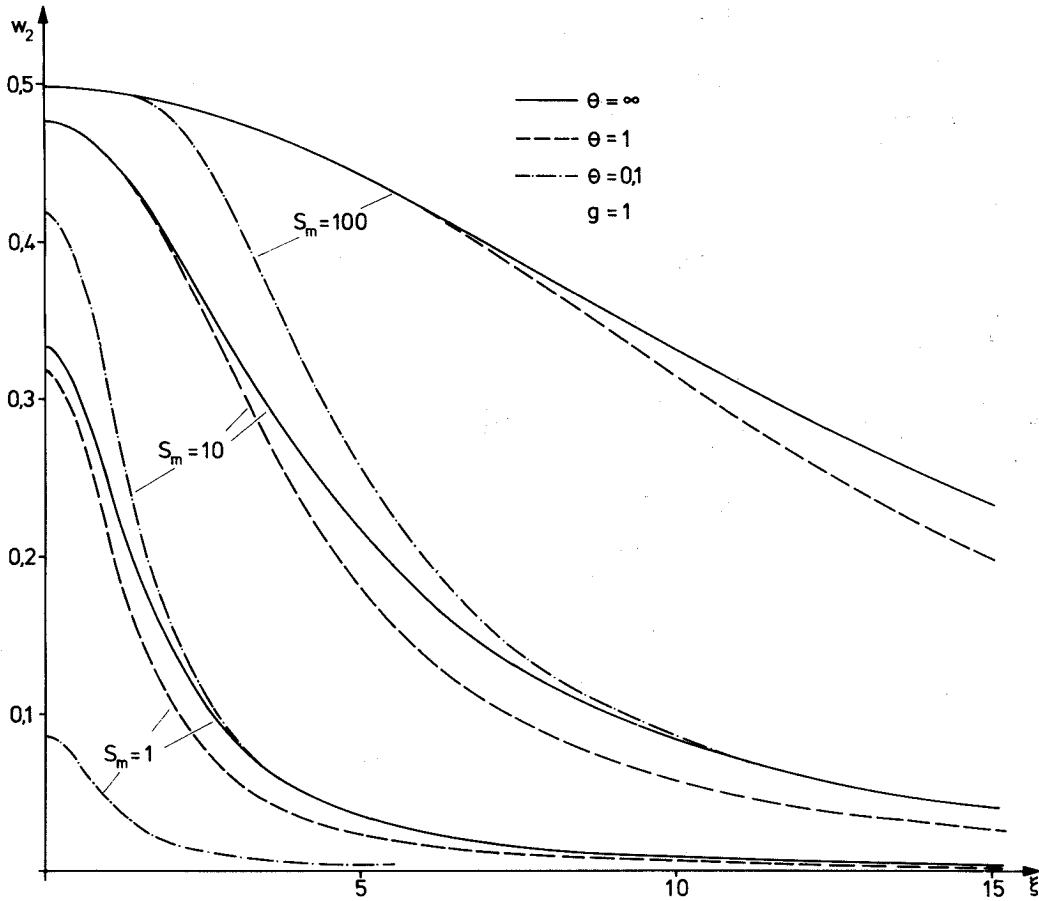


Abb. 2.8: Frequenzabhängigkeit der Anregungswahrscheinlichkeit w_2 für ein Zwei-Niveau-System nach Gl.(2.9) mit $g = 1$, und für verschiedene Zeiten θ und Pumpleistungen des Lasers, ausgedrückt in S_m

$$= \frac{g \cdot S_m}{(g+1)S_m + 1} \cdot \frac{1}{1 + (\xi/\xi_{1/2})^2} \quad (2.11a)$$

mit der vollen Halbwertsbreite

$$2\xi_{1/2} = 2 \cdot \sqrt{1 + (g+1)S_m} \quad (2.11b)$$

bzw.

$$= (\gamma/2\pi) \cdot \sqrt{1 + (g+1)S_m}$$

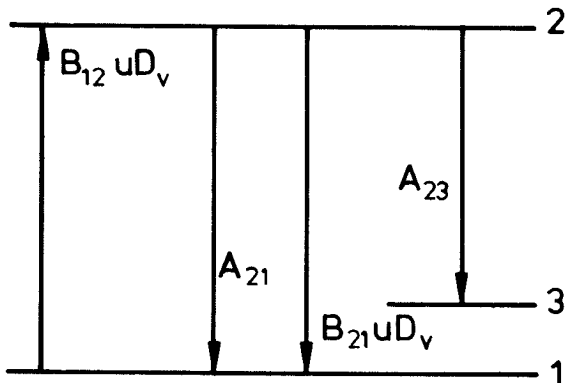
Die Gln.(2.11) besagen, daß das Dispersionsprofil mit wachsender Laserleistungsdichte, also wachsendem S_m immer breiter wird (Abb. 2.8), und zwar für $S_m \gg 1$ mit der Wurzel von S_m . Diesen Effekt bezeichnet man als Sättigungs- oder Leistungsverbreiterung (power broadening).

Die durch die Gln.(2.11) beschriebene Abhängigkeit der Anregungswahrscheinlichkeit w_2 , und damit auch des Fluoreszenzlichtes, von der Frequenz und der Leistungsdichte des Strah-

lungsfeldes ist für ein Zwei-Niveau-System auch durch quantenelektrodynamische Rechnung (sog. Rotating Wave Approximation) gefunden /19/ und experimentell bestätigt worden /17/. Damit ist gezeigt, daß sowohl die streng quantenmechanische Behandlung des Problems wie auch die anschauliche Rechnung mit Hilfe der Ratengleichungen zu ein und demselben Ergebnis führen.

2.4. Anregung im Drei-Niveau-System

Besteht für ein angeregtes Atom die Möglichkeit, außer in den Grundzustand in - im allgemeinen mehrere - metastabile Zustände zu zerfallen, so muß man zusätzlich zum Effekt der



Sättigungsverbreiterung das Überpumpen in metastabile Zustände berücksichtigen. Da man die Übergänge in die metastabilen Zustände in einen einzigen Übergang zusammenfassen kann, genügt es, ein Drei-Niveau-System zu betrachten.

Zur mathematischen Behandlung der Anregungswahrscheinlichkeit im Drei-Niveau-System gehen wir analog zum Zwei-Niveau-System vor,

Abb. 2.9: Strahlungsübergänge im Drei-Niveau-System

indem wir mit Hilfe der Einsteinschen Übergangswahrscheinlichkeiten unter Berücksichtigung aller in Abb. 2.9 dargestellten Strahlungsprozesse folgendes Raten-gleichungssystem aufstellen:

$$\begin{aligned}\dot{w}_2 &= -(\dot{w}_1 + \dot{w}_3) \\ &= w_1 B_{12} D_\nu u - w_2 (B_{21} D_\nu u + A_{21} + A_{23})\end{aligned}\quad (2.12a)$$

$$\dot{w}_3 = w_2 A_{23} \quad (2.12b)$$

Dabei steht A_{23} stellvertretend für die Summe aller Übergangswahrscheinlichkeiten in metastabile Zustände. Die w_i ($i=1,2,3$) bedeuten die Wahrscheinlichkeiten für das Atom, in einem der drei Zustände 1 (Grundzustand), 2 (angeregter Zustand) oder 3 (metastabiler Zustand) zu sein.

Wir interessieren uns zunächst wieder für die Anregungswahrscheinlichkeit w_2 . Da sich das Atom nur in einem der drei Zustände befinden kann, gilt $w_1 + w_2 + w_3 = 1$. Zusammen mit Gl.(2.4) erhält man aus Gl.(2.12a) mit der Abkürzung (2.6a):

$$\begin{aligned}\dot{w}_2 &= (1-w_2-w_3)gA_{21}S(\xi) - w_2(A_{21}gS(\xi) + A_{21} + A_{23}) \\ &= gA_{21}S(\xi) - w_2((g+1)A_{21}S(\xi) + A_{21} + A_{23}) \\ &\quad - w_3gA_{23}S(\xi).\end{aligned}\quad (2.13)$$

Für zeitlich konstantes $S(\xi)$ liefert nochmalige Differentiation nach der Zeit und Einsetzen von Gl.(2.12b) eine homogene Differentialgleichung 2. Ordnung:

$$\ddot{w}_2 + \dot{w}_2((g+1)A_{21}S(\xi) + A_{21} + A_{23}) + w_2gA_{21}A_{23}S(\xi) = 0,$$

die sich mit den Abkürzungen

$$a = ((g+1)\alpha S(\xi) + 1)/\tau \quad (2.14a)$$

$$b = g\alpha(1-\alpha)S(\xi)/\tau^2 \quad (2.14b)$$

$$\alpha = A_{21}\tau \quad (2.14c)$$

$$\tau^{-1} = A_{21} + A_{23} \quad (2.1c)$$

in folgender vereinfachter Form schreiben läßt:

$$\ddot{w}_2 + a\dot{w}_2 + b\cdot w_2 = 0. \quad (2.13a)$$

Den durch Gl.(2.14c) definierten Parameter α nennt man Verzweigungsverhältnis in den Grundzustand, eine Größe, die zwischen Null und Eins variieren kann; d.h. für $A_{23} \rightarrow 0$ geht $\alpha \rightarrow 1$ (Zwei-Niveau-System). Mit dem üblichen Exponentialansatz

$$w_2 = e^{\lambda t}$$

erhält man die charakteristische Gleichung

$$\lambda^2 + \lambda a + b = 0,$$

$$\text{also } \lambda_{1,2} = -\frac{a}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{a^2 - 4b},$$

und wir erhalten für die allgemeine Lösung:

$$w_2 = C_1 \cdot \exp(\lambda_1 t) + C_2 \cdot \exp(\lambda_2 t).$$

Mit der Randbedingung $w_2(t=0) = 0$ folgt: $C_1 = -C_2 = C$, also:

$$\begin{aligned} w_2 &= C [\exp(\lambda_1 t) - \exp(\lambda_2 t)] \\ &= +C \cdot \exp(\lambda_1 t) [1 - \exp((\lambda_2 - \lambda_1)t)]. \end{aligned} \quad (2.15a)$$

Die zweite Randbedingung des Systems, $w_3(t=0) = 0$, liefert zusammen mit der ersten nach Gl.(2.13) für $t = 0$ die Beziehung: $w_2(t=0) = gA_{21}S(\xi)$. daraus folgt für C :

$$C = gA_{21}S(\xi)/(\lambda_1 - \lambda_2). \quad (2.15b)$$

Von Interesse ist desweiteren auch die Wahrscheinlichkeit w_3 dafür, daß ein Atom in einen metastabilen Zustand übergepumpt ist. Aus Gl.(2.12b) folgt:

$$w_3 = A_{23} \cdot \int_0^t w_2 dt = A_{23} C \cdot \int_0^t [\exp(\lambda_1 t) - \exp(\lambda_2 t)] dt.$$

Setzen wir in diese Gleichung w_2 nach Gl.(2.15a) ein und beachten wir, daß sich $A_{23}C$ mit den Gln.(2.15b), (2.14b,c) und (2.1c) auf folgende Weise darstellen läßt:

$$\begin{aligned} A_{23}C &= gA_{21}A_{23}S(\xi)/(\lambda_1 - \lambda_2) = b/(\lambda_1 - \lambda_2) \\ &= \lambda_1 \lambda_2 / (\lambda_1 - \lambda_2), \end{aligned}$$

so erhalten wir:

$$\begin{aligned} w_3 &= 1 + \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2} [\lambda_2 \cdot \exp(\lambda_1 t) - \lambda_1 \exp(\lambda_2 t)] \\ &= 1 - \exp(\lambda_1 t) [1 + \lambda_1 / (\lambda_2 - \lambda_1) [1 - \exp((\lambda_2 - \lambda_1)t)]] \end{aligned} \quad (2.15c)$$

Schließlich liefert Einsetzen von λ_1 und λ_2 in die Gln.(2.15) für die Wahrscheinlichkeiten w_2 und w_3 :

$$w_2 = \frac{g \alpha S(\xi)}{B(\xi)} \exp\left\{-\frac{\theta}{2}(A(\xi) - B(\xi))\right\} [1 - \exp\{-\theta \cdot B(\xi)\}] \quad (2.16a)$$

$$\begin{aligned} w_3 &= 1 - \exp\left\{-\frac{\theta}{2}(A(\xi) - B(\xi))\right\} \left[1 + \frac{A(\xi) - B(\xi)}{2B(\xi)} (1 - \exp\{-\theta \cdot B(\xi)\})\right] \end{aligned} \quad (2.16b)$$

mit den Abkürzungen:

$$A(\xi) = -(\lambda_1 + \lambda_2)\tau = a\tau = (g+1)\alpha S(\xi) + 1 \quad (2.17a)$$

$$B(\xi) = (\lambda_1 - \lambda_2)\tau = \sqrt{a^2 - 4b} \cdot \tau$$

$$= \sqrt{A(\xi)^2 - 4g\alpha(1-\alpha)S(\xi)}. \quad (2.17b)$$

Der Exponentialausdruck in der eckigen Klammer in den Gln. (2.16) beschreibt jeweils den Einschwingvorgang, der auch hier wie beim Zwei-Niveau-System für $\theta > 3$ wegen $B(\xi) \geq 1$ abgeschlossen ist. Die erste Exponentialfunktion ist für das Drei-Niveau-System charakteristisch und bewirkt einen exponentiellen Abfall von w_2 mit der Zeit. Für große Zeiten θ geht die Wahrscheinlichkeit w_2 für den angeregten Zustand gegen Null, während die Wahrscheinlichkeit w_3 für einen metastabilen Zustand gegen Eins geht. Es stellt sich also kein Gleichgewichtszustand zwischen Grund- und angeregtem Niveau ein, wie er für das Zwei-Niveau-System typisch ist.

In den Abbn. 2.10 und 2.11 sind die Wahrscheinlichkeiten w_2 bzw. w_3 als Funktion der Frequenz ξ für einen festen Parameterwert $S_m = 100$ und für verschiedene Zeiten θ dargestellt. Für die Größen α und g wurden die für den im Experiment benutzten Übergang gültigen Werte $\alpha = 0,15$ und $g = 1,4$ eingesetzt.

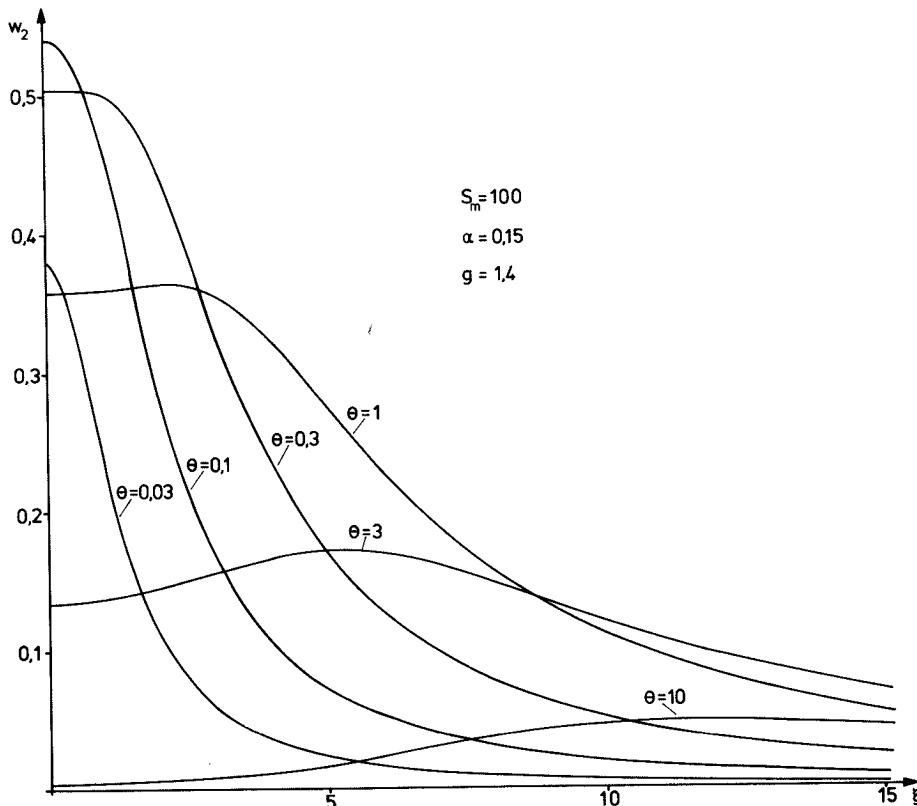


Abb. 2.10: Spektrale Anregungswahrscheinlichkeit w_2 als Funktion der Frequenz ξ für verschiedene Zeiten θ ; der Sättigungsparameter S_m ist 100, $\alpha = 0,15$, $g = 1,4$.

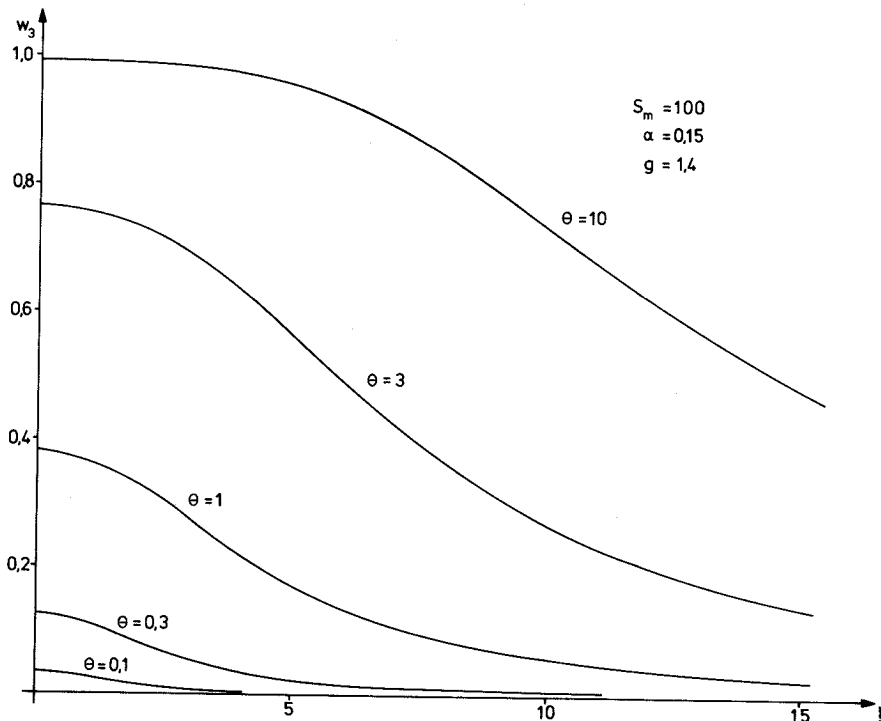
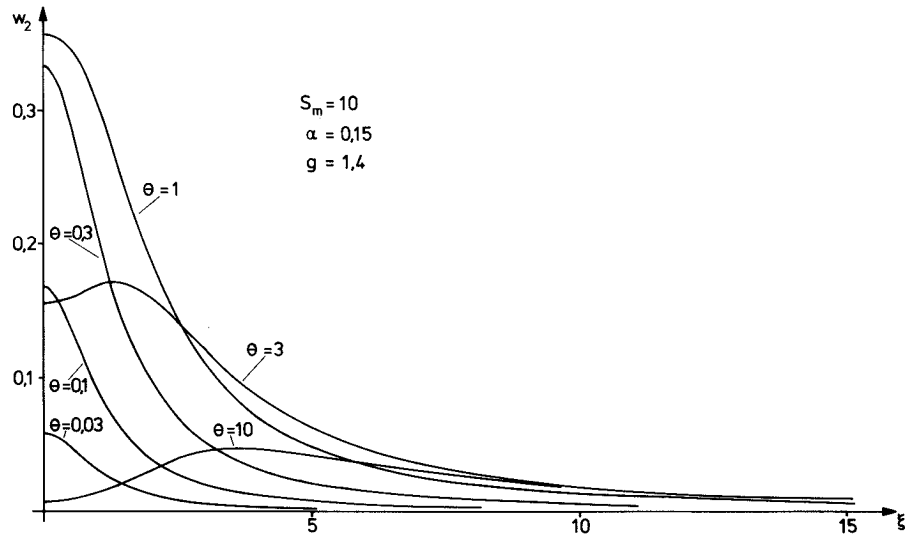
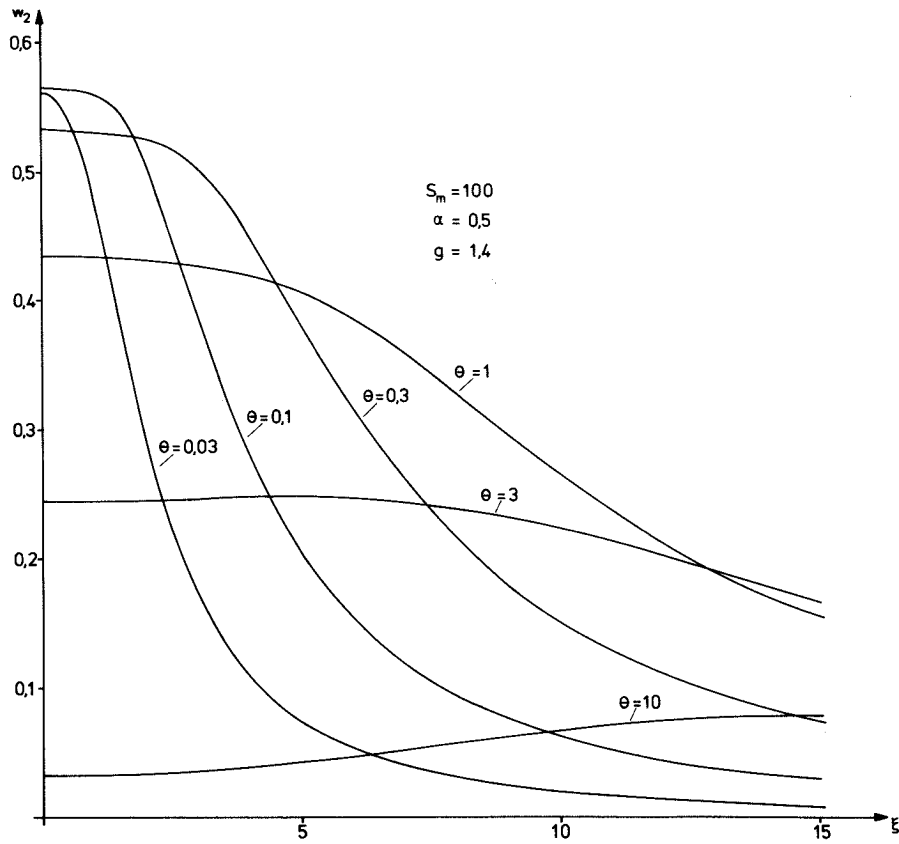


Abb. 2.11: Frequenzabhängigkeit der Wahrscheinlichkeit w_3 , im metastabilen Zustand zu sein; Parameter wie in Abb. 2.10.

Zur anschaulichen Beschreibung betrachten wir nun sehr viele Atome mit genau gleicher Resonanzfrequenz. Wir beschreiben zunächst den Fall, daß die Laserlinie mit der Absorptionslinienmitte übereinstimmt. Für Zeiten $\Theta < 3/(1+(g+1)\alpha S_m) \approx 0,08$ ist der Einschwingvorgang noch nicht abgeschlossen, d.h. w_2 und damit die Zahl der angeregten Atome haben ihren Maximalwert noch nicht erreicht; es finden sich praktisch noch keine Atome in den metastabilen Zuständen, d.h. $w_3 \approx 0$. Erst für $\Theta \geq 0,1$ ist der Einschwingvorgang in der Linienmitte abgeschlossen: w_2 erreicht seinen Maximalwert, während w_3 immer noch sehr klein ist. Mit wachsendem Θ nimmt die Anzahl der angeregten Atome wegen des Überpumpens in metastabile Zustände ab mit entsprechender Zunahme der Atome in den metastabilen Zuständen.

Liegt die Laserlinie auf den Flanken der Absorptionslinie (s. Abb. 2.5, S.10), so nimmt zufolge Gl.(2.3c) die Wahrscheinlichkeit für Absorption ab. Das bedeutet, daß wesentlich mehr Zeit erforderlich ist, um die Atome in metastabile Zustände überzupumpen. (Z.B. wird für $\xi = 10$ der Maximalwert

Abb. 2.12: wie Abb. 2.10, jedoch für $S_m=10$ Abb. 2.13: wie Abb. 2.10, jedoch für $\alpha=0,5$

erst für $\theta \approx 3$ erreicht.)

In Abb. 2.12 ist gegenüber Abb. 2.10 der Parameter $S_m = 10$ gewählt. Man sieht, daß der Einschwingvorgang wegen der geringeren Pumpleistung nun länger dauert, wie es auch schon beim Zwei-Niveau-System der Fall war. Die Anregungswahrscheinlichkeit w_2 nimmt in der Linienmitte erst für $\theta \geq 3/(1+(g+1)\alpha S_m) = 0,65$ ab.

Als letztes sei noch die Abhängigkeit von w_2 vom Parameter α , dem Verzweigungsverhältnis in den Grundzustand, betrachtet; in Abb. 2.13 ist deswegen w_2 für $\alpha = 0,5$ als Funktion von ξ aufgetragen; die anderen Parameter entsprechen denen der Abb. 2.10. Für größeres α wird die Anregungswahrscheinlichkeit w_2 größer, d.h. der für die Anregung verantwortliche Sättigungsparameter ist - effektiv - die Größe $\alpha \cdot S_m$. Trotzdem wird die Wahrscheinlichkeit w_3 wegen $A_{23} = (1-\alpha)/\tau$ (s. Gl.(2.14c) und (2.1c)) kleiner als für $\alpha = 0,15$.

2.5. Anregung geschwindigkeitsverteilter Atome

Im folgenden betrachten wir die Gesamtdichte n der von dem Target emittierten Atome (s. Abb. 2.1, S.5), deren Geschwindigkeiten in z -Richtung einer Verteilungsfunktion dn/dv_z gehorchen mögen. Die Frage ist nun: Wie groß ist die Dichte n_2 aller Atome, die vom Laser mit der Frequenz ν_L angeregt werden?

Statt die Atome nach ihren Geschwindigkeiten v_z zu sortieren, ordnen wir sie nach der für sie wirksamen Pumpfrequenz ν , nämlich der dopplerverschobenen Laserfrequenz:

$$\nu = \nu_L (1 + v_z/c).$$

Wir betrachten nun Atome, deren Pumpfrequenz zwischen ν und $\nu + d\nu$ liegen möge. Ihre Dichte in allen drei Niveaus zusammengekommen ist:

$$dn = \frac{dn}{dv_z} \frac{dv_z}{dv} dv = \frac{dn}{dv_z} \frac{c}{v_L} dv \quad (2.18)$$

Für dv klein gegenüber der natürlichen Linienbreite $\gamma/2\pi$ hat $\xi = 4\pi(\nu - \nu_0)/\gamma$ und damit auch die im vorigen Abschnitt berechnete Anregungswahrscheinlichkeit w_2 für alle betrachteten Atome den gleichen Wert $w_2(\xi)$ und wir erhalten folgenden Beitrag zur Dichte n_2 der angeregten Atome:

$$dn_2 = w_2(\xi) dn.$$

Im Prinzip können Atome mit beliebigen Geschwindigkeiten von der Laserlinie angeregt werden, weil die Dispersionsprofilflügel wegen ihres langsamen Abfalls immer in den Bereich der Laserlinie hineinragen (vgl. Abb. 2.6, S.10). Wir haben daher über alle Atome, d.h. über alle wirksamen Pumpfrequenzen ν zu integrieren, um die Dichte n_2 aller angeregten Atome zu ermitteln:

$$n_2 = \int w_2 dn = \frac{c}{v_L} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dn}{dv_z} w_2 dv. \quad (2.19a)$$

Wir nehmen nun berechtigterweise (s. Abschnitt 2.2.) an, daß sich dn/dv_z in dem Frequenzbereich und damit auch Geschwindigkeitsbereich, in dem w_2 nicht vernachlässigbar klein ist, nicht ändert. Dann läßt sich dn/dv_z vor das Integral ziehen, und wir erhalten:

$$n_2 = \frac{c}{v_L} \frac{dn}{dv_z} \int_{-\infty}^{\infty} w_2 dv. \quad (2.19b)$$

Das Integral über w_2 läßt sich, von Spezialfällen abgesehen, nur numerisch auswerten. Ein entsprechendes Verfahren ist im Anhang 6.1. beschrieben. Wir erhalten wegen $dv = (\gamma/4\pi)d\xi$ und der Symmetrie von $S(\xi)$ - und damit von w_2 - aus Gl.(2.19b):

$$n_2 = \frac{c}{v_L} \frac{dn}{dv_z} \frac{\gamma}{2\pi} \int_0^{\infty} w_2(\xi) d\xi. \quad (2.19c)$$

Wir führen für das dimensionslose Integral die Bezeichnung „Anregungswahrscheinlichkeit“ ein:

$$F(S_m, \alpha, \theta) = \int_0^{\infty} w_2(\xi) d\xi \quad (2.20)$$

und erhalten mit $c/v_L = \lambda_L$, der Wellenlänge des Lasers:

$$n_2 = \frac{dn}{dv_z} \cdot \lambda_L \cdot \frac{\gamma}{2\pi} \cdot F(S_m, \alpha, \theta). \quad (2.21)$$

Man kann $(\gamma/2\pi)F(S_m, \alpha, \Theta)$ als „Anregungsbreite“ interpretieren; d.h. rein rechnerisch befinden sich genau alle die Atome im angeregten Zustand 2, für die die wirksame Pumpfrequenz nicht mehr als $\pm(\gamma/4\pi)F$ von der Resonanzfrequenz ν_0 abweicht. Bei dieser Interpretation haben wir w_2 durch ein Rechteck der Höhe Eins und einer Breite gleich dem F-fachen der natürlichen Linienbreite ersetzt.

Da das von der Volumeneinheit in alle metastabilen Niveaus emittierte Fluoreszenzlicht gleich $A_{23}n_2$ ist, erhalten wir folgenden Zusammenhang zwischen Fluoreszenzlicht und Geschwindigkeitsverteilung:

$$A_{23}n_2 = A_{23} \frac{dn}{dv_z} (\lambda_L \gamma/2\pi) F(S_m, \alpha, \Theta). \quad (2.22)$$

Hierbei ist zu beachten, daß auch F über die Aufenthaltsdauer

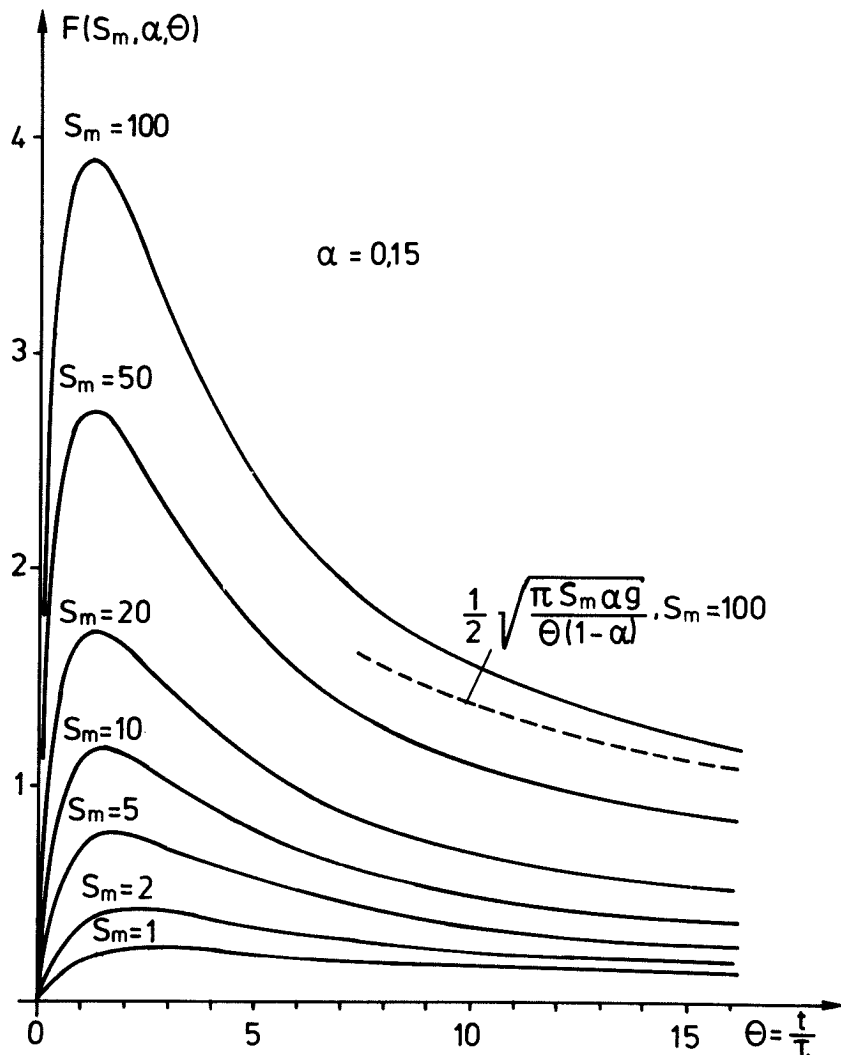


Abb. 2.14a: Anregungswahrscheinlichkeit F nach Gl.(2.20) als Funktion der Zeit Θ , $S_m \geq 1$ ist Parameter; $\alpha=0,15$, $g=1,4$

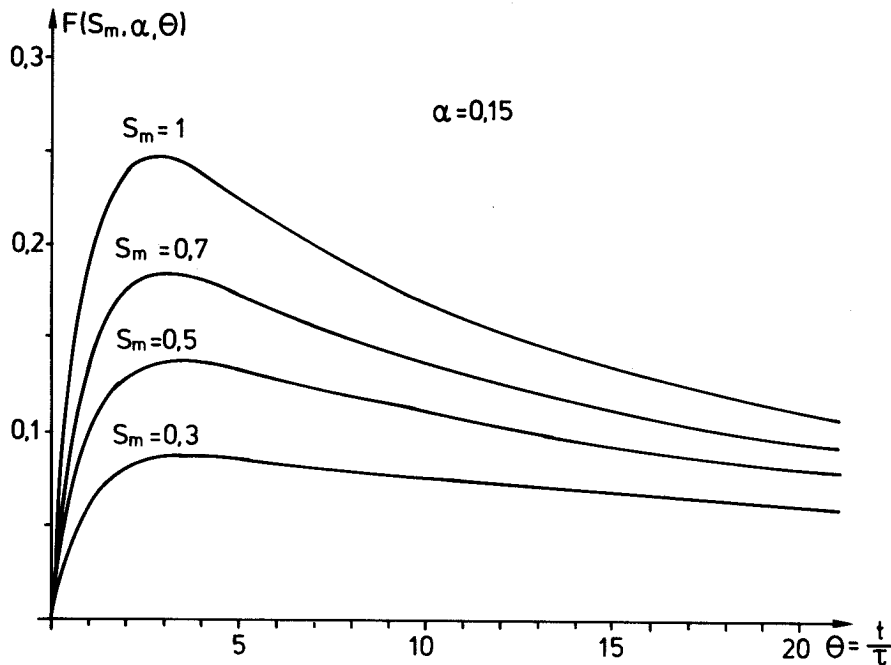


Abb. 2.14b: Anregungswahrscheinlichkeit F nach Gl.(2.20) als Funktion der Zeit θ , $S_m \leq 1$ ist Parameter; $\alpha=0,15$, $g=1,4$

$\theta \cdot \tau$ der Atome im Laserlicht von der Geschwindigkeit der Atome abhängt.

In den Abbn. 2.14a,b ist die Anregungswahrscheinlichkeit F nach Gl.(2.20) als Funktion der normierten Zeit θ dargestellt mit S_m als Parameter; α und g sind wieder wie im Experiment gewählt ($\alpha=0,15$, $g=1,4$). Die Anregungswahrscheinlichkeit erreicht für $S_m \geq 10$ nach einem steilen Anstieg ihren Maximalwert bei etwa 1,2 Lebensdauern (abhängig von α); nur für kleine S_m ($S_m < 5$) wird der Maximalwert erst bei längeren Zeiten θ erreicht (Abb. 2.14b). Das liegt daran, daß der Einschwingvorgang - wie im vorigen Abschnitt diskutiert - in der Linienmitte für $\theta < 3/(1+(g+1)\alpha S_m) = 3/(1+0.36S_m)$ noch nicht abgeschlossen ist. Nach Durchlaufen des Maximalwertes nimmt der Funktionswert exponentiell ab und nähert sich für große S_m und θ asymptotisch dem Wert:

$$F = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\pi \cdot \alpha \cdot g}{(1-\alpha) \theta}} S_m, \quad (2.23)$$

wie im Anhang 6.2. gezeigt wird /20/ (in Abb. 2.14a für $S_m = 100$ gestrichelt eingezeichnet).

Die durch Gl.(2.23) beschriebene Abhängigkeit der Anre-

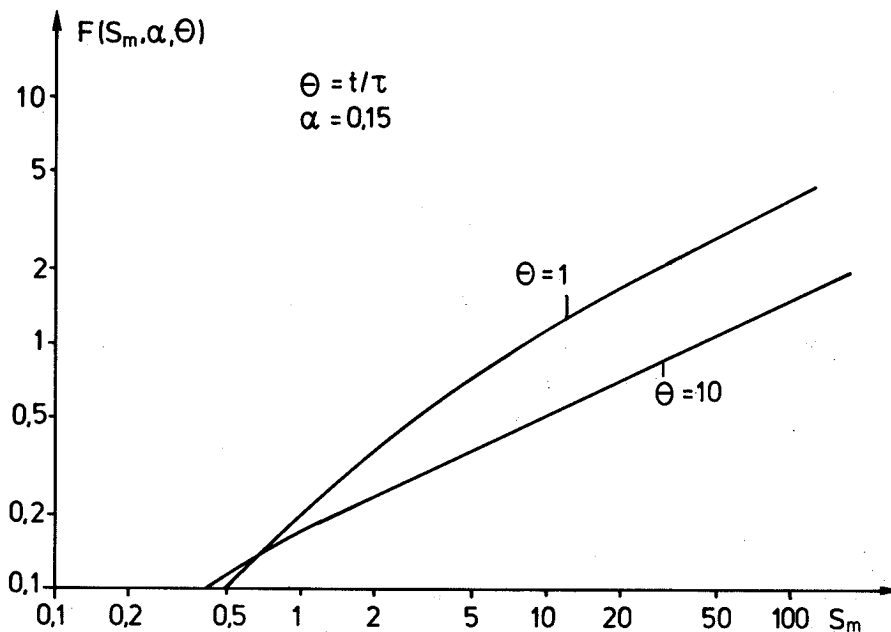


Abb. 2.14c: Anregungswahrscheinlichkeit F nach Gl.(2.20) als Funktion des Sättigungsparameters S_m für verschiedene Zeiten Θ ; $\alpha=0,15$, $g=1,4$

gungswahrscheinlichkeit F von der Wurzel aus dem Sättigungsparameter S_m ist auf den schon beim Zwei-Niveau-System besprochenen Effekt der Sättigungsverbreiterung zurückzuführen, die für große S_m nach Gl.(2.11b) mit der Wurzel aus S_m zunimmt. In Abb. 2.14c ist F als Funktion von S_m für zwei verschiedene Zeiten Θ in doppelt-logarithmischer Darstellung aufgetragen. Man sieht, daß für $\Theta=1$ die Wurzelabhängigkeit erst bei hohen S_m -Werten erreicht wird, während sie für $\Theta=10$ schon bei kleinen S_m -Werten gegeben ist; d.h. die Wurzelabhängigkeit gilt erst, wenn der Einschwingvorgang abgeschlossen ist.

In Abb. 2.14d ist die Anregungswahrscheinlichkeit F nochmals als Funktion von Θ , jedoch im doppelt-logarithmischen Maßstab für vier verschiedene S_m -Werte aufgetragen. Gleichzeitig sind - als gestrichelte Linien - jeweils die zu $1/\sqrt{\Theta}$ proportionalen Abhängigkeiten nach Gl.(2.23) eingezeichnet. Man sieht, daß bei großen S_m -Werten ($S_m \geq 10$) die $(1/\sqrt{\Theta})$ -Abhängigkeit bei Θ -Werten um $\Theta=20$ erreicht wird, für kleine S_m -Werte ($S_m < 1$) erst bei sehr großen Θ -Werten ($\Theta > 100$).

Welche Θ -Werte sind bei der Messung der Geschwindigkeits-

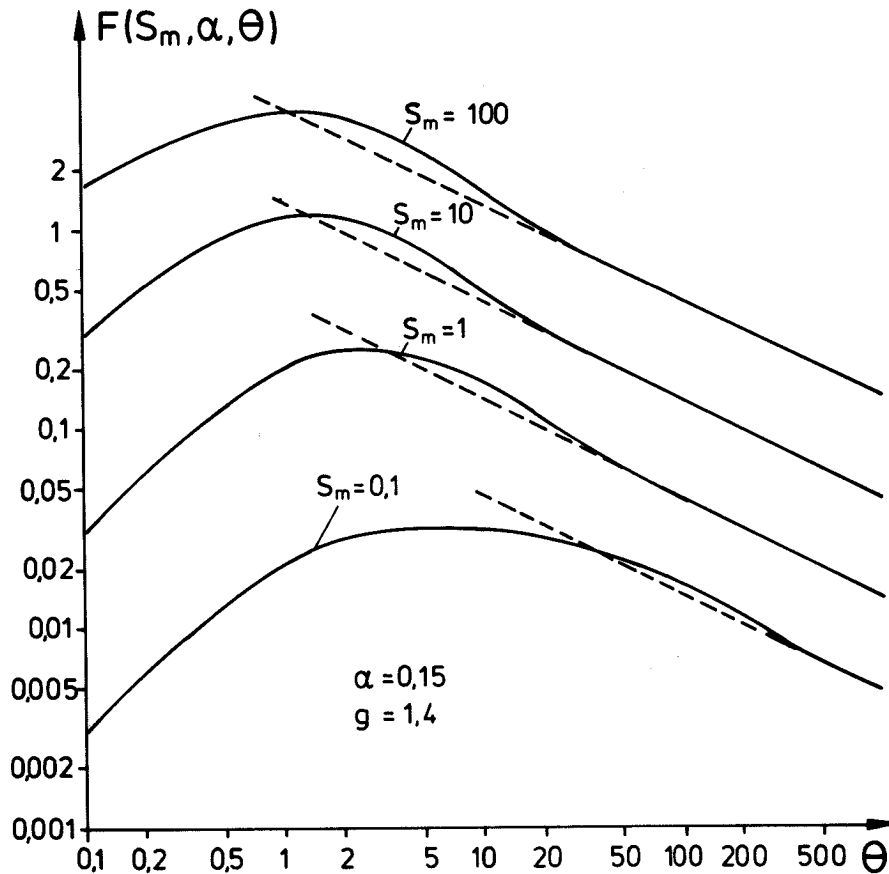


Abb. 2.14d: wie Abb. 2.14a,b, jedoch im doppelt-logarithmischen Maßstab

verteilungen thermischer und zerstäubter Atome zu erwarten? Wegen der Definition von $\theta = z/v_z \tau$ ist der Wert von θ entscheidend von der Lebensdauer abhängig, die für den im Experiment benutzten Übergang $0,41 \mu\text{s}$ /48,49/ beträgt. Damit erhält man maximale θ -Werte für kleine Geschwindigkeitskomponenten und große Abstände ($v_z \leq 100 \text{ m/s}$, $z=14 \text{ mm}$) von $\theta \geq 350$. Die kleinsten θ -Werte erhält man entsprechend bei großen Geschwindigkeitskomponenten und kleinen Abständen. Bei den thermischen Geschwindigkeitsverteilungen sind für $v_{z,\text{max}} \leq 1,5 \text{ km/s}$ und $z=3 \text{ mm}$ Werte von $\theta \geq 5$ und bei den Zerstäubungsmessungen in Kapitel 5. mit $v_{z,\text{max}} \geq 15 \text{ km/s}$ und $z=3 \text{ mm}$ Werte von $\theta \leq 0,5$ zu erwarten. Für den Sättigungsparameter S_m erhalten wir bei einer typischen Laserleistungsdichte ϕ_L von 15 mW/cm^2 und einer Laserwellenlänge λ_L von $593,52 \text{ nm}$ (diese Werte für ϕ_L und λ_L sind für das Experiment relevant (s. Abschnitt 4.2.)) nach Gl.(2.6b) den Wert 10. Dies bedeutet, daß wir bei Verwendung von Gl.(2.23) zur Auswertung der thermi-

schen Geschwindigkeitsverteilungen bei $\theta = 5$ einen Fehler von mindestens 20% machen. Um dies zu vermeiden, wurden alle F-Werte numerisch nach Gl.(2.20) (s. Anhang 6.1.) berechnet. Im Falle der Zerstäubungsmessungen ist dies wegen der kleinen θ -Werte sowieso erforderlich.

2.6. Thermische Geschwindigkeitsverteilung

Um das in dieser Arbeit vorgeschlagene Verfahren zur Messung von Geschwindigkeitsverteilungen zu prüfen, soll eine aus der Theorie berechenbare Verteilung gemessen werden /16, 21/.

Dampfen Atome von einer heißen ebenen Metallfläche ab, so läßt sich deren Geschwindigkeitsverteilung aus der kinetischen Gastheorie ableiten, wenn man die folgende Überlegung zugrunde legt: Die verdampfende Fläche sei Teil der metallischen Wand eines isothermischen Hohlraumes, d.h. es liege thermisches Gleichgewicht vor. Dann gehorcht die Energie- bzw. Geschwindigkeitsverteilung der Dichte des Metaldampfes, d.h. der abgedampften Atome, der Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung, für die im Geschwindigkeitsraum gilt:

$$dn^3 = n \cdot (\beta/\pi)^{3/2} \cdot \exp\{-\beta(v_x^2 + v_y^2 + v_z^2)\} \cdot dv_x dv_y dv_z \quad (2.24)$$

$$\text{mit } \beta = m/2kT; \quad (2.24a)$$

m ist die Masse eines abgedampften Atoms, T die Temperatur im Hohlraum und k die Boltzmannsche Konstante.

Der größte Teil der Atome kondensiert, wenn er auf die Wände des Hohlraumes trifft; der Kondensationskoeffizient α wird als unabhängig von der Energie der Atome und dem Auftreffwinkel angenommen. Damit die Maxwell-Verteilung erhalten bleibt, muß eine den kondensierten Atomen gleiche Anzahl von Atomen wieder von den Wänden emittiert werden; d.h. der Emissionskoeffizient muß aus Gründen der Gleichgewichtserhaltung den gleichen Wert wie der Kondensationskoeffizient haben.

Da die Emission unabhängig von der Kondensation ist, bleibt die Geschwindigkeitsverteilung der von der Fläche abgedampften Atome auch dann erhalten, wenn man die übrigen Wände des Hohlraumes entfernt. Wäre die abdampfende Fläche unendlich ausgedehnt, so würde man vor der Fläche überall die Geschwindigkeitsverteilung (2.24) antreffen, wobei allerdings zu berücksichtigen ist, daß die Geschwindigkeitskomponenten in Richtung auf die Fläche zu fehlen.

In unserem Experiment werden die Atome von einer endlichen, in der (x,y) -Ebene liegenden Zr-Folie verdampft, vor der eine kreisförmige Blende angebracht ist, die ein Gebiet der Folie ausschneidet, in dem die Temperatur und damit die Teilchenemissionsdichte konstant ist (Abb. 2.15).

Wir wollen nun die Dichteverteilung dn/dv_z vor der Blende berechnen. Der Einfachheit halber berechnen wir sie für einen Punkt P auf der z-Achse, da sich die Rechnung aus Gründen der Rotationssymmetrie nur für Punkte auf der z-Achse elementar durchführen läßt. Einen Beitrag zur Dichte in P können nur solche Atome liefern, deren Abdampfwinkel ϑ kleiner als

$$\vartheta_{\max} = \arctan(R/(z-z_B))$$

ist, wobei z_B der Abstand zwischen Folienoberfläche und innerem Blendenrand ist.

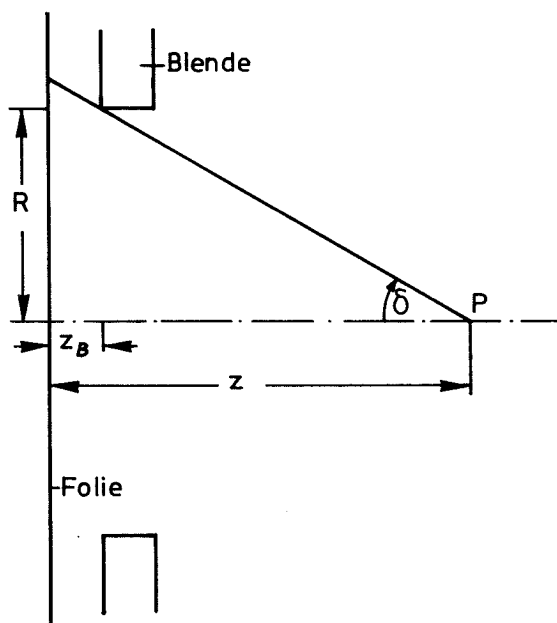


Abb. 2.15: Zur Berechnung der Dichteverteilung in einem Punkt P auf der z-Achse

Wenn die Projektion der Blende von P aus auf die Folie voll auf der abdampfenden Folienfläche liegt, ändert sich die Teilchendichte in P nicht, wenn wir die Folie mit dem inneren Blendenrand zusammenfallen lassen. Um also die Dichteverteilung in P zu berechnen, muß man alle Beiträge aufsummieren, die von der Blende kommen; d.h. man muß über alle Geschwindigkeiten v_r parallel zur Folienfläche integrieren, für die gilt:

$$0 \leq v_r \leq v_z \cdot \tan \vartheta = v_z \cdot R / (z - z_B). \quad (2.25)$$

Dazu führen wir Zylinderkoordinaten ein (Abb. 2.16):

$$v_x^2 + v_y^2 = v_r^2 \quad (2.26a)$$

$$dv_x dv_y = v_r dv_r d\varphi \quad (2.26b)$$

$$v_r = v_z \cdot \tan \vartheta \quad (2.26c)$$

$$dv_r = v_z (\cos \vartheta)^{-2} d\vartheta \quad (2.26d)$$

(v_z wird bei der Integration konstant gehalten.) Nach Ausführung der φ -Integration von 0 bis 2π erhalten wir aus Gl.(2.24):

$$\begin{aligned} dn^2 &= n \cdot (\beta/\pi)^{3/2} \cdot \exp\{-\beta v_z^2\} \cdot dv_z \cdot \\ &2\pi v_z^2 (\sin \vartheta / \cos^3 \vartheta) \cdot \exp\{-\beta v_z^2 \cdot \tan^2 \vartheta\} d\vartheta. \end{aligned} \quad (2.27)$$

Diese Gleichung läßt sich mit der Substitution $\tan^2 \vartheta = w$ integrieren, und man erhält mit $\tan \vartheta = R / (z - z_B)$ schließlich:

$$\frac{dn}{dv_z} = n (\beta/\pi)^{1/2} \exp\{-\beta v_z^2\} \left[1 - \exp\left\{-\beta v_z^2 R^2 / (z - z_B)^2\right\} \right] \quad (2.28)$$

Die für eine Geschwindigkeitskomponente gültige Gauß-Verteilung $(\beta/\pi)^{1/2} \exp(-\beta v_z^2)$ ist mit dem in der eckigen Klammer stehenden geometrieabhängigen Zusatzterm korrigiert worden. Für eine unendlich ausgedehnte Folie, d.h. für $R / (z - z_B) \rightarrow \infty$, geht die Exponentialfunktion in der eckigen Klammer gegen Null, und man erhält die Gauß-Verteilung. Für kleine $R / (z - z_B)$ erhält man durch Entwicklung dieser Exponentialfunktion in erster Näherung:

$$\frac{dn}{dv_z} = n (\beta/\pi)^{1/2} \cdot v_z^2 R^2 / (z - z_B)^2 \exp(-\beta v_z^2). \quad (2.29)$$

In Abb. 2.17 ist dn/dv_z nach Gl.(2.28) für verschiedene Parameterwerte $R / (z - z_B)$ als Funktion der Geschwindigkeitskomponente v_z aufgetragen. Dabei wurde so normiert, daß die Gauß-Verteilung, die man für eine unendlich ausgedehnte Quelle erhält, im Maximum den Wert Eins annimmt. Mit wachsendem Abstand $z - z_B$ nimmt die Teilchendichte im Punkt P zunächst sehr schnell ab, da die Zahl der Atome, die wegen großer Abdampfwinkel ϑ an P vorbeifliegen, groß ist. Für kleine $R / (z - z_B)$,

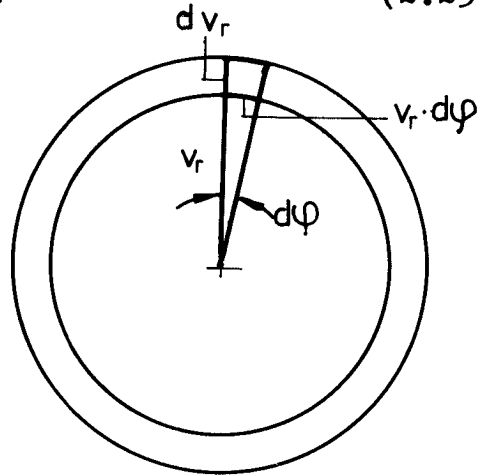


Abb. 2.16: Zylinderkoordinaten im v -Raum

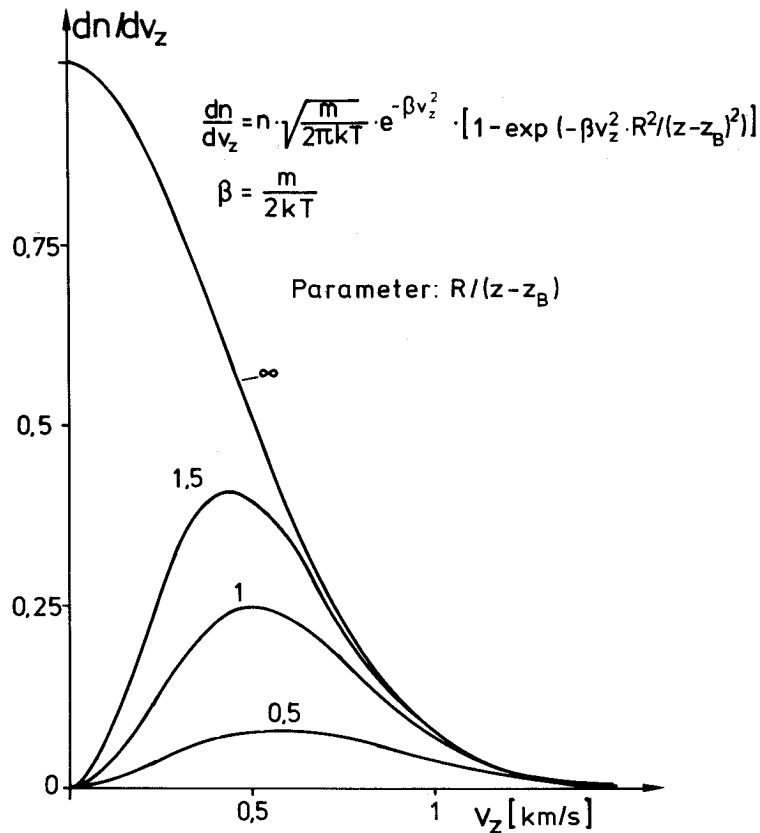


Abb. 2.17: Geschwindigkeitsverteilung für die v_z -Komponente unter Berücksichtigung der Blendengeometrie nach Gl.(2.28)

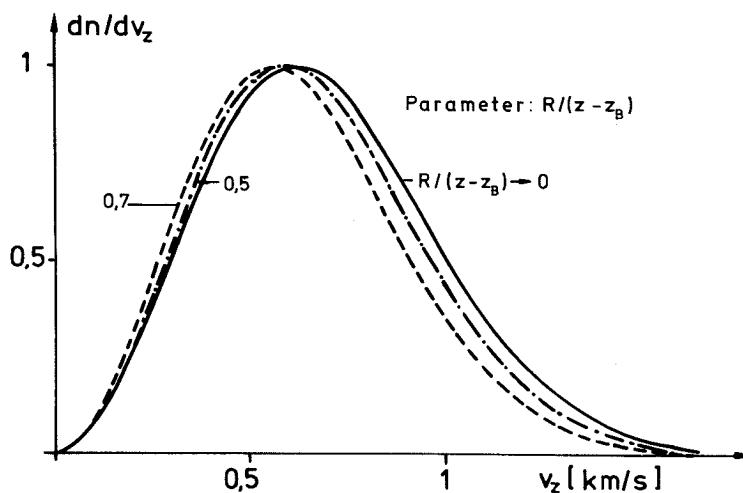


Abb. 2.18: Vergleich von Gl.(2.29) (durchgezogene Linie) mit Gl.(2.28) für zwei verschiedene Parameterwerte $R/(z-z_B) = 0,7$ und $0,5$; alle Kurven sind auf Eins normiert.

d.h. für große Abstände z von der Folie, wird die Verteilungsfunktion näherungsweise durch Gl.(2.29) beschrieben. In Abb. 2.18 sind zum Vergleich die auf Eins normierten Verteil-

lungsfunktionen nach Gl.(2.28) für $R/(z-z_B) = 0,7$ und $0,5$ und Gl.(2.29) dargestellt.

Es muß noch einmal darauf hingewiesen werden, daß die Geschwindigkeitsverteilung Gl.(2.28) streng nur für Punkte auf der z -Achse gilt. Es kann jedoch näherungsweise angenommen werden, daß sich die Teilchendichte zum Rand des Anregungsvolumens hin nicht wesentlich ändert, wie entsprechende Abschätzungen gezeigt haben /20/, sodaß auf die aufwendige Berechnung der Dichteverteilung für Punkte außerhalb der z -Achse verzichtet werden kann.

3. Experimenteller Aufbau

Zunächst betrachten wir den in Abb. 3.1 schematisch dargestellten Versuchsaufbau, der im wesentlichen aus dem in den folgenden Abschnitten beschriebenen Lasersystem, dem zum Test der Meßmethode benötigten Verdampfersystem und dem Nachweis-system besteht. (Der Versuchsumbau zur Messung der Geschwindigkeitsverteilung zerstäubter Atome wird im Kapitel 5. beschrieben.)

Das Licht des mit einem Argon-Ionen-Laser gepumpten Farbstofflasers wird nach Umlenkung durch das Prisma P_1 durch die Linse L_1 aufgeweitet und über die Spiegel Sp_1 und Sp_2 senkrecht auf die Zr-Folie gelenkt, von der die Atome verdampft werden. Im Laserstrahl steht der Chopper Ch, der das Wechsellicht für die mit Lock-in-Technik arbeitende Photonen-zählapparatur PhZ erzeugt (s. Abschnitt 3.3.). Ein Teil des an der Glasplatte G ausgekoppelten Lichtes wird von der Teilerplatte TP auf die Photozelle Ph_1 gegeben, welche den Steuerpuls für die PhZ liefert. Der andere Teil gelangt durch das Prisma P_2 und den Strahlteilerwürfel StT_1 teilweise in den Spektrum-Analysator SpA, dessen Signal auf einem Oszillographen O beobachtet wird. Hieraus läßt sich erkennen, ob der Laser in einer Longitudinalmode schwingt (s. Abschnitt 3.1.3) und um welchen Betrag die Laserfrequenz verstimmt wird.

Mit der Photozelle Ph_2 wird die Laserleistung gemessen; nach externer Eichung läßt sich so die auf die Zr-Folie treffende Laserleistungsdichte bestimmen, die gleichzeitig mit dem von der PhZ kommenden Signal auf einen Zweikanalschreiber gegeben wird. Der Rest des ausgekoppelten Laserlichtes wird in ein Vergleichsspektroskop S gelenkt, mit dessen Hilfe die Laserwellenlänge durch Vergleich mit den bekannten Linien einer Neon-Spektrallampe NeL grob eingestellt werden kann (s. Abschnitt 4.1.2.).

Das Emissionslicht der durch das Laserlicht angeregten Atome wird über das Linsensystem L_2 , L_3 und den Spiegel Sp_3 durch den Monochromator M, der den größten Teil der Hintergrundstrahlung unterdrückt, auf einen Photomultiplier PM ge-

geben, dessen Photoelektronenstrompulse in der PhZ nach ihrer Pulshöhe (Amplitude) sortiert und gezählt werden. Von dort werden sie als Analogsignal auf den Zweikanalschreiber gegeben.

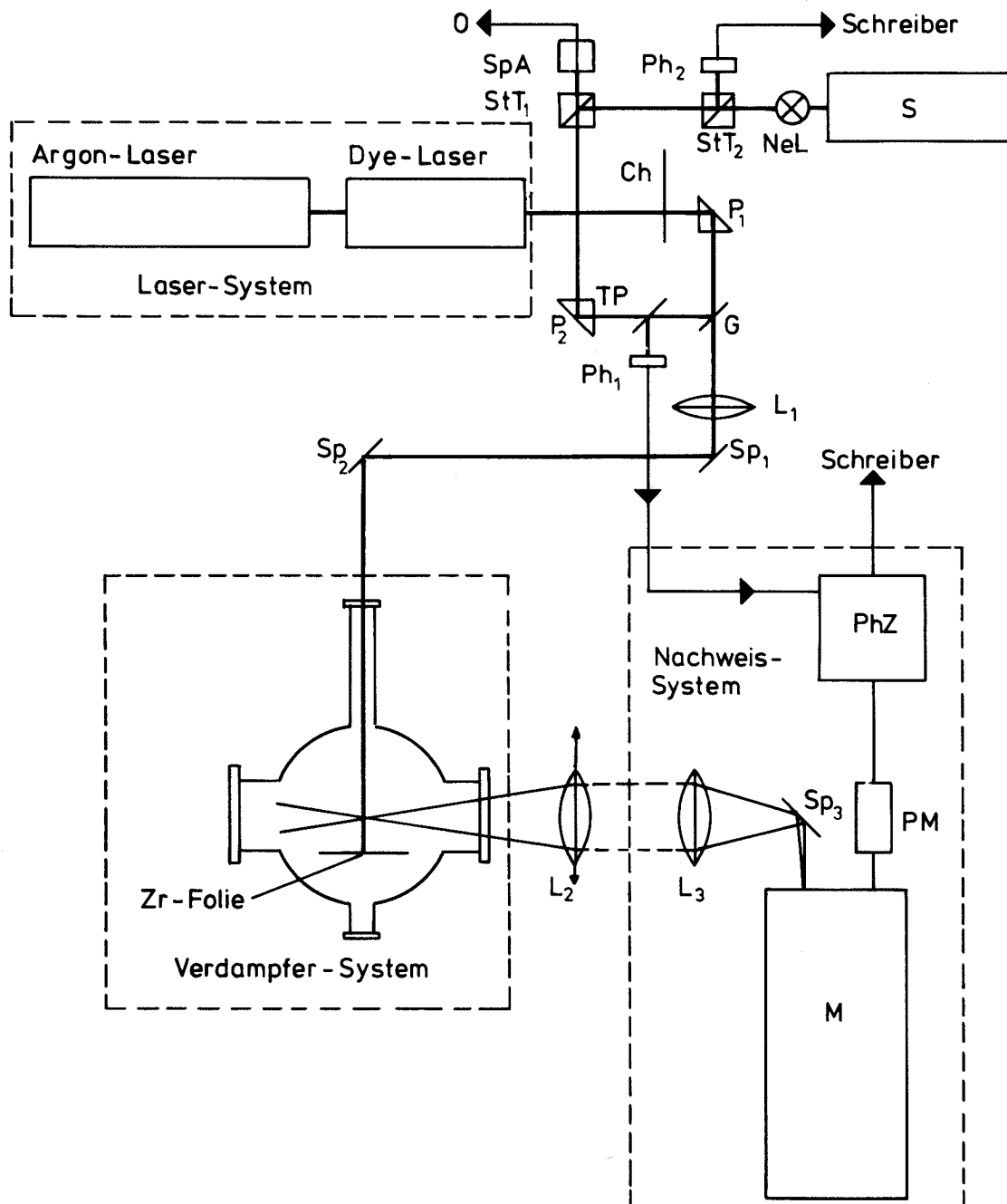


Abb. 3.1: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaues (Es bedeuten: O=Oszillograph, SpA=Spektrum-Analysor, StT=Strahlteilerwürfel, Ph=Photozellen, NeL=Neon-Spektrallampe, S=Vergleichsspektroskop, Ch=Chopper, P=Umlenkprismen, G=Glas-scheibe, TP=Teilerplatte, L=Linsen, Sp=Spiegel, M=Monochroma-tor, PM=Photomultiplier, PhZ=Photonenzählapparatur)

3.1. Das Lasersystem

3.1.1. Theoretische Grundlagen

Es sollen im folgenden nur kurz die physikalischen Grundlagen der Farbstofflaser beschrieben werden. Einen zusammenfassenden Überblick mit ausführlichem Literaturverzeichnis findet man bei Schäfer /22/.

Alle für Laserzwecke in Frage kommenden Farbstoffe haben ein Termschema, wie es prinzipiell in Abb. 3.2 dargestellt ist. Die einzelnen Linien entsprechen den Vibrationszuständen des Farbstoffmoleküls. Vom Schema her arbeitet der Farbstofflaser wie ein Vier-Niveau-Laser: Vom Zustand A im S_0 -Niveau-Band wird der Farbstoff in einen Zustand b im S_1 -Niveau-Band angeregt. Durch strahlungslose Übergänge innerhalb kürzester Zeiten (wenige ps) gelangen die angeregten Elektronen in den untersten Schwingungszustand B des S_1 -Terms. Von dort aus sind Übergänge $B \rightarrow a$ in die Schwingungszustände des S_0 -Terms möglich, die alle - bis auf den niedrigsten A - bei genügender Kühlung des Farbstoffes gegenüber B unterbesetzt sind. Damit liegt Besetzungsinversion vor, und dem Übergang $B \rightarrow a$ entsprechendes Licht wird durch induzierte Emission verstärkt. Der Übergang $a \rightarrow A$ erfolgt wiederum so schnell, daß

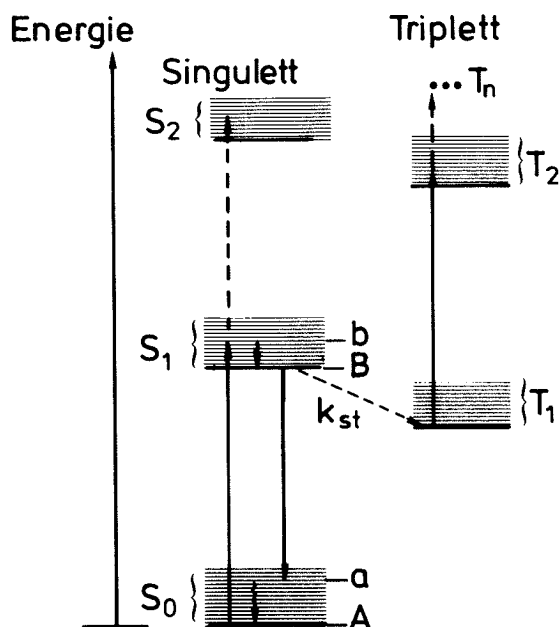


Abb. 3.2: Termschema eines Farbstoffmoleküls

die Besetzungsinversion zwischen B und a erhalten bleibt: es ist also ein kontinuierlicher Laserbetrieb möglich.

Störend auf den Laserbetrieb wirken sich strahlungslose Übergänge in das Triplett-System $S_1 \rightarrow T_1$ auf den Dauerstrichbetrieb aus, weil der Übergang $T_1 \rightarrow S_0$ normalerweise verboten ist. Dadurch nimmt die Zahl der angeregten Farbstoffmoleküle laufend ab. Da sich die Übergänge $S_1 \rightarrow T_1$ nicht unterdrücken lassen,

versucht man, durch geeignete Wahl von Lösungsmitteln für den Farbstoff oder durch sogenannte Triplet-State-Quenchers die Übergangsraten $T_1 \rightarrow S_0$ so stark zu erhöhen, daß immer genügend Farbstoffmoleküle im Singulett-Zustand vorliegen.

3.1.2. Der Aufbau des Farbstofflasers

Der Resonator des Farbstofflasers ist schematisch in Abb. 3.3 dargestellt. Der Strahl des Pumplasers (hier: Spectra Physics: Argon-Ion-Laser, Model 165) wird über den Eintrittsspiegel in den Farbstoffstrahl (Rhodamin 6G in Äthylenglykol) fokussiert, der senkrecht zur Zeichenebene frei über eine Strecke von ca. 1 cm fließt. Seine nahezu planparallele Form erhält er durch eine spezielle Düse, aus der er mit konstanter und hoher Geschwindigkeit (ca. 10m/s) herausschießt. Durch diese hohe Geschwindigkeit erreicht man, daß

1. Dickenänderungen im frei fließenden Farbstoffstrahl verringert werden, die zur Vergrößerung der effektiven Breite des Laserlichtes führen würden /23/,
2. thermische Linseneffekte verringert werden /24/,
3. der Übergang vom S_1 - in den T_1 -Zustand wegen der geringen Aufenthaltsdauer der Farbstoffmoleküle im aktiven Laservo-

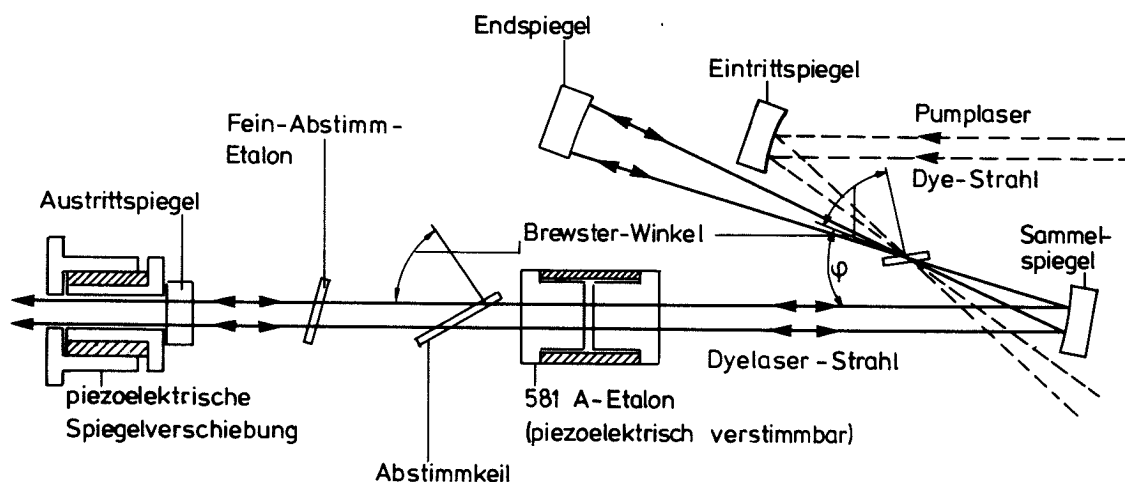


Abb.3.3: Schematische Darstellung des Farbstofflaser-Resonators (aus Spectra Physics: Instruction Manuel for Model 580A)

lumen herabgesetzt wird. (Die Aufenthaltsdauer beträgt bei einem Fokusbereich von $30\text{ }\mu\text{m}$ etwa $3\text{ }\mu\text{s.}$)

Der Farbstofflaser-Resonator besteht aus End-, Sammel- und Austrittsspiegel. Der Farbstoffstrahl kreuzt die End-Sammel-spiegelachse im Brewster-Winkel und verursacht für die vom End- und Sammelspiegel kommenden Strahlen Astigmatismus /25/. Dieser kann jedoch durch den Astigmatismus kompensiert werden, den der Sammelspiegel bei einer Drehung um den Winkel ϕ senkrecht zur End-Sammel-spiegelachse erzeugt /26/. End- und Sammelspiegel sind fest montiert und können im normalen Laserbetrieb nicht justiert werden.

Um eine möglichst große Ausgangsleistung des Farbstofflasers zu erhalten, ist es erforderlich, daß die Strahltaillen (s. Abschnitt 3.1.3.) von Pump- und Farbstofflaserstrahl genau übereinstimmen. Dies läßt sich durch Verkippen des Eintrittsspiegels erreichen. Zwischen Sammel- und Austrittsspiegel sind die zur Wellenlängenabstimmung erforderlichen optischen Elemente untergebracht: zur Grobabstimmung ein keilförmiges Interferenzfilter (ein Verlaufsfilter mit keilförmig aufgedampfter Abstandschicht, kurz Abstimmkeil genannt) und das Feinabstimm-Etalon, ein um eine senkrecht zur Strahlrichtung liegende Achse drehbares Fabry-Perot-Interferometer (FPI); zur Feinabstimmung ein weiteres piezoelektrisch verstimmbares FPI (581 A-Etalon) und schließlich die Resonatorlänge, die mit Hilfe des piezoelektrisch verfahrbaren Austrittsspiegels geändert werden kann.

Aus Gründen der Frequenzstabilität dürfen Zu- und Abflußschläuche für die Farbstofflösung, die am Resonatorgehäuse befestigt sind, keine Apparateile berühren, die mechanischen Erschütterungen wie Gebäudeschwingungen usw. ausgesetzt sind. Zur Unterdrückung solcher Störungen wurde das gesamte Lasersystem auf eine schwingungsgedämpfte Granitbank montiert.

3.1.3. Eigenschaften des Dauerstrich-Farbstofflasers

Zu den wichtigsten Eigenschaften dieses Dauerstrich-Farbstofflasers zählt, daß er

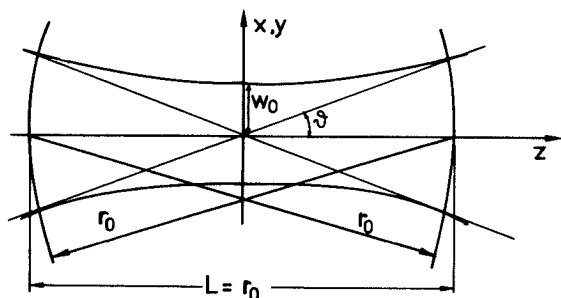
1. nur in einer Transversalmode, nämlich der TEM_{00} -Mode schwingt,
2. extrem schmalbandig, d.h. praktisch monochromatisch ist (nur eine Longitudinalmode).

Diese Eigenschaften des Laserresonators seien im folgenden kurz skizziert. Zur Vertiefung sei auf die allgemeine Theorie der FPI /27/ und auf die Resonatortheorie /28-35/ verwiesen.

In der Resonatortheorie, über die man in /36/ einen guten Überblick mit ausführlichem Literaturverzeichnis findet, berechnet man mit Hilfe des Huygens'schen Prinzips die Feldverteilung elektromagnetischer Felder, die zwischen zwei Spiegeln hin- und herreflektiert werden. Je nach Art der Spiegel (Plan- oder Hohl, Kreis- oder Rechteckspiegel) nimmt das Feld nach einigen Reflektionen eine nur noch von den Verlusten bestimmte Verteilung an, die man entsprechend der Zahl der Nulldurchgänge des Feldes in radialer Richtung als TEM-Moden bezeichnet (Transversale Elektro-Magnetische Moden).

Zunächst seien der Aufbau und die Eigenschaften des sogenannten konfokalen Resonators betrachtet, da er sich recht einfach berechnen läßt und da alle anderen stabilen Resonatoren auf ihn zurückgeführt werden können.(s.u.)

Beim konfokalen Resonator haben die Spiegel den Krümmungsradius r_0 und stehen im Abstand $L = r_0$ voneinander entfernt (Abb. 3.4). Die TEM_{00} -Mode, d.h. kein Nulldurchgang der Feld-



stärke in der (x,y) -Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung, kann durch eine Gauß-Verteilung angenähert werden (Gaußscher Strahl). Die Stelle kleinsten Strahlquerschnittes, die sogenannte Strahltaille $2w_0$, liegt in der Mitte des Resonators; w_0 ist

Abb. 3.4: Der konfokale Resonator

der Abstand von der Mitte des Strahles (z-Achse) bis zu dem Punkt, an dem die Feldstärke auf $1/e$ abgenommen hat. In der Strahltaille ist die Phasenfront eine Ebene; die Spiegel sind Flächen konstanter Phase - in erster Näherung Kugelflächen. Der Krümmungsradius der Phasenfronten wird an den Spiegeln minimal. Der Strahl divergiert entsprechend einer hyperbolischen Kaustik mit dem Divergenzwinkel ϑ , welcher ebenso wie die Fleckgrößen oder Strahlquerschnitte auf den Spiegeln eindeutig durch r_0 gegeben sind.

Es seien hier kurz ohne Herleitung die wichtigsten Formeln zusammengestellt /36/:

$$w_0 = \sqrt{r_0 \lambda / 2\pi} \quad (3.1)$$

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + (2z/r_0)^2} \quad (3.2)$$

$$\vartheta = \lim_{z \rightarrow \infty} (w(z)/z) = \lambda / \pi w_0 \quad (3.3)$$

$$r(z) = z(1 + (\pi w_0^2 / \lambda z)^2) = z(1 + r_0^2 / 4z^2) \quad (3.4)$$

Dabei sind $w(z)$ und $r(z)$ die Fleckgröße bzw. die Krümmung der Phasenfronten im Abstand z von der Strahltaille $2w_0$. λ ist die Wellenlänge des elektromagnetischen Feldes.

Man kann in einem konfokalen Resonator die Phasenfronten an jeder Stelle innerhalb und außerhalb des Resonators durch Spiegel mit entsprechenden Krümmungsradien $r(z)$ ersetzen, ohne die Strahleigenschaften zu ändern. Also läßt sich umgekehrt aus zwei beliebigen sphärischen Spiegeln mit bekanntem Krümmungsradius ein stabiler Resonator bauen, wenn sich ein äquivalenter konfokaler Resonator finden läßt, in dem zwei Phasenfronten auftreten, deren Krümmungsradien denen der sphärischen Spiegel entsprechen.

Der Resonator unseres Farbstofflasers ist nahezu konzentrisch; d.h. die den Resonator bestimmenden Spiegel stehen im Abstand der Summe der Krümmungsradien voneinander entfernt. (Die Krümmungsradien r_E und r_S von End- und Sammelspiegel betragen jeweils 50 mm; letzterer wirkt wegen der Reflektion des Lichtes am ebenen Austrittsspiegel wie ein Hohlspiegel von 25 mm Radius.) Aus Stabilitätsgründen beträgt der Abstand der beiden Spiegel jedoch etwas weniger als 75 mm.

Die Beziehungen (3.1) bis (3.4) gelten nur für die TEM_{00} -Mode. Für alle anderen transversalen Moden sind die Strahldurchmesser größer. Diesen Größenunterschied der verschiedenen transversalen Moden macht man sich zunutze, um nur die TEM_{00} -Mode anschwingen zu lassen. Dies erreicht man, indem man entweder eine entsprechende Modenblende innerhalb des Resonators aufstellt, die so bemessen ist, daß alle höheren Moden so große Verluste erleiden, daß sie sich bis auf die TEM_{00} -Mode nicht ausbilden können, oder indem man das aktive Laservolumen so klein macht, daß keine höheren Moden anschwingen können.

Bei unserem Laser wurde die zweite Methode gewählt. Die Abbildung der Strahltaile des Pumplasers durch den Eintrittsspiegel ergibt unter Berücksichtigung seines Astigmatismus eine Strahltaile und damit ein aktives Laservolumen von etwa $30\text{ }\mu\text{m}$ Durchmesser. Durch geeignete Wahl des Abstandes zwischen End- und Sammelspiegel wird die Strahltaile des Farbstofflaserresonators so eingestellt, daß sie immer größer als das aktive Laservolumen ist.

Zur Abschätzung des Abstandes von End- und Sammelspiegel sei folgendes Zahlenbeispiel betrachtet: Um nur das Anschwingen der TEM_{00} -Mode zu erreichen, soll die Strahltaile $2w_0$ im Farbstofflaserresonator einen Durchmesser von $50\text{ }\mu\text{m}$ haben. Dem entspricht nach Gl.(3.1) bei einer Wellenlänge von 600 nm ein äquivalenter konfokaler Resonator der Länge $r_0=6,5\text{ mm}$. Nach Gl.(3.4) erhält man die gleiche Strahltaile, wenn man den Endspiegel ($r_E=50\text{ mm}$) im Abstand $z_E=49,8\text{ mm}$ und den Sammelspiegel ($r_S=25\text{ mm}$) im Abstand $z_S=24,6\text{ mm}$ von der Mitte des äquivalenten konfokalen Resonators aufstellt.

Die longitudinale Resonanzbedingung für optische Resonatoren lautet:

$$m \cdot \lambda = 2L, \quad (3.5)$$

wobei λ die Wellenlänge und L der Abstand der Resonatorspiegel sind; m , die Interferenzordnung, ist eine ganze, für sichtbares Licht im allgemeinen sehr große Zahl.

Den Wellenlängenabstand zwischen benachbarten Interferenz-

ordnungen kann man wie beim FPI als Dispersionsgebiet bezeichnen. Aus der Wellenlängenänderung beim Übergang zur nächst höheren Ordnung folgt mit Gl.(3.5):

$$\Delta\lambda = \frac{2L}{m} - \frac{2L}{m+1} = \frac{2L}{m} \left(1 - \frac{m}{m+1}\right) \approx \frac{2L}{m^2} = \frac{\lambda}{m} = \frac{\lambda^2}{2L}. \quad (3.6)$$

Als Frequenzdifferenz ausgedrückt wird das Dispersionsgebiet unabhängig von der Wellenlänge:

$$\Delta\nu/\nu = \Delta\lambda/\lambda \rightarrow \Delta\nu = (c/\lambda^2)\Delta\lambda = c/2L. \quad (3.7)$$

Das Dispersionsgebiet unseres Laserresonators beträgt bei einer Länge $L = 385 \text{ mm}$ nach Gl.(3.7): $\Delta\nu \approx 390 \text{ MHz}$; d.h. alle 390 MHz gibt es ein Resonanzmaximum. Der Laser besitzt demnach ein diskontinuierliches Ausgangsspektrum, das aus sehr vielen dichtgestaffelten longitudinalen Moden besteht. Analoge Resonanzbedingungen gelten für alle anderen optischen Resonatoren des Lasers (s. Tabelle 3.1).

Ohne diese zusätzlichen Elemente innerhalb des Resonators sollte demnach das Ausgangsspektrum des Laserlichtes dem Fluoreszenzspektrum des Farbstoffes entsprechen. Dies ist jedoch nicht der Fall und läßt sich mit folgendem Modell über die Entstehung der longitudinalen Moden erklären:

Da die Moden ihre Energie alle aus einer Quelle beziehen - dem Fluoreszenzübergang des Farbstoffes -, kann man sie als eine Reihe gekoppelter Oszillatoren mit geringfügigen Frequenzdifferenzen betrachten. Deshalb sind Resonatormoden, die in der Nähe des Maximums der Verstärkungskurve des Farbstoffes liegen, also mehr von der in den Farbstoff gepumpten

	Resonator	piezoel. Etalon	Feinabst.- Etalon	Abstimmkeil
Dispersionsgebiet $\Delta\nu$	390 MHz	75 GHz	1000 GHz	88 000 GHz
$\Delta\lambda(600 \text{ nm})$	0,47 pm	90 pm	1,2 nm	110 nm
Spiegelabstand	385 mm	2 mm	0,15 mm	1,7 μm
$\Delta\nu_R/\Delta\nu_{\text{opt.E1.}}$	1	190	2500	225 000

Tabelle 3.1: Eigenschaften der optischen Resonatoren im Farbstofflaser (aus Spectra Physics: Instruction Manuel for Model 580 A)

Energie mitbekommen, in der Lage, auf Kosten von Moden, die weiter entfernt vom Verstärkungsmaximum liegen, ihre Energie zu erhöhen (mode competition). Dies führt zu einer wesentlichen Verkleinerung der Spektralbreite. (Im Falle von Rhodamin 6G beträgt der Fluoreszenzbereich mehr als 60 nm, die gemessene Spektralbreite - ohne optische Elemente im Resonator - ungefähr 2 nm.) Eine analoge Spektralbereichsverkleinerung durch Moden-„Wettbewerb“ tritt auch bei sukzessiver Hinzufügung der anderen optischen Elemente ein.

In Abhängigkeit vom Reflektionsvermögen der spiegelnden Flächen und der optischen Länge des Resonators gibt die Airy-Formel /27/ den Zusammenhang zwischen Transmissionsvermögen und Lichtfrequenz wieder. Bei genügend hohem Reflektionsvermögen erhält man in der Frequenz periodisch wiederkehrende scharfe Transmissionsmaxima, deren Abstand durch das Dispersionsgebiet gegeben ist (Abb. 3.5). Von den Longitudinalmoden

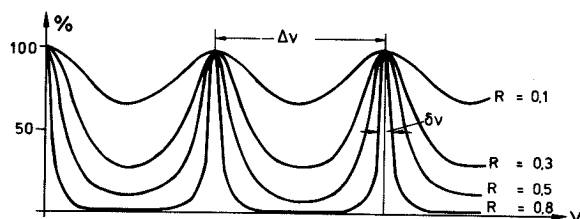


Abb. 3.5: Transmission als Funktion der Frequenz; die Reflektivität ist Parameter

des Resonators, die in den Frequenzbereich eines Transmissionsmaximums fallen, verstärken sich dann nur wieder diejenigen, die dem Maximum am nächsten liegen. Durch Justierung der Abstimmeelemente innerhalb des Resonators auf

eine gemeinsame Frequenz erreicht man, daß schließlich nur noch eine Longitudinalmode „überlebt“, der Laser also in einer einzigen Mode schwingt.

Zu einer zahlenmäßigen Abschätzung betrachten wir für das 581 A-Etalon das Verhältnis von Dispersionsgebiet $\Delta\nu$ und Breite des Transmissionsmaximums $\delta\nu$, das man als Finesse F bezeichnet. F läßt sich auch mit Hilfe des Reflektionsvermögens R des FPI definieren. Es gilt:

$$F = \pi\sqrt{R}/(1-R) = \Delta\nu/\delta\nu. \quad (3.8)$$

Setzt man für $\delta\nu$ den nach Gl.(3.7) berechneten Wert von 390 MHz ein und für $\Delta\nu$ den Wert aus Tabelle 3.1, so erhält man für die Finesse $F \approx 190$. Für das Reflektionsvermögen des FPI erhält man dann $R \approx 98,4\%$. Da jedoch nur die Moden in der

Nähe des Transmissionsmaximums $\delta\nu$ auf Kosten der rechts und links benachbarten Moden anschwingen, kann das Reflektionsvermögen in praxi auch etwas geringer sein. Für $R = 95\%$ ist $F = 61$ und $\delta\nu = 1,22$ GHz; d.h. es liegen etwa 3 Moden innerhalb der Breite $\delta\nu$.

3.1.4. Instantane Laserlinienbreite und scheinbare Breite des Lasers

Als instantane Breite $\Delta\nu_L$ der Laserlinie sei ihre momentane Breite bezeichnet, die nach der Theorie /37/ nur einige kHz betragen soll und die bei den theoretischen Überlegungen im 2. Kapitel als beliebig schmal angenommen wurde. Im Spektrumanalysator, dessen Auflösungsvermögen bei einem Dispersionsgebiet von 2 GHz und einer angegebenen Finesse von 200 nach Gl.(3.8) ca. 10 MHz beträgt, wurde eine durch Schwankungen der Laserfrequenz bedingte scheinbare Breite $\Delta\nu_{sch} = 10$ bis 15 MHz gemessen, wobei keinerlei Auskunft über das zeitliche Verhalten der Schwankungen gewonnen werden konnte. Für das Zustandekommen dieser Frequenzschwankungen sind mehrere Effekte verantwortlich /20,38,39/, von denen die wichtigsten hier betrachtet werden sollen.

1. Instabilitäten (Dickenschwankungen) des frei fließenden Farbstoffstrahles bewirken, daß sich die effektive Resonatorlänge ändert.

Zur Abschätzung der Dickenänderung betrachten wir ein Zahlenbeispiel für unseren Laser. Die optische Weglänge L ist:

$$L = l + (n-1)s, \quad (3.9)$$

wo $l = 385$ mm der Abstand von End- und Austrittsspiegel, $s = 0,2$ mm die Dicke des Farbstoffstrahles und $n = 1,432$ der Brechungsindex des Farbstofflösungsmittels (Äthylenglykol) bei 600 nm sind. Der Brechungsindex der Luft sei vernachlässigt. Dann ist die Änderung von L , ΔL , gegeben durch:

$$\Delta L = \Delta l + (n-1)\Delta s + s\Delta n. \quad (3.10)$$

Wenn wir nur Dickenänderungen des Farbstoffstrahles betrachten, ist $\Delta n = \Delta l = 0$, also $\Delta L = (n-1)\Delta s$. Aus Gl.(3.5)

folgt mit Gl.(3.7) dann: $m = 2L/\lambda$, also $\nu = mc/2L = m \cdot \Delta\nu$. Andererseits ist:

$$\Delta\nu = -(mc/2L^2) \cdot \Delta L = -(\nu/L) \cdot \Delta L = -(\nu/L)(n-1) \cdot \Delta s$$

$$\text{oder } \Delta s = -(\Delta\nu/\nu)(L/(n-1)). \quad (3.11)$$

Setzt man für L und n die obigen Zahlenwerte ein, so sieht man, daß schon eine Dickenänderung des Farbstoffstrahles von $\Delta s = 1,8 \cdot 10^{-5}$ mm bei einer Wellenlänge von 600 nm ($\Delta\nu = 5 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$) eine Frequenzverschiebung von $\Delta\nu = 10$ MHz bewirkt. Die Dickenschwankungen des Farbstoffstrahles beeinflussen somit empfindlich die Frequenzstabilität des Lasers.

2. Temperaturschwankungen im Farbstoffstrahl haben eine Dichte- und damit Frequenzänderungen zur Folge. Diese können sowohl von Temperaturgradienten in der Farbstofflösung als auch durch Amplitudenrauschen des Pumplasers, welches Temperaturschwankungen im aktiven Farbstoffbereich erzeugt, verursacht werden.

Zur Abschätzung dieses Einflusses differenzieren wir Gl. (3.9) nach der Temperatur und erhalten:

$$\frac{dL}{dT} = \frac{dl}{dT} + s \left(\frac{dn}{dT} + \frac{n-1}{s} \frac{ds}{dT} \right) = \frac{dl}{dT} + s \left(\frac{dn}{dT} + (n-1)\alpha \right), \quad (3.12)$$

wo α der lineare Ausdehnungskoeffizient des Farbstofflösungsmittels ist. Dieser läßt sich aus dem thermischen Dichtekoeffizienten $d\rho/dT$ berechnen zu:

$$\alpha = -\frac{1}{3} \frac{d\rho}{dT} \left(\frac{1}{\rho_0 + (d\rho/dT)T} \right) \approx -\frac{1}{3} \frac{d\rho}{dT} \frac{1}{\rho_0}, \quad (3.13)$$

wo ρ_0 die Dichte zur Temperatur T_0 ist. Vernachlässigt man dl/dT und setzt für dn/dT , $d\rho/dT$ und ρ_0 die Werte für Äthylenglykol ein ($dn/dT = -2,6 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$; $d\rho/dT = -7 \cdot 10^{-4} \text{ g.cm}^{-3} \text{ K}^{-1}$; $\rho_0(T_0=20^\circ\text{C}) = 1,1135 \text{ g.cm}^{-3}$), so erhält man mit $s = 0,2$ mm wegen $\Delta L = -(L/\nu) \cdot \Delta\nu$:

$$\Delta\nu = (\nu/L) \cdot 3,39 \cdot 10^{-5} \cdot \Delta T. \quad (3.14)$$

Setzt man für L und ν wieder die obigen Werte ein, so ergibt sich, daß zu einer Frequenzverschiebung von 10 MHz eine Temperaturänderung von 0,23 K notwendig ist. Die Temperaturerhöhung des Farbstoffstrahles im Fokus des Pumplaserstrahles beträgt bei einer Pumpleistung von 3 Watt 1,4 K /39/. Ein Pumplasergerauschen von 1% würde somit eine Temperaturschwan-

kung von $0,014$ K bedeuten; das entspricht einer Frequenzverschiebung von etwa 600 kHz. Das Pumplaserrauschen hat demnach gegenüber den Dickenschwankungen eine vergleichsweise geringe Frequenzverschiebung zur Folge, wenn es gelingt, die Temperatur des Farbstofflösung auf ca. $0,02$ K genau einzuhalten.

3. Auch Resonatorlängenänderungen aufgrund akustischer und mechanischer Schwingungen können eine effektive Laserlinienverbreiterung verursachen.

Diese Längenänderungen gehen analog den unter Punkt 1 besprochenen Dickenschwankungen empfindlich in eine Frequenzverschiebung ein.

Bei unseren theoretischen Überlegungen zum Anregungsmodell nehmen wir jedoch an, daß alle diese Effekte nur zu relativ langsamen Frequenzänderungen führen; es wird also angenommen, daß die Laserfrequenz für Zeiten kleiner als etwa $150 \mu\text{s}$ ($\cong \theta < 370$ für $\tau = 0,41 \mu\text{s}$) nahezu konstant bleibt, d.h. nicht aus dem Zentrum der Absorptionslinie wandert. Denn nur so ist gewährleistet, daß die Atome während ihrer gesamten Flugzeit durch das Anregungsvolumen Laserlicht „sehen“.

3.2. Das Verdampfersystem

Das Verdampfersystem (Abb. 3.6) besteht im wesentlichen aus einer Zr-Folie ($75 \mu\text{m}$), von der die Atome abgedampft werden, deren Geschwindigkeitsverteilung gemessen werden soll. Vom Verdampfer müssen dazu zwei Bedingungen erfüllt werden:

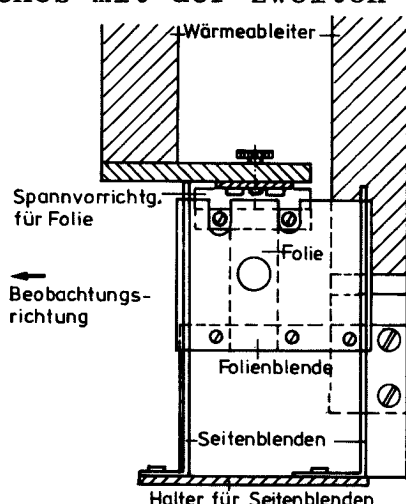
1. Die Zahl der abdampfenden Atome muß zeitlich konstant gehalten werden; das bedeutet, daß wegen der exponentiellen Abhängigkeit der Abdampfrate von der Temperatur letztere bis auf wenige Kelvin konstant gehalten werden muß. Schon eine Temperaturänderung um 10 K hat bei einer Folientemperatur von 2100 K eine Änderung der Abdampfrate um 17% zur Folge (s. Abschnitt 4.2.).
2. Die Aufenthaltszeit der Atome im Laserlicht ist der wich-

tigste Parameter bei der Auswertung der Messungen. Deshalb ist es notwendig, daß der Abstand zwischen Folie und Streuvolumen sehr genau definierbar ist, d.h. für alle Atome muß die Flugstrecke von der Folie ins Streuvolumen gleich lang sein. Wärmeausdehnungen der Folie beim Aufheizen müssen also kompensiert werden, damit die Folienoberfläche möglichst eben bleibt.

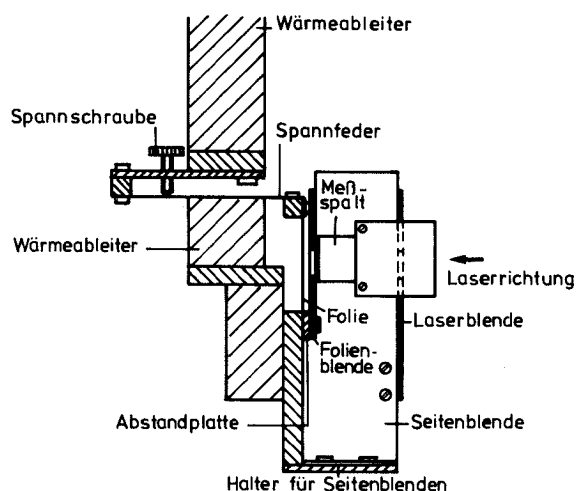
Diese beiden Bedingungen ließen sich folgendermaßen erfüllen:

zu 1.: Die zur Aufheizung der Folie benötigte Spannung (ca. 5 V) wurde sekundärseitig einem Transformator entnommen, dessen Primärseite an eine stabilisierte Spannungsquelle angeschlossen war. Außerdem wurde der Transformator vor Versuchsbeginn für eine längere Zeit (ca. 3 bis 4 st) zur Aufwärmung mit einem der Folie vergleichbaren Widerstand ($R \approx 5 \text{ m}\Omega$) belastet, um so Spannungsänderungen zu unterbinden, die dadurch entstehen, daß der Transformator, aufgewärmt durch Verlustleistungen, während der Messungen seinen Innenwiderstand ändert.

zu 2.: Die Folie ist auf der einen Seite mit einer 1 mm dicken Abstandsplatte fest mit der Folienblende an einer der beiden Halterungen, die gleichzeitig als Wärmeableiter dienen, angeschraubt (s. Abb. 3.6); auf der anderen Seite ist sie an einem als Spannfeder dienenden Stahlblech befestigt, welches mit der zweiten Halterung verbunden ist. Die beiden



Ansicht in Laserrichtung
(Laserblende entfernt)



Ansicht in Beobachtungsrichtung

Abb. 3.6: Das Verdampfersystem: Maßstab etwa 1:2

Halterungen sind elektrisch voneinander isoliert und dienen auch als Stromversorgungsleitungen. Beim Einspannen der Folie wurde die Feder mit einer Spannschraube vorgespannt. Die Wärmeausdehnung der Folie konnte nun durch die in ihre Ausgangslage zurückstrebende Feder kompensiert werden, sodaß die Folieneroberfläche nahezu eben blieb. Außerdem ließ sich so vermeiden, daß die Folie zerrissen wurde, da bei einer Feder die Federkraft bei Annäherung an die Ruhelage gegen Null geht. Letzteres ist in unserem Fall besonders wichtig, da Zr wegen seiner ungünstigen Abdampfzeiten bis nahe an den Schmelzpunkt erhitzt werden muß, um zufriedenstellende Teilchendichten zu erhalten (s. Abschnitt 4.2.1.).

Um zu gewährleisten, daß die abgedampften Atome bis zum Beobachtungsvolumen untereinander oder mit fremden Gasatomen nicht stoßen, muß der Verdampfer im Vakuum installiert werden. Mit Hilfe des Stoßquerschnittes $q_s = \pi(r_1 + r_2)^2$, wo r_1 und r_2 die Radien der stoßenden Atome sind, erhält man für die mittlere freie Weglänge l /40/:

$$l = 1/n \cdot q_s, \quad (3.15)$$

wobei n die Teilchendichte der Atome ist. Im Vakuum des Verdampfersystems wurde ein Druck von $p < 10^{-5}$ mb erreicht; das entspricht einer Teilchendichte von $n \approx 2,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$. Bei diesem Restgasdruck und einer Temperatur von 2100 K erhält man für die mittlere freie Weglänge l im ungünstigsten Fall, daß ein Zr-Atom ($r_1 = 1,6 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$) mit einem Sauerstoffmolekül ($r_2 = 1,8 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$) stößt: $l > 1000 \text{ cm}$.

3.3. Das Nachweissystem

Das Nachweissystem besteht, wie zu Beginn dieses Kapitels schon kurz erwähnt (s. Abb. 3.1, S.33), im wesentlichen aus einem Photomultiplier PM (Valvo: XP 1002), der am Austrittsspalt eines Monochromators (Jarrell-Ash: Auflösungsvermögen:

$\Delta\lambda/\Delta l = 16 \text{ \AA/mm}$, Öffnungsverhältnis 1:10) steht, und aus einer die Strompulse des PM registrierenden Photonenzählapparatur (ORTEC Brookdeal: Photon Counting System 5C1). Mit Hilfe des ebenen Spiegels Sp_3 und der Linsen L_2 ($f=40 \text{ cm}$) und L_3 ($f=20 \text{ cm}$) wird das Beobachtungsvolumen im Maßstab 2:1 in den Eintrittsspalt des Monochromators abgebildet; d.h. durch Einstellen von Höhe und Breite des Monochromatorspaltes werden die Höhe $2R$ und die Dicke d des Beobachtungsvolumens definiert. Die Linse L_2 ist senkrecht zur Folie verstellbar. Auf diese Weise kann der Abstand z zwischen Zr-Folie und Beobachtungsvolumen genau definierbar geändert werden ($\Delta z = \pm 0,1 \text{ mm}$). Der Raumwinkel beträgt ca. $1,2 \cdot 10^{-4}$ sterad, die Quantenausbeute des PM ca. 4%, und die Abbildungs- und Monochromatorverluste belaufen sich auf schätzungsweise 50%. Somit trägt nur der 10^{-5} te Teil der Fluoreszenzphotonen zum Meßsignal bei.

Das Hauptproblem besteht nun darin, das Meßsignal gegenüber der Untergrundstrahlung herauszuheben, die durch die glühende Folie und das eingestrahlte Laserlicht hervorgerufen wird. Da die Beobachtungswellenlänge rund 20 nm von der Laserwellenlänge entfernt liegt, läßt sich das Laserlicht hinreichend gut durch den Monochromator bei Spaltbreiten $< 0,5 \text{ mm}$ unterdrücken. Zur Reduzierung der durch die glühende Folie erzeugten Hintergrundstrahlung wurde in Beobachtungsrichtung eine Seitenblende angebracht, die einen variablen Meßspalt von maximal $1,3 \cdot 1,7 \text{ cm}^2$ offen läßt (s. Abb. 3.6). Alle Teile zur Abschirmung der Streustrahlung wurden zur Absorption dieser Strahlung mit Ruß geschwärzt. Trotz dieser Maßnahmen entstand an den Rändern der Spaltbacken der Seitenblende, an Staubkörchen auf den abbildenden Linsen und dem Spiegel ein nicht zu vernachlässigender Streulichtuntergrund, dessen spektrale Breite durch den Monochromator auf etwa $0,6 \text{ nm}$ reduziert wurde (Dopplerbreite der Emissionalinie kleiner $0,002 \text{ nm}$).

Um trotz dieser Untergrundstrahlung auch bei großen Meßabständen, also kleinen Intensitäten des Meßsignals ein hinreichend gutes Signal/Rausch-Verhältnis zu bekommen, wurden die einzelnen Emissionsphotonen mittels Lock-in-Technik mit der Photonenzählapparatur registriert, deren Funktionsweise im folgenden erläutert werden soll.

Bei vielen Photomultipliern liegen die Strompulse, die von den Elektronen erzeugt werden, die die Photonen aus der Photokathode loslösen, amplitudenmäßig in recht gut definierten Grenzen. Dadurch ist es möglich, diese Pulse von solchen zu trennen, die durch Dynodenrauschen und ähnliches erzeugt werden, deren Amplituden also außerhalb dieser Grenzen liegen. Dazu werden die Anodenstrompulse zunächst verstärkt, bevor sie in einem Diskriminator nach ihrer Pulshöhe sortiert werden (Pulshöhenanalyse); dabei werden die Grenzen des Diskriminators so gesetzt, daß nur von Photonen herrührende Pulse akzeptiert werden, schwächere Rauschpulse jedoch nicht. Am Ausgang des Diskriminators erhält man dann Normpulse, die alle einzeln gezählt werden. Die Vorteile dieser Pulshöhendiskrimination sind also folgende:

1. Rauschpulse niedriger Amplitude tragen nicht zum Ausgangssignal bei.
2. Wenn sich die Verstärkung des Photomultipliers aufgrund von Spannungsschwankungen ändert, werden die Photonenpulse zu höheren oder niedrigeren mittleren Werten verschoben. Bei geeignet gesetzten Diskriminatorgrenzen führt dies jedoch nicht zu einer Änderung des Ausgangssignals.

Was aber geschieht mit den durch das Streulicht erzeugten Falschlicht-Rauschpulsen, die in den Akzeptanzbereich („Fenster“) des Diskriminators fallen? Denn bis jetzt besteht keine Möglichkeit, diese Pulse von den eigentlichen Signalpulsen zu trennen.

Dieses Problem läßt sich mit Hilfe der Lock-in-Technik bewältigen. Das Prinzip dieser Technik besteht darin, daß der Eingang zum Experiment - hier der auf die Folie treffende Laserstrahl - periodisch unterbrochen (gechoppt) wird. Während der Zeit, in der der Eingang unterbrochen ist, werden nur Streulichtpulse, bei offenem Eingang Signal- und Rauschpulse registriert. Um Signal- und Rauschpulse von den Nur-Rauschpulsen zu trennen, werden mit Wechsellichtfrequenz (Chop-Frequenz) bzw. um 180° phasenverschobener Frequenz zwei Kanäle A und B angesteuert: im Kanal A werden bei offenem Eingang Signal- und Rauschpulse und im Kanal B bei geschlossenem Eingang

nur Streulichtpulse registriert. Dazu ist es wichtig, daß zum einen eine klare Trennung zwischen Signal- und Rausch- und Nur-Rauschzählraten vorgenommen wird, d.h. Schaltübergänge in die beiden Kanäle vermieden werden. Zum andern müssen die Meßzeiten für beide Kanäle exakt gleich lang sein.

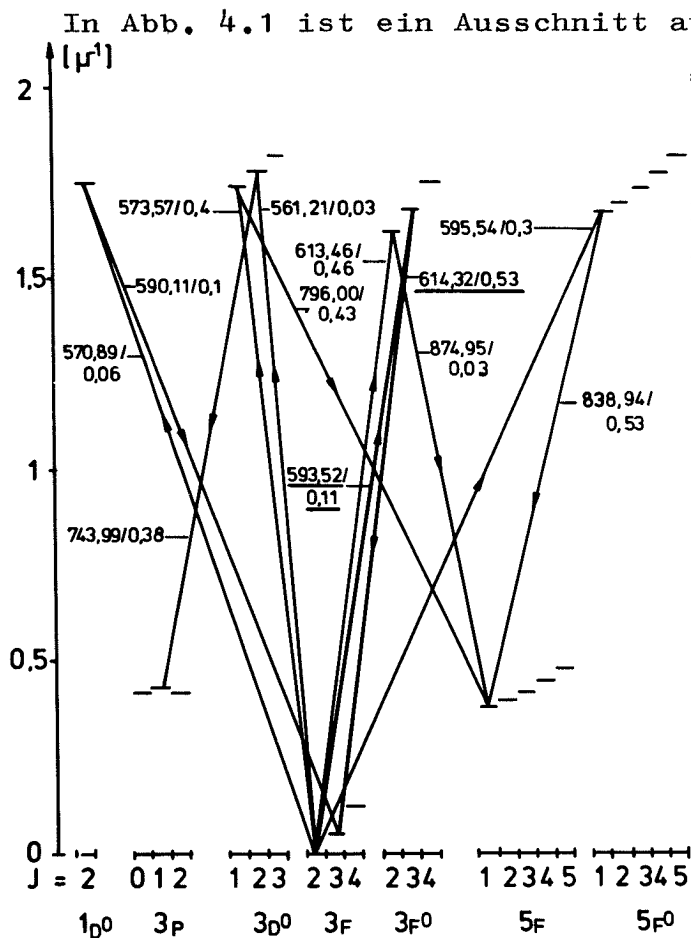
Die Verbesserung des Signal/Rausch-Verhältnisses durch dieses Lock-in-Verfahren ist erheblich; denn für einen Rauschphotonenfluß, der der Poisson-Statistik gehorcht, streut die Zählrate N , die in exakt gleichen Zeiten gemessen wird, um einen Mittelwert mit dem mittleren Fehler $\sqrt{N}$. Das bedeutet, daß die Zahl der Signalpulse größenordnungsmäßig im Bereich von $\sqrt{N}$ liegen kann, um noch gut vom Untergrund unterschieden werden zu können.

4. Messung der Geschwindigkeitsverteilung abgedampfter Zr- Atome

4.1. Versuchsvorbereitungen

Bevor mit der Versuchsdurchführung begonnen werden kann, müssen einige wichtige Vorbereitungen getroffen werden. Dies sind im wesentlichen die Wahl des Anregungs- und Emissionsüberganges, die Wellenlängenmessung und die Abstandsmessung.

4.1.1. Auswahl des Absorptions- und Emissionsüberganges



Bei den Messungen wurden für die Absorption der Übergang $a^3F_2 \rightarrow z^3F_3^0$ und für die Emission der Übergang $z^3F_3^0 \rightarrow a^3F_3$ gewählt. Für diese Wahl waren mehrere Gründe ausschlaggebend:

1. Die Übergangswahrscheinlichkeit A_{23} in den metastabilen Zustand a^3F_3 ist etwa 5mal größer als A_{21} in den Grundzustand a^3F_2 und mehr als 3mal größer als alle übrigen Übergangswahrscheinlichkeiten.

Abb. 4.1: Ausschnitt aus dem Termschema von Zr I nach Ch.E. Moore /43/; die erste Zahl an einer Linie steht für die Wellenlänge in nm, die zweite für die Übergangswahrscheinlichkeit in $1/\mu s$; die Termenergien sind in $1/\mu$ angegeben ($1/\mu \hat{=} 1,238 \text{ eV}$).

keiten zusammengekommen. Das nächstbeste Verhältnis von Absorptions- und Emissionsübergangswahrscheinlichkeiten von etwa 2 zeigen die Übergänge $a^3F_2 \rightarrow z^5F_1^0 \rightarrow a^5F_1$. Vergleichbare Verhältnisse sind nur bei einigen Übergängen von metastabilen Ausgangsniveaus zu finden. Die Emissionslinien dieser Übergänge liegen jedoch alle im infraroten Wellenlängenbereich.

2. Bei einer Folientemperatur von 2100 K tritt in der Umgebung der Folie ein zusätzlicher Streulichtuntergrund durch Wärmestrahlung auf, der nach dem Planckschen Strahlungsgesetz nicht vernachlässigt werden kann. Dieser Untergrund ist im Wellenlängenbereich um 800 nm etwa um einen Faktor 7 größer als im Bereich um 600 nm, in dem die Emissionslinie liegt ($\lambda_E = 614,3$ nm). Außerdem nimmt bei allen Photomultipliern die Photokathodenempfindlichkeit und die Quantenausbeute zum infraroten Licht hin stark ab.
3. Im Wellenlängenbereich der Absorptionslinie ($\lambda_A = 593,52$ nm) ist die Laserleistung am größten, weil dieser Bereich im Maximum der Verstärkungskurve des Farbstoffes Rhodamin 6G liegt. Außerdem neigt der Laser in diesem Bereich bedeutend weniger zu Modensprüngen als am Rand der Verstärkungskurve.

4.1.2. Einstellung der Absorptionswellenlänge

Zur Auffindung der Absorptionswellenlänge wird ein Vergleichsspektroskop benutzt, dessen Auflösungsvermögen im Bereich der Dopplerverbreiterung liegen sollte (ca. 5,6 GHz = 6 pm bei 600 nm), also $\lambda/\Delta\lambda = 1,0 \cdot 10^5$. Das im Spektroskop verwendete Gitter besitzt 9000 Striche. Beobachtet man in 20. ordnung, so ist das theoretische Auflösungsvermögen /15/:

$$\lambda/\Delta\lambda = m \cdot N = 1,8 \cdot 10^5 \quad (4.1)$$

(m = Ordnungszahl, N = Gesamtzahl der Gitterstriche); Wellenlängenunterschiede von 3,5 pm werden theoretisch noch aufgelöst. Für ein Reflektionsgitter in Autokollimation gilt die

Gitterformel /15/:

$$m \cdot \lambda = 2d \cdot \sin \varphi, \quad (4.2)$$

wo d die Gitterkonstante, φ der Winkel zwischen einfallendem Lichtstrahl und der Gitternormalen und m die Beobachtungsordnung sind.

Um λ auf 6 pm genau bestimmen zu können, müßte man den Winkel φ mit größter Genauigkeit (< 1 Bogensekunde) ablesen können. Diese Schwierigkeit läßt sich umgehen, wenn man die unbekannte Linie mit bekannten Linien einer Spektrallampe (hier Ne-Lampe) vergleicht. Man beobachtet durch ein Okular mit Stricheinteilung zwei bekannte Ne-Linien und die unbekannte Laserlinie. Sind ε und δ kleine Winkel, die in Skalenteilen der Okularstricheinteilung gemessen werden, so gilt mit λ_1 , λ_2 als bekannten Linien und λ_L als gesuchter Laserwellenlänge nach Gl.(4.2):

$$\begin{aligned} m_1 \lambda_1 &= \Lambda_1 = 2d \cdot \sin \varphi, \\ m_2 \lambda_2 &= \Lambda_2 = 2d \cdot \sin(\varphi + \varepsilon) = \Lambda_1 + 2d \cdot \varepsilon \cdot \cos \varphi, \\ m_L \lambda_L &= \Lambda_L = 2d \cdot \sin(\varphi + \delta) = \Lambda_1 + 2d \cdot \delta \cdot \cos \varphi. \end{aligned}$$

Daraus erhält man:

$$\Lambda_L = (\delta/\varepsilon) \cdot (\Lambda_2 - \Lambda_1) + \Lambda_1, \quad (4.3)$$

woraus sich Λ_L nach einer Grobfestlegung von m (z.B. durch einen Monochromator) mit der geforderten Genauigkeit von 6 pm bestimmen läßt.

4.1.3. Streuvolumen- und Abstandsmessung

Anregungs- und Streuvolumen haben den gleichen Durchmesser bzw. die gleiche Höhe $2R = 8$ mm (s. Abb. 2.1, S.5). Die Dicke d des Streuvolumens wurde auf 0,8 mm festgelegt. Diese Dicke ist, wie im folgenden Abschnitt 4.2.2. gezeigt werden wird, ein guter Kompromiss zwischen ausreichender Emissionslichtintensität und räumlichem Auflösungsvermögen.

Der wichtigste Parameter bei der Berechnung der Anregungs-

wahrscheinlichkeit ist die normierte Zeit $\Theta = t/\tau = z/(v_z \tau)$, die man bei Kenntnis des Abstandes z und der Geschwindigkeitskomponente v_z errechnen kann. Es ist daher notwendig, daß der Abstand so genau wie möglich gemessen wird. Desweiteren ist die Geschwindigkeitsverteilung nach Gl.(2.28) für kleine Abstände z von der Folie stark abstandsabhängig, sodaß auch hier beim Vergleich von Theorie und Experiment ungenau gemessene Abstände zu verhältnismäßig großen Abweichungen führen können.

Die Abstände wurden durch Verschiebungen der Linse L_2 (Abb. 3.1, S.33) auf einem Mikrometerschlitten parallel zum einfallenden Laserstrahl geändert (s. auch Abschnitt 3.3.). Zur Festlegung des Nullpunktes ($z=0$) wurde die glühende Kante der Folie in den auf Foliendicke eingeengten Monochromatorspalt abgebildet, sodaß sich die Abstände auf ca. $\pm 0,1$ mm genau bestimmen ließen; die Ortsauflösung ist also besser als 3,3%, auch für die kleinsten Meßabstände ($3 \text{ mm} \leq z \leq 14 \text{ mm}$).

4.2. Vorversuche

In diesem Abschnitt soll die Abhängigkeit des Meßsignals von der Folientemperatur und der Streuvolumendicke untersucht werden, die während der eigentlichen Messungen der Geschwindigkeitsverteilung nur langsam veränderlich bzw. konstant sind. Daraus ergeben sich Möglichkeiten zu Korrekturen, die an den Meßkurven gegebenenfalls vorzunehmen sind.

4.2.1. Einfluß der Folientemperatur auf das Meßsignal

Bei gegebener Temperatur T läßt sich der zugehörige Dampfdruck $p(T)$ mit Hilfe der Beziehung von Clausius-Clapeyron

$$dp/dT = \ell/T \cdot \Delta V \quad (4.4)$$

berechnen /21/. ΔV ist die Volumendifferenz zwischen zwei Phasen - hier fest und dampfförmig - und ℓ die Verdampfungs-

wärme. Benutzt man die Zustandsgleichung für ideale Gase $pV = RT$ und setzt man $\Delta V = V_{\text{Dampf}} - V_{\text{fest}} \approx V_{\text{Dampf}}$, so läßt sich Gl.(4.4) integrieren, und man erhält:

$$p \sim \exp(-\epsilon/RT). \quad (4.5)$$

Der Dampfdruck $p(T)$ hängt demnach exponentiell von der Temperatur ab. Kennt man die Temperatur T und den zugehörigen Dampfdruck $p(T)$ (in praxi aus Dampfdruckkurven zu entnehmen), so läßt sich die Dichte n_0 der von der Folie abgedampften Atome nach der kinetischen Gastheorie bestimmen zu:

$$n_0 = p/kT \quad (4.6)$$

$$= 9,66 \cdot 10^{18} \frac{p[\text{Torr}]}{T[\text{K}]} \text{ cm}^{-3} \quad (4.6a)$$

$$= 7,25 \cdot 10^{16} \frac{p[\text{Pa}]}{T[\text{K}]} \text{ cm}^{-3} \quad (4.6b)$$

So erhalten wir für die Teilchendichte n_0 unmittelbar vor der Zr-Folie bei einer Temperatur von 2100 K, zu der ein Dampfdruck $p(T) = 8,5 \cdot 10^{-6}$ Torr gehört:

$$n_0 = 3,9 \cdot 10^{10} \text{ Atome/cm}^3.$$

Von diesen Atomen können jedoch nur diejenigen angeregt werden, die die Folie im Grundzustand verlassen. Ihre Dichte n_{01} erhält man mit Hilfe der Boltzmannschen Formel /14/:

$$n_{0s}/n_{01} = (g_s/g_1) \cdot \exp(-E_s/kT), \quad (4.7)$$

mit $n_{01} = n_0 \cdot g_1/Z$ und der Zustandssumme

$$Z = \sum_{s=1}^{\infty} g_s \cdot \exp(-E_s/kT). \quad (4.8)$$

Dabei stehen n_{0s} , E_s und g_s für Dichte, Anregungsenergie und statistisches Gewicht im s -ten Quantenzustand und n_{01} und g_1 für die entsprechenden Größen im Grundzustand; $E_1 = 0$. k ist die Boltzmannsche Konstante. In Tabelle 4.1 sind für die untersten Terme von Zr (s. Abb. 4.1) die auf den Grundzustand normierten Boltzmannschen Faktoren $(g_s/g_1) \exp(-E_s/kT)$ für drei verschiedene Temperaturen angegeben. Ihre Summe ergibt die auf g_1 normierte Zustandssumme Z/g_1 , deren Fehler jeweils kleiner als 1% ist. Bei einer Temperatur von 1500 K werden demnach 1/2,44, bei 1800 K 1/2,73 und bei 2100 K 1/3,02 der Atome im Grundzustand abgedampft.

Um die Meßkurven bei eventuell auftretenden Temperaturände-

Term	Energie		statist. Gewicht	$(g_s/g_1) \exp(-E_s/kT)$		
	in $1/\mu$	in eV		T=1500 K	T=1800 K	T=2100 K
$3F_2$	0,0	0,0	5	1,000	1,000	1,000
$3F_3$	0,057	0,071	7	0,811	0,888	0,948
$3F_4$	0,1241	0,154	9	0,548	0,668	0,770
$3P_0$	0,4197	0,520	1	0,004	0,007	0,011
$3P_1$	0,4376	0,542	3	0,009	0,018	0,030
$3P_2$	0,4186	0,518	5	0,018	0,035	0,057
$1D_2$	0,5102	0,632	5	0,008	0,017	0,030
$5F_1$	0,4871	0,603	3	0,006	0,012	0,021
$5F_2$	0,5023	0,622	5	0,008	0,018	0,032
$5F_3$	0,5250	0,650	7	0,009	0,021	0,039
$5F_4$	0,5541	0,686	9	0,009	0,022	0,041
$5F_5$	0,5889	0,729	11	0,008	0,020	0,039
Z/g_1				2,438	2,726	3,018

Tabelle 4.1: Boltzmannsche Faktoren $(g_s/g_1) \exp(-E_s/kT)$, normiert auf den Grundzustand 1 für drei verschiedene Temperaturen T; die Energiewerte in $1/\mu$ sind aus [41] entnommen (s. auch Abb. 4.1)

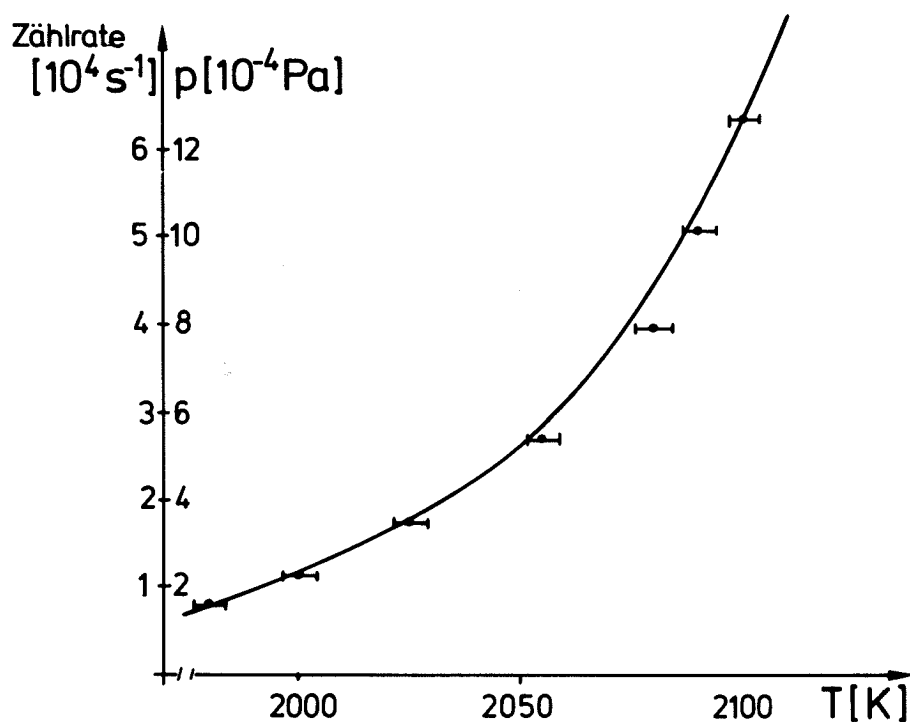


Abb. 4.2: Vergleich von Dampfdruck $p(T)$ (durchgezogene Linie) und Photonen-zählrate in Abhängigkeit von der Folientemperatur

rungen korrigieren zu können, wurde die Zählrate der Photonenzählapparatur in Abhängigkeit von der pyrometrisch bestimmten Folientemperatur gemessen; dies bei konstantem Abstand z und konstanter Geschwindigkeitskomponente v_z . In Abb. 4.2 ist die Zählrate über der Temperatur aufgetragen. Zusätzlich ist der der Temperatur entsprechende Dampfdruck $p(T)$ angegeben, der aus einer Tabelle entnommen wurde. Man sieht, daß die Zählrate, wie zu erwarten, proportional zum Dampfdruck ansteigt. Die Abweichungen liegen innerhalb der Ablesegenauigkeit der Temperatur am Pyrometer von etwa ± 4 K.

4.2.2. Einfluß der Streuvolumendicke auf das Meßsignal

Das Meßsignal ist nach Gl.(2.22) proportional zur Dichte n_2 der angeregten Atome im Streuvolumen und zur Übergangswahrscheinlichkeit A_{23} in den metastabilen Zustand. Die Dichte n_2 ist wiederum von der Anregungswahrscheinlichkeit $F(S_m, \alpha, \theta)$ abhängig, deren Wert für $\theta = z/v_z \tau$, also in der Mitte des Streuvolumens berechnet wird (s. auch Abb. 2.1, S.5); d.h. die endliche Dicke des Streuvolumens wird nicht berücksichtigt. Dies ist jedoch nur solange zulässig, wie sich F in dem Zeitintervall, das durch die Eintrittszeit $\theta_1 = (z-d/2)/v_z \tau$ der Atome ins Streuvolumen und durch ihre Austrittszeit $\theta_2 = (z+d/2)/v_z \tau$ aus dem Streuvolumen bestimmt ist, annähernd linear mit θ ändert (Abb. 4.3), d.h. solange der „Schwerpunkt“ von F in der Mitte des Streuvolumens liegt.

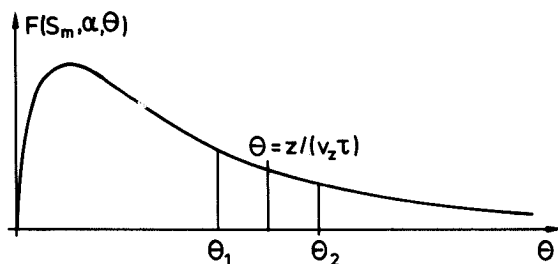


Abb. 4.3: Zur Berücksichtigung der Streuvolumendicke

Wie aus der Tabelle 4.2 zu entnehmen ist, sind die Abweichungen von F zur Linearität innerhalb des Zeitintervalls (θ_1, θ_2) bei der benutzten Streuvolumendicke d vom 0,8 mm kleiner als 1,2%, wenn der Ab-

d = 0,8 mm				F(θ_1)	F(θ_2)	$\bar{F}$	F(θ)	$\Delta F\%$
v_z [m/s]	θ_1	θ_2	θ					
100	65,0	85,0	75,0	0,175	0,153	0,164	0,163	0,6
200	32,5	42,5	37,5	0,252	0,218	0,235	0,233	0,7
500	13,0	17,0	15,0	0,423	0,360	0,391	0,387	1,0
1000	6,5	8,5	7,5	0,664	0,556	0,610	0,604	1,0
d = 2,0 mm								
100	50,0	100	75,0	0,201	0,141	0,171	0,163	4,6
200	25,0	50,0	37,5	0,290	0,201	0,245	0,233	5,1
500	10,0	20,0	15,0	0,499	0,328	0,414	0,387	6,4
1000	5,0	10,0	7,5	0,784	0,499	0,642	0,604	5,9

Tabelle 4.2: Prozentuale Abweichung $\Delta F = \bar{F} - F(\theta)$ mit $\bar{F} = F(\theta_2) + (F(\theta_1) - F(\theta_2))/2$ für verschiedene Streuvolumendicken d (0,8 mm und 2 mm) und Geschwindigkeitskomponenten v_z ; es bedeuten: $\theta_1 = (z-d/2)/v_z \tau$, $\theta_2 = (z+d/2)/v_z \tau$, $z=3$ mm, $\tau=0,4$ μ s; F ist jeweils zu $S_m=10$, $\alpha=0,15$ und $g=1,4$ nach Gl.(2.20) berechnet worden.

stand der Streuvolumenmitte von der Folienoberfläche 3 mm beträgt. Selbst bei Streuvolumendicken von 2 mm ist die Abweichung zum exakten F -Wert immer noch kleiner als 10%. Das bedeutet, daß bei der Auswertung der Messungen auf eine von der Streuvolumendicke abhängige Korrektur verzichtet werden kann, wenn die Streuvolumendicke nicht in die Größenordnung des Abstandes kommt. Dies ließ sich auch experimentell bestätigen (ohne Abbildung).

4.3. Abhängigkeit des Meßsignals von der Laserleistungsdichte, Einfluß der Sättigungsverbreiterung

Im folgenden untersuchen wir nun die Abhängigkeit der Anregungswahrscheinlichkeit F vom Parameter S_m , d.h. von der Laserleistungsdichte ϕ_L . Auf diese Weise können wir Auskunft darüber erhalten, ob die physikalischen Annahmen über den Laser gerechtfertigt sind, d.h. im wesentlichen, ob die instan-

tane Breite des Lasers wie eine δ -Distribution behandelt werden darf oder nicht.

Die Dichte n der Atome im Streuvolumen ist bei konstantem Abstand und konstanter Folientemperatur unveränderlich. Dann ist die Dichte n_2 der angeregten Atome - und damit die Intensität des Meßsignals - bei konstanter Laserfrequenz, d.h. bei konstanter Geschwindigkeitskomponente v_z und somit konstantem θ wegen F nur noch von der Laserleistungsdichte ϕ_L abhängig. Kennt man also θ , so kann man die Abhängigkeit der F -Funktion von ϕ_L bestimmen. Um θ eindeutig zu bestimmen, muß man v_z kennen, was nur bei Kenntnis des Nullpunktes ($v_z=0$) möglich ist. Dazu muß für die unterschiedlichen Laserleistungsdichten ϕ_L jeweils das gesamte Geschwindigkeitsspektrum aufgenommen werden.

4.3.1. Aufnahme der Meßkurven und ihre Beschreibung

Ein typisches Beispiel einer Meßkurve ist in Abb. 4.4 gezeigt. Zusätzlich zur Intensität des Fluoreszenzlichtes, die proportional zur Dichte n_2 der angeregten Atome ist, wird die Laserleistung aufgezeichnet. Dieses Signal ist proportional zur Laserleistungsdichte ϕ_L , die auf die von der Blende freigegebene Targetfläche trifft. Außerdem wird es mit Frequenzmarkierungen versehen, die zur Auswertung in Geschwindigkeiten umgerechnet werden. Die Frequenzmarkierungen erhält man dadurch, daß man das Ausgangssignal des Spektrum-Analysators während des Durchstimmens des Farbstofflasers auf einem Oszillographen beobachtet und immer dann, wenn das Ausgangssignal eine Skaleneinheit des Oszillographenschirmes überquert, die Meßleitung von der Photozelle Ph_2 zum Schreiber kurzzeitig unterbricht (s. Abb. 3.1, S.33).

Die Leistungsdichten ϕ_L des Lasers lagen typisch zwischen 10 und 15 mW/cm², die Folientemperaturen bei etwa 2100 K. Die Aufnahmezeit einer Meßkurve betrug zwischen 3 und 4 Minuten; für die Aufnahme einer ganzen Meßreihe, also einer Schar solcher Meßkurven zu verschiedenen Laserleistungsdichten ϕ_L

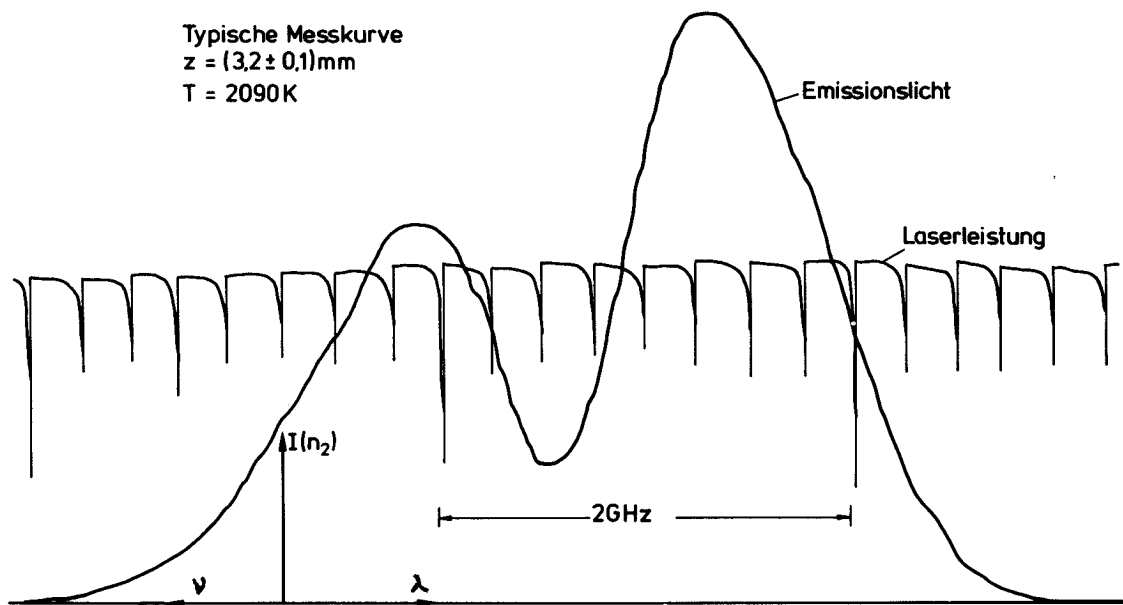


Abb. 4.4: Beispiel einer Meßkurve; die Intensität $I(n_2)$ ist proportional zur Dichte n_2 der angeregten Atome

(oder, wie bei den späteren Messungen, zu verschiedenen Abständen z) benötigte man 60 bis 90 Minuten. Zur Leistungsreduzierung wurden Graufilter in den Laserstrahl gestellt, deren Durchlässigkeit vorher experimentell bestimmt worden war. Der Abstand zwischen Streuvolumen und Folienoberfläche betrug etwa 3,2 mm.

Vor der Aufnahme jeder Meßkurve wurde die Folientemperatur pyrometrisch gemessen, da während der langen Gesamtmeßzeiten nicht auszuschließen war, daß sich z.B. durch Materialabdampfung der Widerstand der Folie und damit ihre Temperatur ändert. Diese zeitlichen Temperaturänderungen wurden aber während der Aufnahmezeit einer Meßkurve für vernachlässigbar gering gehalten.

Wie man in Abb. 4.4 sieht, besitzt die gesamte Meßkurve zwei Maxima. Das linke niedrigere Maximum rührt vom Fluoreszenzlicht der Atome her, die von dem an der Folienoberfläche reflektierten Laserlicht angeregt worden sind. Wegen dieser zweimaligen Anregung der Atome besteht eine im Prinzip einfache Bestimmung für die Geschwindigkeitskomponente $v_z=0$, die im Minimum der Meßkurve liegen muß.

Erstaunlicherweise wird jedoch das Meßsignal im Minimum

nicht Null (auch nicht, wie sich später zeigte, bei großen Meßabständen), obwohl nach der Theorie der Geschwindigkeitsverteilung ($v_z=0$)-Teilchen gar nicht vorhanden sein sollten (s. Abschnitt 2.6.). Außerdem sollten die Atome mit kleinen v_z -Komponenten wegen ihrer langen Aufenthaltsdauer im anregenden Laserlicht längst in metastabile Zustände übergepumpt, also nicht mehr zu beobachten sein oder erst gar nicht wegen schräger Abdampfwinkel ins Streuvolumen gelangen. Auch der Effekt der Leistungsverbreiterung kann das Signal im Minimum nicht erklären: diese Verbreiterung ist selbst im ungünstigsten Fall - großes S_m und lange Zeiten θ , s. Abschnitte 2.3. und 2.4. - immer kleiner als 1 MHz, ist also gegenüber der effektiven Breite des Lasers von etwa 10 bis 15 MHz, was einer Geschwindigkeitsauflösung von 6 bis 9 m/s entspricht, vernachlässigbar klein.

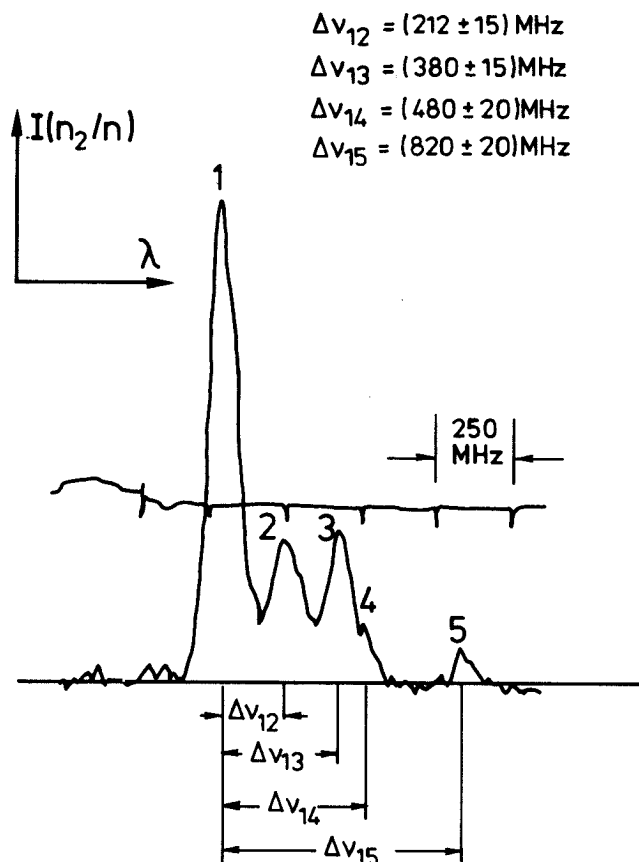
4.3.2. Isotopieverschiebung und Hyperfeinstrukturaufspaltung

Dieser Effekt läßt sich aber - wenigstens größtenteils - dadurch erklären, daß es keinen einheitlichen Nullpunkt gibt, weil Zr aus mehreren Isotopen besteht: zu ca. 51,4% aus ^{90}Zr , zu 11,2% aus ^{91}Zr , zu 17,1% aus ^{92}Zr , zu 17,5% aus ^{94}Zr und zu 2,8% aus ^{96}Zr . Diese unterschiedlich schweren Isotope zeigen das Phenomen der Isotopieverschiebung: das ist die Tatsache, daß die Schwerpunkte der Feinstruktur- (FS)-Linien der verschiedenen Isotope eines Elementes nicht zusammenfallen /45/. Das bedeutet, daß die unverschobene Resonanzlinie ($v_z=0$) für jedes Isotop bei einer anderen Frequenz zu finden ist. Das Isotop ^{91}Zr besitzt außerdem einen Kernspin von $I = 5/2$ /46,47/, sodaß jeder FS-Term noch in eine Reihe von Hyperfeinstruktur- (HFS)-Termen aufspaltet /45/.

Zur Messung der Isotopieverschiebung der FS-Linien wurde das Laserlicht parallel an der Folie in einem Abstand von ca. 10 mm vorbeigestrahlt. Anstelle der kreisförmigen Blende vor der Folie wurde eine rechteckförmige Blende angebracht. Ihre und die Höhe des Streuvolumens $2R$ wurden senkrecht zur Beo-

bachtungsrichtung auf 1 mm begrenzt; die Tiefe parallel zur Beobachtungsrichtung betrug ca. 10 mm, um eine genügend hohe Intensität zu erhalten. Die volle Halbwertsbreite des Dopplerspektrums, die für Zr bei einer Temperatur von 2100 K rund 1,2 GHz beträgt (s. Abschnitt 2.2.), wurde auf diese Weise um mehr als einen Faktor 10 verkleinert und betrug ca. 100 MHz, schmal genug, um die Isotopieverschiebung aufzulösen.

Das Resultat einer solchen Messung ist in Abb. 4.5 in einer Meßkurve gezeigt: Die Maxima 1, 2 und 3 sind eindeutig aufgrund eines Intensitätsvergleiches den Isotopen ^{90}Zr , ^{92}Zr und ^{94}Zr zuzuordnen. Der FS-Term von ^{91}Zr , der zwischen ^{90}Zr und ^{92}Zr liegen muß, konnte nicht aufgelöst werden. Dies liegt daran, daß die FS-Niveaus $a^3\text{F}_2$ und $z^3\text{F}_3^0$ wegen des Kernspins $I = 5/2$ in 5 bzw. 6 HFS-Terme aufspalten. Deshalb ist erstens nicht zu erwarten, daß eine HFS-Linie mit der FS-Linie zusammenfällt, und zweitens wird die Intensität auf 5 relativ starke und weitere 9 schwache HFS-Linien aufgeteilt.



Die beiden kleinen Maxima 4 und 5 können also durchaus von zwei starken HFS-Linien herrühren. Das Maximum 5 kann aber auch aufgrund eines Intensitätsvergleiches dem Isotop ^{96}Zr zugeschrieben werden. Für den Zweck der im folgenden Abschnitt beschriebenen Entzerrung der Meßkurven in isotonenreine Kurven genügt jedoch die Kenntnis der spektralen Lage der Maxima und ihre relativen Intensitäten.

Zur Bestimmung der Frequenzdifferenzen $\Delta\nu_{12}$ bis $\Delta\nu_{15}$ wurden die Messungen mehrere Male durchgeführt, und man erhielt:

Abb. 4.5: Isotopieverschiebung und HFS-Aufspaltung

$$\begin{aligned}
\Delta\nu_{12} &= (212 \pm 15) \text{ MHz}, \\
\Delta\nu_{13} &= (380 \pm 15) \text{ MHz}, \\
\Delta\nu_{14} &= (480 \pm 20) \text{ MHz}, \\
\Delta\nu_{15} &= (820 \pm 20) \text{ MHz}.
\end{aligned}
\tag{4.9}$$

4.3.3. Entzerrung und Nullpunktbestimmung

Die obigen Messungen zur Isotopieverschiebung zeigen eindeutig, daß die Meßkurven aus einer Überlagerung von mindestens fünf gegeneinander um den Betrag der Isotopieverschiebung bzw. der HFS-Aufspaltung verschobenen Geschwindigkeitspektren bestehen. Zur Bestimmung der Geschwindigkeitsverteilung müssen wir demnach die Meßkurven entzerren. Dazu gehen wir folgendermaßen vor:

Zunächst wird die Meßkurve geglättet. Man entnimmt der gemessenen Kurve in festen Frequenzabständen (z.B. 50 oder 100 MHz) Meßpunkte, die zuerst mit eventuell notwendigen Korrekturen der Laserleistungsdichte ϕ_L versehen werden; d.h. der Meßwert wird - wegen seiner Abhängigkeit von der Anregungswahrscheinlichkeit F , die nach Gl.(2.23) bei genügend hoher Leistungsdichte näherungsweise wurzelförmig von dieser abhängt -, bei Schwankungen von ϕ_L durch einen entsprechenden Faktor korrigiert. Ähnlich verhält es sich mit der Temperaturkorrektur, deren Wert aus Abb. 4.2 als Faktor entnommen wird; mit ihm wird die gesamte Meßkurve multipliziert. Letztere Korrektur ist jedoch nur bei einer Meßreihe gegebenenfalls notwendig. Durch die so korrigierten Meßpunkte wird eine glatte Linie gezogen, wie in Abb. 4.6 geschehen.

Nun kann der Entzerrungsprozess durchgeführt werden. Da die Frequenzabstände zwischen den fünf Maxima der Abb. 4.5 in guter Näherung ganzzahlige Vielfache von 100 MHz sind, läßt sich die Entzerrung ohne besondere Schwierigkeiten durchführen. Sei $J(\nu)$ die Intensität des Meßsignals und $I(\nu)$ der Beitrag des Isotopes ^{90}Zr zum Meßsignal jeweils bei der Frequenz ν ; a , b , c und d seien die Wichtungsfaktoren der Maxima 2, 3,

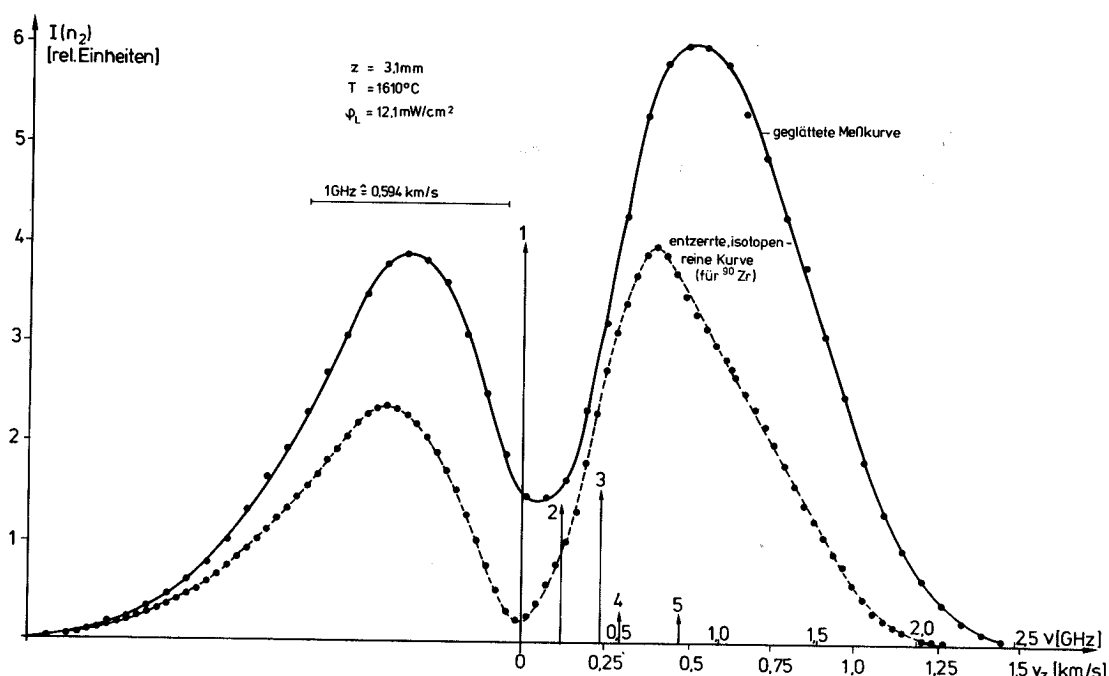


Abb. 4.6: Glättung und Entzerrung der in Abb. 4.4 gezeigten Meßkurve; die relativen Intensitäten der einzelnen Isotope bzw. HFS-Linien und deren Frequenzverschiebung sind - bezogen auf das Maximum der entzerrten Kurve - histogrammisch dargestellt.

4 und 5 in Abb. 4.5, normiert aus das Maximum 1. Die Werte für die Faktoren erhält man durch graphische Integration aus Abb. 4.5. Dadurch werden auch eventuell unter den einzelnen Maxima liegende nicht aufgelöste HFS-Linien berücksichtigt. Es ergab sich im Mittel: $a = 0,33$, $b = 0,38$, $c = 0,07$, $d = 0,065$. Wir beginnen mit der Entzerrung am linken Ende der geglätteten Meßkurve. (Im Argument von J und I steht jeweils die Frequenzdifferenz in GHz.)

$$\begin{aligned}
 I(0) &= J(0) \\
 I(0,1) &= J(0,1) \\
 I(0,2) &= J(0,2) - a \cdot I(0) \\
 I(0,3) &= J(0,3) - a \cdot I(0,1) \\
 I(0,4) &= J(0,4) - a \cdot I(0,2) - b \cdot I(0) \\
 I(0,5) &= J(0,5) - a \cdot I(0,3) - b \cdot I(0,1) - c \cdot I(0) \\
 I(0,6) &= J(0,6) - a \cdot I(0,4) - b \cdot I(0,2) - c \cdot I(0,1) \\
 I(0,7) &= J(0,7) - a \cdot I(0,5) - b \cdot I(0,3) - c \cdot I(0,2) \\
 I(0,8) &= J(0,8) - a \cdot I(0,6) - b \cdot I(0,4) - c \cdot I(0,3) - d \cdot I(0) \\
 I(0,9) &= J(0,9) - a \cdot I(0,7) - b \cdot I(0,5) - c \cdot I(0,4) - d \cdot I(0,1) \\
 &\vdots
 \end{aligned} \tag{4.10}$$

In Abb. 4.6 ist die auf diese Weise entzerrte Meßkurve ge-

strichelt eingezeichnet. Die Entzerrung nach den Gln.(4.10) ist hier zur Kontrolle zweimal durchgeführt worden, wobei der Anfang beim zweiten Mal um 50 MHz verschoben wurde, d.h. $I(0,05) = J(0,05)$, $I(0,15) = J(0,15)$, usw. Die Intensität - als Funktion der Geschwindigkeitskomponente v_z aufgetragen - ist im Minimum um mehr als einen Faktor 6 kleiner geworden. Der Restbetrag dürfte von den nicht aufgelösten und deshalb bei der Entzerrung nicht berücksichtigten HFS-Linien von ^{91}Zr herrühren. Desweiteren sind in Abb. 4.6 die relativen Intensitäten der anderen Isotope bzw. HFS-Terme und deren Frequenzverschiebung zum Nullpunkt von ^{90}Zr dargestellt.

Da die gestrichelte Doppelkurve in Abb. 4.6 die gemessene Intensitätsverteilung des Fluoreszenzlichtes für ein einziges Isotop darstellt (hier ^{90}Zr), muß die Geschwindigkeitskomponente $v_z=0$ in ihrem Minimum liegen. Zur Auffindung seiner Lage halbiert man jeweils den Abstand zwischen den Halbwertspunkten der beiden Kurven. Auf diese Weise läßt sich der Nullpunkt mit einer Genauigkeit besser als 20 MHz angeben; dies entspricht in der Geschwindigkeitsskala einer Genauigkeit von 12 m/s.

4.3.4. Auswertung und Diskussion

In Abb. 4.7 sind die zu verschiedenen Laserleistungsdichten ϕ_L gemessenen und nach den Gln.(4.10) entzerrten Intensitätsverteilungen des Fluoreszenzlichtes als Funktion der Geschwindigkeitskomponente v_z aufgetragen. Temperaturkorrekturen und eventuell durch Schwankungen der Laserleistungsdichte bedingte Korrekturen sind berücksichtigt.

Aus den Meßergebnissen in Abb. 4.7 läßt sich die gesuchte Abhängigkeit des Meßsignals von der Laserleistungsdichte ϕ_L ablesen. In Abb. 4.8 ist die zur Anregungswahrscheinlichkeit F proportionale Intensität $I(n_2)$ in relativen Einheiten als Funktion von ϕ_L im doppelt-logarithmischen Maßstab aufgetragen, und zwar für drei verschiedene Parameterwerte von θ ,

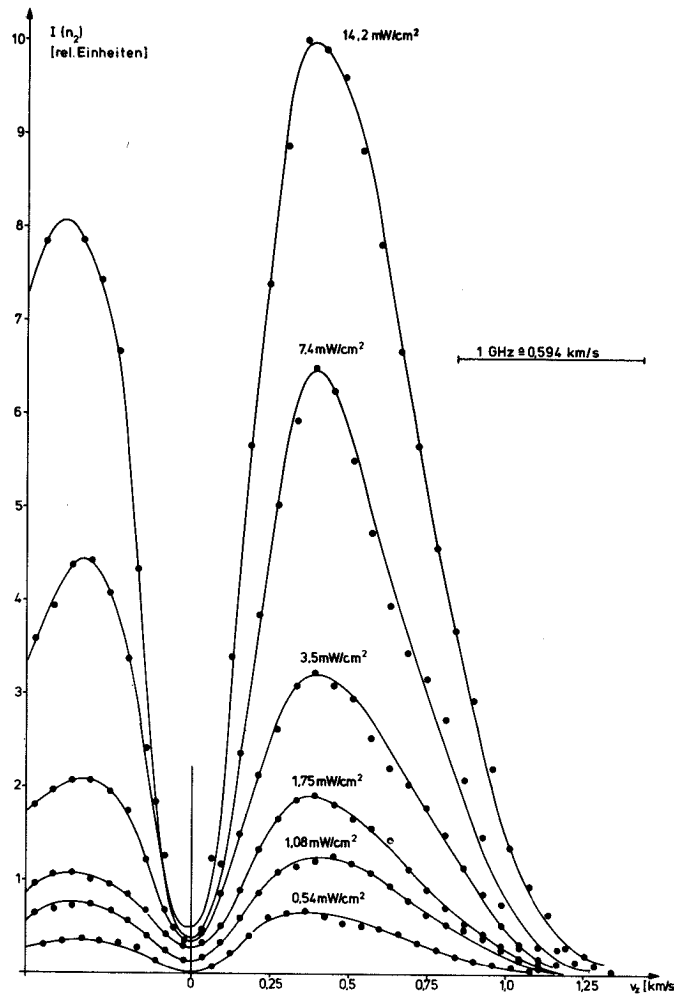


Abb. 4.7: Intensität $I(n_2)$ in relativen Einheiten als Funktion der Geschwindigkeitskomponente v_z ; die Laserleistungsdichte ϕ_L ist Parameter.

$\Theta_1=8$, $\Theta_2=12$ und $\Theta_3=20$. Diesen Θ -Werten entsprechen bei einem Streuvolumenabstand von 3,1 mm und einer Lebensdauer von 0,41 μs /48,49/ Geschwindigkeitskomponenten von $v_{z1}=0,94$ km/s, $v_{z2}=0,63$ km/s und $v_{z3}=0,38$ km/s.

Um die Meßergebnisse mit der Theorie vergleichen zu können, ist die Anregungswahrscheinlichkeit F nach Gl.(2.20) als Funktion vom Sättigungsparameter S_m mit Θ als Parameter ebenfalls in Abb. 4.8 eingezeichnet. S_m ist nach Gl.(2.6b) von der Laserleistungsdichte ϕ_L , der Laserwellenlänge λ_L und der Lebensdauer τ des angeregten Zustandes abhängig. Es zeigt sich aber, daß Theorie und Experiment nur dann in Übereinstimmung gebracht werden können, wenn S_m einen um einen Faktor 10 kleineren Wert besitzt, d.h. durch einen effektiven

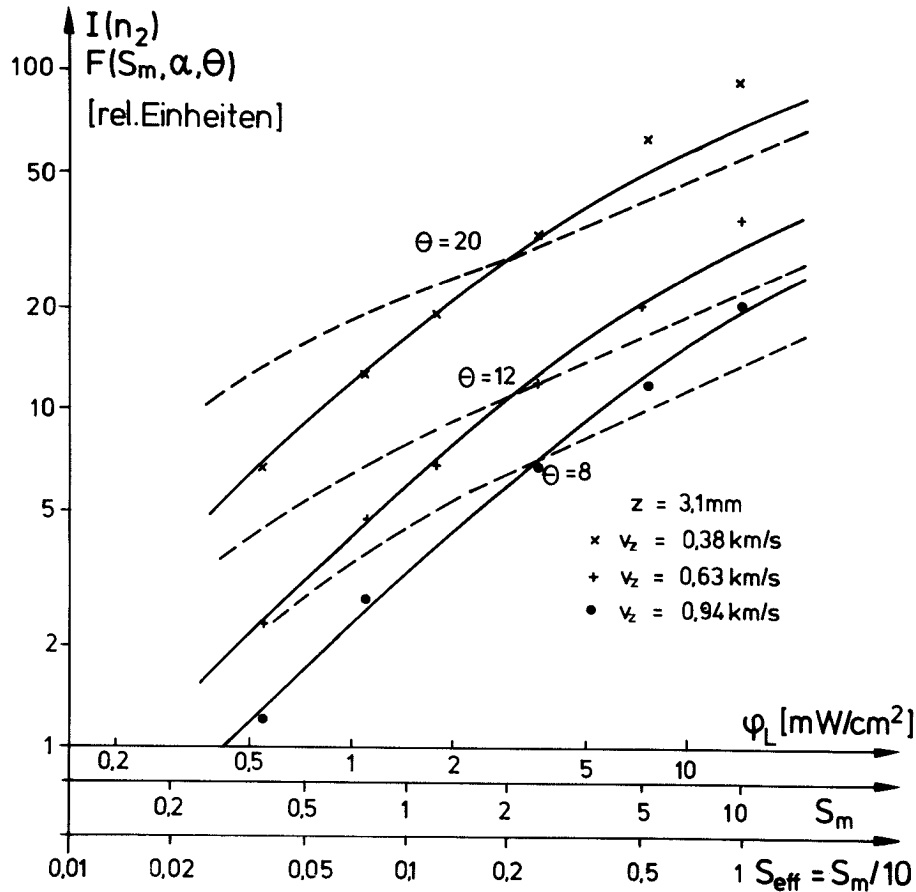


Abb. 4.8: Intensität $I(n_2)$ in relativen Einheiten als Funktion der Laserleistungsdichte ϕ_L zu drei verschiedenen Geschwindigkeitskomponenten v_z ; zum Vergleich mit der Theorie ist die Anregungswahrscheinlichkeit $F(S_m, \alpha, \theta)$ als Funktion der Sättigungsparameter S_m (gestrichelte Linien) und $S_{\text{eff}} = S_m/10$ (durchgezogene Linien) mit θ als Parameter eingezeichnet, wobei S_m nach Gl.(2.6b) berechnet worden ist.

Sättigungsparameter $S_{\text{eff}} = S_m/10$ ersetzt wird. Da ϕ_L hinreichend genau gemessen worden ist, ist es naheliegend, die Verkleinerung von S_m durch ein nicht den idealisierten Annahmen entsprechendes Verhalten des Lasers zu erklären; d.h. die Breite der Laserlinie muß größer als die der Absorptionslinie sein. Nimmt man der Einfachheit halber an, das Linienprofil der Laserlinie habe wie die Absorptionslinie ein Dispersionsprofil mit der 9-fachen Breite der Absorptionslinie, so ergibt eine Faltung von Absorptions- und Laserlinienprofil wiederum ein Dispersionsprofil der effektiven Breite $\gamma_{\text{eff}} = \gamma_{\text{Laser}} + \gamma_{\text{Linie}} = 10 \cdot \gamma_{\text{Linie}}$. Durch Einsetzen dieses γ_{eff} für γ_{Linie} in Gl.(2.6b) erhält man die erforderliche Verkleinerung von S_m .

Für stärkere Anregung und längere Aufenthaltszeiten der Ato-

me im Laserlicht ($\theta \geq 12$, $S_{\text{eff}} \geq 0,5$) ist eine weitere Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment zu erkennen, die sich nicht durch den effektiven Sättigungsparameter erklären läßt. Auf diese Abweichungen, die durch Schwankungen der Laserfrequenz zu erklären sind, wird im Abschnitt 4.4.3. im Zusammenhang mit der Diskussion der Messungen thermischer Geschwindigkeitsverteilungen noch ausführlich eingegangen.

4.4. Messung der Geschwindigkeitsverteilungen

4.4.1. Aufnahme der Meßkurven und ihre Entzerrung

Analog zu der in Abschnitt 4.3.1. beschriebenen Weise wurden nun die Messungen zur Ermittlung der Geschwindigkeitsverteilungen durchgeführt. Anstelle der Laserleistungsdichte war der Streuvolumenabstand z Parameter. Die Variation von z wurde vorgenommen, um einerseits die Abhängigkeit der Geschwindigkeitsverteilungen von der Geometrie der Versuchsanordnung nach Gl.(2.28) zu überprüfen und andererseits die Abhängigkeit der Fluoreszenz von der Dauer der Anregung für einen großen Bereich von θ ($5 \leq \theta < 150$) zu untersuchen.

Die Meßkurven wurden bei einer Laserleistungsdichte von $\varphi_L = 15 \text{ mW/cm}^2$ aufgenommen und entzerzt, wobei die durch schwankende Laserleistungsdichte und die durch Temperaturdriften bedingten Korrekturen mit berücksichtigt wurden. Die so entzerzten Meßkurven sind in Abb. 4.9 als Funktion der Geschwindigkeitskomponente v_z aufgetragen; der Abstand z ist Parameter. Die Nullpunkte ($v_z = 0$) wurden wieder, wie in Abschnitt 4.3.3. beschrieben, ermittelt.

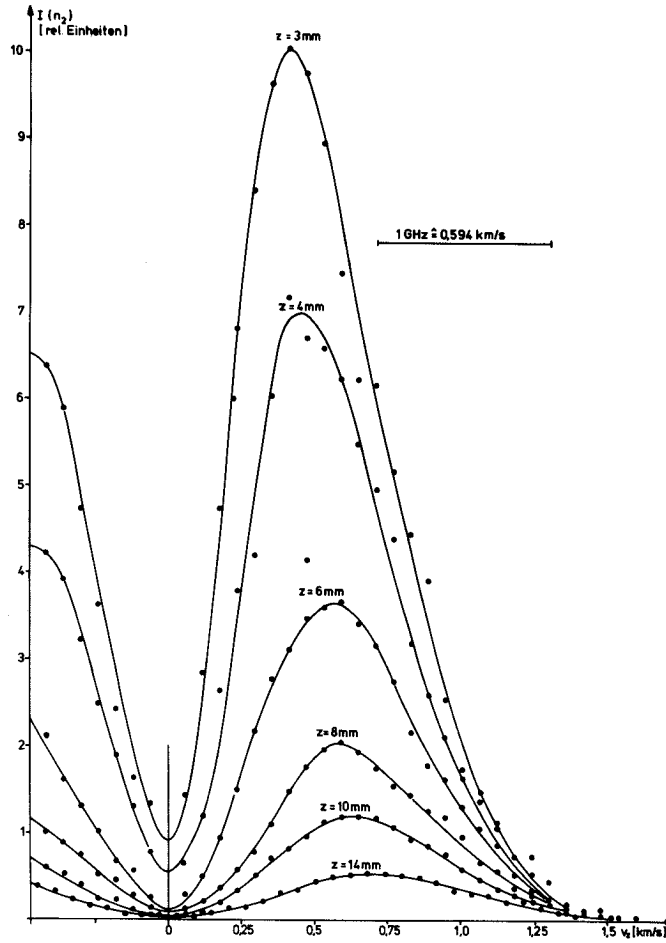


Abb. 4.9: Intensität $I(n_2)$ in relativen Einheiten als Funktion der Geschwindigkeitskomponente v_z ; der Abstand z zwischen Folienoberfläche und Streuvolumen ist Parameter; $\phi_L = 15\text{ mW/cm}^2$

4.4.2. Auswertung

Da das Meßsignal proportional zur Dichte n_2 der angeregten Atome ist, für die wir in Abschnitt 2.5. die Abhängigkeit

$$n_2 \sim \frac{dn}{dv_z} F(S_m, \alpha, \theta) \quad (4.11)$$

gefunden wurde, kann man aus den isotopenreinen Verteilungen des Fluoreszenzlichtes in Abb. 4.9 die gesuchten Geschwindigkeitsverteilungen dn/dv_z zu verschiedenen Abständen z ermitteln. Dazu braucht der Absolutwert von n_2 nicht bekannt zu sein; denn es gilt:

$$I(n_2) \sim \frac{dn}{dv_z} F(S_m, \alpha, \theta); \quad (4.12)$$

daraus ergibt sich:

$$dn/dv_z \sim I(n_2)/F(S_m, \alpha, \theta). \quad (4.13)$$

Zur Auswertung geht man folgendermaßen vor: Die Frequenzskala wird, wie in Abb. 4.9 geschehen, nach Gl.(2.2) in eine Geschwindigkeitsskala umgerechnet und bei Kenntnis des Abstandes z die Aufenthaltsdauer $t = z/v_z$ der Atome im Laserlicht bestimmt. Division der Aufenthaltsdauer durch die Lebensdauer τ ergibt dann die zur Berechnung von F benötigten Θ -Werte; S_{eff} ist unter Berücksichtigung der Ergebnisse aus Abschnitt 4.3.4. ungefähr 1. Die Anregungswahrscheinlichkeit F kann nun nach Gl.(2.20) berechnet oder aus den Abbn. 2.14b und d abgelesen werden. Division von $I(n_2)$ durch F ergibt dann schließlich nach Gl.(4.13) die gesuchte Geschwindigkeitsverteilung.

In Abb. 4.10 sind zunächst die theoretischen Geschwindigkeitsverteilungen nach Gl.(2.28) mit z als Parameter eingezeichnet worden (durchgezogene Linien). Anschließend sind von

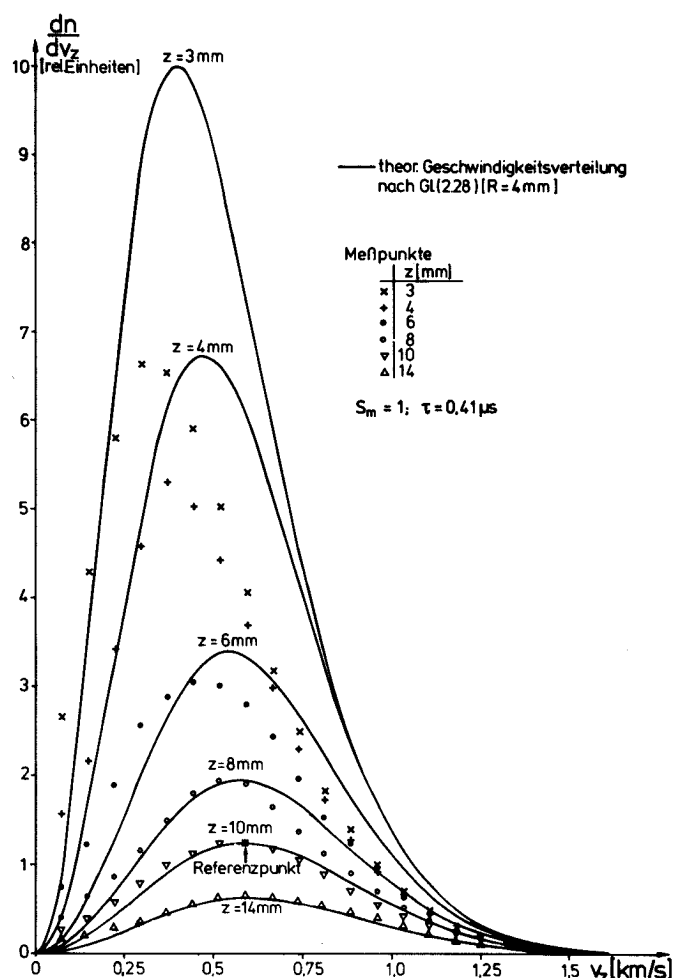


Abb. 4.10: Theoretische und experimentelle Geschwindigkeitsverteilung dn/dv_z für $\tau = 0,41 \mu\text{s}$ und $S_m = 1$ (s. auch Text).

jeder Meßkurve nach Gl.(4.13) ermittelte Werte der Geschwindigkeitsverteilung dn/dv_z in relativen Einheiten eingetragen worden. Um die aus den Messungen ermittelten Werte mit den theoretischen Verteilungen vergleichen zu können, muß neben der Festlegung des Nullpunktes ($v_z=0$) die Amplitude angepaßt werden. Dies erfolgte dadurch, daß experimentelle und theoretische Verteilungskurve für $z=10$ mm und $v_z=0,6$ km/s zur Deckung gebracht wurden. Der Referenzpunkt in Abb. 4.10 ist mit einem Stern (*) bezeichnet. (Eine Auswertung für $S_m=10$ ergab keinen wesentlichen Unterschied zu der in Abb. 4.10 gezeigten und ist deshalb nicht in einer Abbildung dargestellt.)

4.4.3. Diskussion der Ergebnisse und ihre Interpretation

Wertet man die experimentellen Verteilungsfunktionen nach Gl.(4.13) aus, wobei die Anregungswahrscheinlichkeit F mit einer auf eine Lebensdauer von $\tau=0,41 \mu s$ normierten Aufenthaltsdauer θ berechnet wird, so weichen die experimentell ermittelten Verteilungsfunktionen sehr stark von den erwarteten theoretischen Verteilungen ab, wie deutlich in Abb. 4.10 zu sehen ist. Dies könnte man darauf zurückführen, daß die aus Gl.(2.28) folgenden Geschwindigkeitsverteilungen nicht richtig sind, was eine Folge eines winkel- und/oder geschwindigkeitsabhängigen Emissionskoeffizienten sein kann (s. Abschnitt 2.6.).

Um zu prüfen, ob die Abweichungen in Abb. 4.10 auf diese Weise erklärt werden können, bestimmen wir jetzt umgekehrt die F -Funktion experimentell aus den gemessenen, entzerrten Intensitätsverteilungen, indem wir die Intensitäten $I(n_2)$ durch die entsprechenden theoretischen Geschwindigkeitsverteilungen nach Gl.(2.28) dividieren, also:

$$F(S_m, \alpha, \theta) \sim I(n_2) / (dn/dv_z). \quad (4.14)$$

Das Ergebnis ist in Abb. 4.11 dargestellt. Hier ist im doppelt-logarithmischen Maßstab die Anregungswahrscheinlichkeit $F(S_m, \alpha, \theta = t/\tau)$ in relativen Einheiten als Funktion der Aufenthaltszeit $t = z/v_z$ der Atome im Anregungsvolumen aufgetragen. Zum Vergleich ist auch die nach Gl.(2.20) mit $\tau = 0,41 \mu s$ und $S_m = 1$ berechnete F-Funktion eingezeichnet (durchgezogene Linie), nachdem sie der Höhe nach den experimentellen Werten angepaßt wurde.

Es zeigt sich folgendes: Bis zu Zeiten von etwa $6 \mu s$ ($\theta \approx 15$ für $\tau = 0,41 \mu s$) zeigt die experimentelle F-Funktion recht gut die theoretisch erwartete Abhängigkeit. Zwischen 6 und etwa $20 \mu s$ bleibt sie im wesentlichen konstant; d.h. Atome, die sich bis zu $20 \mu s$ im Anregungsvolumen aufhalten, sind mit

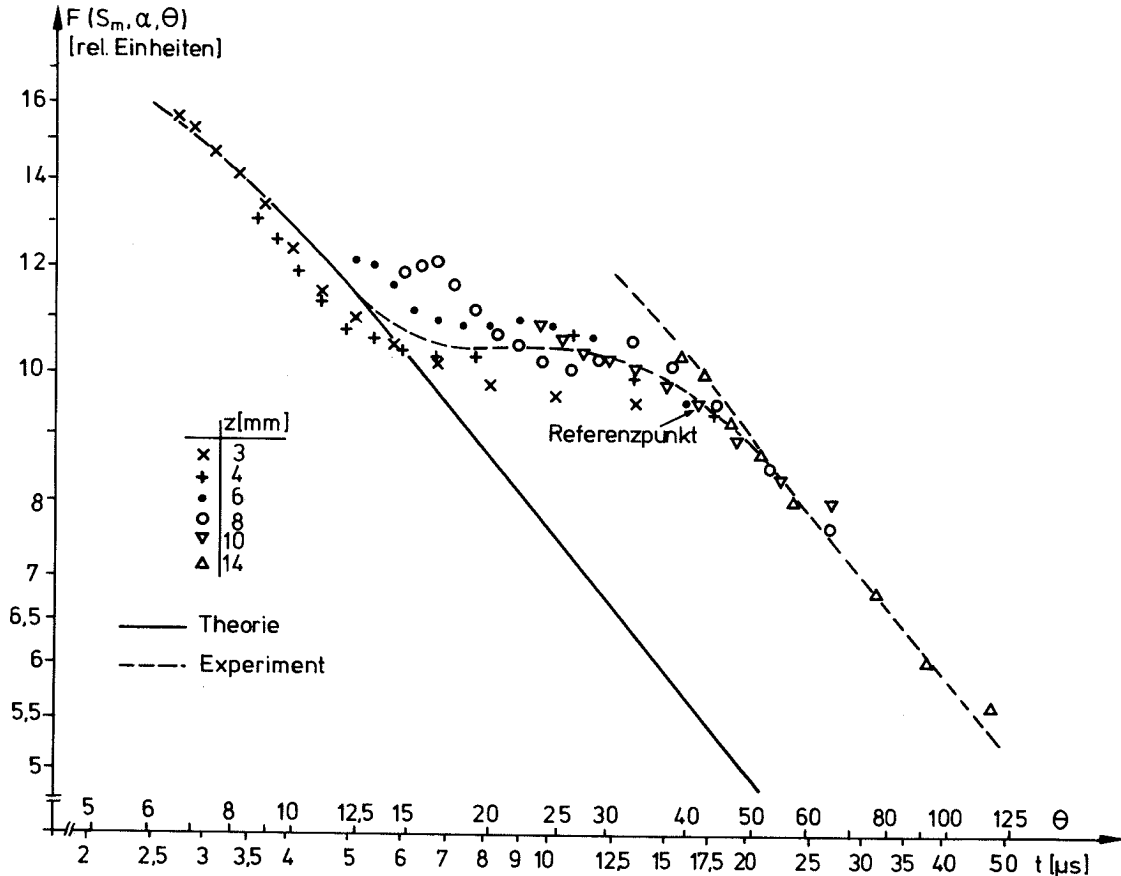


Abb. 4.11: Experimentell nach Gl.(4.14) ermittelte Anregungswahrscheinlichkeit F als Funktion der Aufenthaltsdauer $t = z/v_z$ der Atome im Anregungsvolumen. Die Werte für $I(n_2)$ sind aus Abb. 4.9 entnommen worden. Zum Vergleich mit der Theorie ist auch die nach Gl.(2.20) berechnete Anregungswahrscheinlichkeit als Funktion von $\theta = t/\tau$ für $\tau = 0,41 \mu s$ und $S_m = 1$ ($\phi_L = 15 \text{ mW/cm}^2$, $g = 1,4$, $\alpha = 0,15$) eingezeichnet (durchgezogene Linie).

der gleichen Wahrscheinlichkeit im angeregten Zustand wie die, deren Flugzeit durch das Anregungsvolumen nur $6 \mu\text{s}$ dauert. Nach 15 bis $20 \mu\text{s}$ folgt die experimentelle F-Funktion wieder der theoretisch erwarteten Zeitabhängigkeit, jedoch um etwa einen Faktor 3 auf der Zeitachse verschoben.

Wie man in Abb. 4.11 sieht, ist die experimentelle F-Funktion nur von der Zeit t abhängig, nicht aber vom Abstand z des Streuvolumens von der Folie bzw. von der Geschwindigkeitskomponente v_z . Dies erkennt man daran, daß - für konstantes $t - z$ und gleichzeitig v_z um einen Faktor $> 2,5$ variieren können, ohne daß sich die F-Funktion wesentlich ändert. Daraus kann man schließen, daß die Geschwindigkeitsverteilungen nach Gl.(2.28) richtig sind.

Man kann die Zeitabhängigkeit der experimentellen Anregungswahrscheinlichkeit F damit erklären, daß die Frequenzstabilität der Laserlinie nicht den Annahmen aus Abschnitt 3.1.4. entspricht; d.h. neben der schon im Abschnitt 4.3.4. postulierten größeren Linienbreite erfolgen die Schwankungen der Laserlinie, die die mit dem Spektrum-Analysator gemessene scheinbare Breite von $\Delta\nu_{\text{sch}} = 10$ bis 15 MHz bewirken, wahrscheinlich in wesentlich kürzeren Zeiten als angenommen. Dies führt dazu, daß zumindest die langsamen Atome nicht während ihrer gesamten Flugzeit von der Folie zum Streuvolumen angeregt werden, weil die Laserlinie zwischenzeitlich aus dem Bereich ihrer Absorptionslinienprofile hinausgedriftet ist. Andererseits führen die Schwankungen der Laserlinie dazu, daß ein merklicher Teil der Atome erst kurz vor dem Eintreffen im Streuvolumen zum ersten Male angeregt wird. Der Wert der F-Funktion ist für diese Atome nahe dem Maximalwert, sodaß die Fluoreszenzstrahlung und damit das Meßsignal höher als erwartet sind.

Im folgenden sei nun eine Modellvorstellung diskutiert, mit deren Hilfe man sich den Verlauf der experimentellen F-Funktion in Abb. 4.11 erklären kann.

In Abschnitt 4.3.4. wurde für die Laserlinie eine Breite von etwa 4 MHz gefordert ($\hat{=}$ 10 Absorptionslinienbreiten; Zr-Absorptionslinie: $\gamma/2\pi = 400 \text{ kHz}$), um Theorie und Experiment in

Übereinstimmung zu bringen. Da die F-Funktion sich für Zeiten $6 \mu\text{s} < t < 20 \mu\text{s}$ praktisch nicht ändert, läßt sich daraus folgern, daß die Laserlinie nach etwa $6 \mu\text{s}$ über ihre eigene Breite gedriftet ist; d.h. die Laserlinie wandert mit einer Driftgeschwindigkeit von etwa $700 \text{ kHz}/\mu\text{s}$. Nach ca. $20 \mu\text{s}$ hat sie demnach einen Frequenzbereich von etwa 15 MHz überstrichen, in Übereinstimmung mit der gemessenen scheinbaren Breite von $\Delta\nu_{\text{sch}} = 15 \text{ MHz}$.

Das zeitliche Hin- und Herdriften der Laserlinie, das sich, wie in Abschnitt 3.1.4. beschrieben wurde, durch Dicken-schwankungen im Farbstoffstrahl erklären läßt, kann idealisiert durch eine sinusförmige Funktion beschrieben werden. Nach 5 bis $6 \mu\text{s}$ kommt in den Bereich der Strahltille allmählich ein Teil des Farbstoffstrahles, dessen Dicken- und Temperaturschwankungen (s. Abschnitt 3.1.4.) zu einem Abdriften der Laserlinie in einen benachbarten Spektralbereich führen. Die Laserlinie ist nun soweit von der anfänglichen Absorptionsfrequenz weggedriftet, daß die dieser Frequenz entsprechenden Atome nicht mehr angeregt werden, der Laser also für sie abgeschaltet ist. Dafür werden nun Atome aus dem benachbarten Frequenzbereich angeregt. Damit läßt sich erklären, daß das Meßsignal zunächst konstant bleibt, da einerseits Atome, die auf ihrem Weg von der Folie zum Streuvolumen länger als $6 \mu\text{s}$ unterwegs sind, auch im Mittel nur $6 \mu\text{s}$ lang durch das anregende Laserlicht fliegen, und da andererseits die Atome, die erst kurz vor ihrem Eintreffen im Streuvolumen angeregt werden, eine größere Anregungswahrscheinlichkeit besitzen und damit einen höheren Beitrag zum Meßsignal liefern. Nach ca. $20 \mu\text{s}$ kehrt die Laserlinie ihre Driftrichtung um. Atome, deren Flugzeit durch das Anregungsvolumen länger als $20 \mu\text{s}$ ist, werden nun ein zweites Mal angeregt; für diese Atome wird der Laser neu eingeschaltet. Ihre Anzahl ist um die Atome reduziert, die in den ersten $6 \mu\text{s}$ ihrer Anregungszeit in metastabile Zustände übergepumpt worden sind. Das zeigt sich darin, daß die F-Funktion nun wieder beginnt, dem theoretisch erwarteten Verlauf zu folgen, jedoch um etwa einen Faktor 3 auf der Zeitachse verschoben.

Da man nach Abschnitt 4.3.4. die Verkleinerung des Sätti-

gungsparameters um einen Faktor 10 durch die Einführung einer Laserlinie erklären kann, deren Breite erheblich größer als die der Absorptionslinie ist, kann man die laserinduzierte Anregung als breitbandig ansehen. Da wir keinerlei Aussage über die Form des Laserlinienprofils machen können, können wir es auch als rechteckförmig annehmen, denn nur dann besteht eine einfache Möglichkeit, die Anregung der Atome bei driftender Laserlinie näherungsweise zu berechnen. Als weitere Näherung vernachlässigen wir das Absorptionslinienprofil gegenüber dem breiten Laserprofil. Dann kann man in der spektralen Anregungswahrscheinlichkeit $w_2(\xi)$ nach Gl.(2.16) die von der Dispersionsfunktion des Absorptionsprofils abhängige Funktion $S(\xi) = S_m / (1 + \xi^2)$ durch einen konstanten Wert S ersetzen, der nach der Theorie für breitbandige Anregung /7/ berechnet werden muß. w_2 beschreibt also nur noch das Überpumpen der Atome in die metastabilen Zustände in Abhängigkeit von der Anregungszeit; der Effekt der Sättigungsverbreiterung wird vernachlässigt. Desweiteren ist die Integration $\int w_2(\xi) d\xi$ überflüssig; d.h. die Anregungswahrscheinlichkeit $F(S, \alpha, \theta)$ ist gleich w_2 .

Mit diesem vereinfachten Modell ist es möglich, das Driften der Laserlinie bei der Berechnung der F-Funktion zu berücksichtigen, wie im Anhang 6.3. beschrieben wird. In Abb. 4.12 ist die so berechnete Anregungswahrscheinlichkeit $F(S, \alpha, \theta)$ mit der aus idealisierten Annahmen für den Laser folgenden F-Funktion verglichen (Darstellungsweise wie in Abb. 4.11). Dabei wurde angenommen, daß die Laserlinie eine Breite von $\Delta\nu_L = 5$ MHz habe und in einer Zeit von $\theta_m = 15$ Lebensdauern ($\hat{=} t_m = 6 \mu s$ bei $\tau = 0,41 \mu s$) über ihre eigene Breite hinweggedriftet sei; d.h. Atome, deren Flugzeit durch das Anregungsvolumen zwischen $15 < \theta < 45$ Lebensdauern ist, „sehen“ die Laserlinie für maximal 15 Lebensdauern. Man sieht, daß das Modell der breitbandigen Anregung das Erreichen des Plateaus, wie es die experimentellen Befunde in Abb. 4.11 erfordern, näherungsweise erklären kann, wenn auch der Anstieg diesseits des Plateaus etwas steiler ist - und zwar umso steiler, je größer S und/oder θ_m sind. Der erneute Abfall jenseits des Plateaus erfolgt jedoch bedeutend schneller, als die experi-

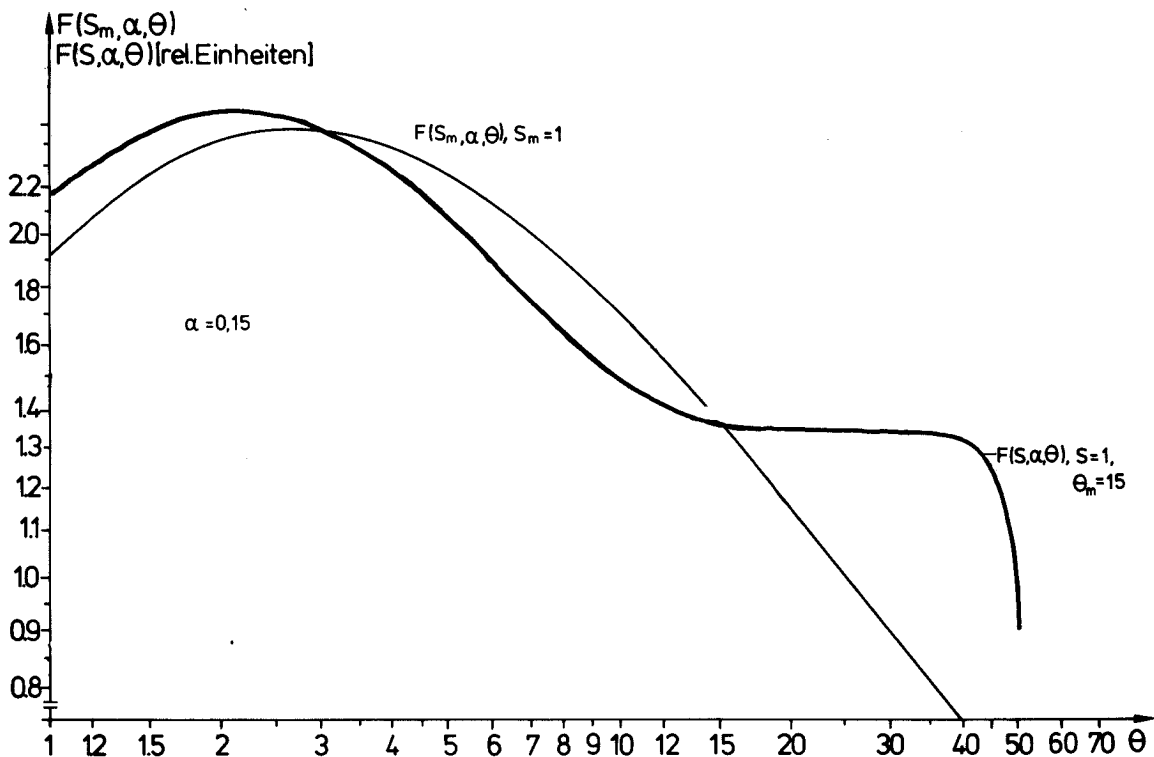


Abb. 4.12: Vergleich der Anregungswahrscheinlichkeiten $F(S_m, \alpha, \theta)$ nach Gl.(2.20) und $F(S, \alpha, \theta)$ für breitbandige Anregung, jeweils als Funktion der Aufenthaltsdauer θ im Anregungsvolumen. F ist für $S_m=1$ bzw. für $S=1$ und $\theta_m=15$ berechnet worden; $\alpha=0,15$. (s. auch Anhang 6.3.)

mentellen Ergebnisse es erfordern. Dies liegt daran, daß in dem vereinfachten Modell der breitbandigen Anregung die Sättigungsverbreiterung vernachlässigt wurde, die dazu führt, daß nicht nur Atome, deren Absorptionslinienbreiten innerhalb der Laserlinienbreite $\Delta\nu_L$ liegen, angeregt werden, sondern auch Atome, die mit den Flügeln ihrer Absorptionslinienprofile in die Laserlinie hineinragen (s. Abschnitt 2.2., Abb.2.5, S.10).

Die aus Abb. 4.11 resultierenden Ergebnisse können auch zur Erklärung der Abweichungen des Sättigungsverhaltens der F -Funktion in Abb. 4.8, die bei $\theta=20$ und $S_{\text{eff}} \geq 0,5$ auftraten, herangezogen werden. Der experimentell ermittelte Wert der F -Funktion ist bei $\theta=20$ und $S_{\text{eff}}=1$ um etwa einen Faktor 1,25 größer als der theoretische Wert. Um diesen Betrag weichen in Abb. 4.8 experimenteller und theoretischer Wert voneinander ab. Daß diese Abweichungen bei kleinen S_{eff} -Werten ($S_{\text{eff}} \leq 0,2$) nicht mehr zu beobachten sind, liegt daran, daß hier die

F-Funktion nur noch schwach von θ abhängt.

Zusammenfassend läßt sich folgendes sagen: Sind die Aufenthaltszeiten der Atome im Anregungsvolumen kleiner als $6 \mu\text{s}$, so kann man die Geschwindigkeitsverteilungen der Atome durch Auswertung nach Gl.(4.13) bestimmen, wobei die Anregungswahrscheinlichkeit F nach Gl.(2.20) mit einem effektiven Sättigungsparameter S_{eff} berechnet werden kann. Nur für größere Aufenthaltszeiten muß die Intensitätsverteilung mit Hilfe des F-Funktionswertes, wie er sich aus Abb. 4.11 ergibt, (gestrichelte Linie) ausgewertet werden.

Das Verfahren sollte demnach zur Bestimmung von Geschwindigkeitsverteilungen zerstäubter Atome geeignet sein, deren Geschwindigkeiten um mehr als einen Faktor 10 größer als die thermischen Geschwindigkeiten sind; d.h. der Bereich kleiner Geschwindigkeitskomponenten und somit langer Aufenthaltszeiten, bei dem θ -Werte größer als 15 auftreten, macht bei den zerstäubten Atomen nur einen kleinen Teil des doppler-verbreiterten Geschwindigkeitsspektrums aus. Da jedoch das Gebiet, in dem die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment bestätigt werden konnte, ziemlich klein ist (zwischen 2,5 und ca. $6 \mu\text{s}$ Flugzeit durch das Anregungsvolumen), wurden für kurze Anregungsdauern die nach diesem Verfahren bestimmten Geschwindigkeitsverteilungen zerstäubter Zr-Atome mit entsprechenden Messungen, die mit Hilfe eines gepulsten Farbstofflasersystems bei gleicher Geometrie durchgeführt wurden, verglichen (s. Kapitel 5.), um so eine zusätzliche Überprüfung des Meßverfahrens zu erhalten.

4.5. Fehlerbetrachtungen

Im folgenden werden die wichtigsten Fehler nebst ihren qualitativen und - wenn möglich - quantitativen Einflüssen auf das theoretische Anregungsmodell oder auf die Meßergebnisse besprochen; dazu sei folgende Einteilung vorgenommen:

1. Fehler, die durch die Unvollkommenheit der theoretischen Modellvorstellungen bedingt sind,
2. Fehler, die sich bei der Auswertung ergeben,
3. Fehler, die auf die begrenzte Meßgenauigkeit der eingesetzten Meßgeräte zurückzuführen sind.

zu 1.:

Zu diesen Fehlern gehören in erster Linie die Unvollkommenheiten der physikalischen Annahmen über die spektralen Eigenschaften der Dauerstrich-Farbstofflaser, die sich nach den in den Abschnitten 4.3. und 4.4. beschriebenen Messungen als zu optimistisch herausgestellt haben. Ihre Konsequenzen bezüglich des Anregungsmodells sind schon in den o.a. Abschnitten eingehend besprochen worden, sodaß auf eine nochmalige Behandlung in diesem Abschnitt verzichtet wird.

An dieser Stelle soll auch noch einmal erwähnt werden, daß die theoretische Geschwindigkeitsverteilung nach Gl.(2.28) streng nur für Punkte auf der z-Achse gilt. Für Punkte außerhalb der z-Achse liegt keine Zylindergeometrie mehr vor, sodaß die einfache Integration der Gl.(2.27) nicht mehr möglich ist. Man darf jedoch in guter Näherung annehmen, daß sich die Teilchendichte zum Rand des Anregungsvolumens hin nicht wesentlich ändert, wie entsprechende Abschätzungen /20/ gezeigt haben: die Abweichungen sind selbst für die kleinen Abstände ($z=3$ mm) geringer als 3%. Deshalb kann auf die aufwendige Berechnung der Dichteverteilung für Punkte außerhalb der z-Achse und ihre Summation zur Gesamtdichte im Streuvolumen verzichtet werden.

Bei der Berechnung der Geschwindigkeitsverteilung (2.28) sind alle die Atome berücksichtigt worden, für deren Abdampfwinkel ϑ gilt: $\vartheta \leq \arctan(R/(z-z_B))$. (s. Abb. 2.15, S.28). Nach Abb. 2.1 „sehen“ jedoch nur die Atome von Anfang an Laser-

licht, deren Abdampfwinkel $\vartheta \leq \arctan(R/z)$ ist. Die Atome mit Abdampfwinkeln $\arctan(R/z) < \vartheta \leq \arctan(R/(z-z_B))$ kommen erst zu einem späteren Zeitpunkt in das Strahlungsfeld des Lasers; das bedeutet wiederum, daß ihre Anregungswahrscheinlichkeit F im Streuvolumen wegen eines kleineren Θ -Wertes größer ist als die F -Funktion der Atome mit Abdampfwinkeln $\vartheta \leq \arctan(R/z)$. Daraus folgt nun, daß das Meßsignal etwas größer ausfallen wird als berechnet. Der Effekt macht sich hauptsächlich im Minimum der Meßkurven bemerkbar, da die schräg von der Folie fliegenden Atome mehr kleine v_z -Komponenten besitzen. Quantitativ läßt sich das Ausmaß dieses Effektes nur sehr schwer angeben. Er ist aber eine zusätzliche Erklärung dafür, daß die Intensitätsverteilung $I(n_2)$ der entzerrten Meßkurven für kleine Abstände und Geschwindigkeiten relativ groß ist. Qualitativ läßt sich sagen, daß dieser Effekt, wie zu erwarten und deutlich in Abb. 4.9 zu sehen ist, mit wachsendem Abstand abnimmt.

zu 2.:

Zu den unter Punkt 2 genannten Fehlern gehören im wesentlichen die Ungenauigkeit bei der Festlegung der Amplitude des Referenzpunktes und der Fehler bei der Nullpunktfestlegung.

Der Referenzpunkt wurde im Maximum der entsprechenden Meßkurve ($z=10$ mm) angepaßt. Damit lag der Proportionalitätsfaktor fest, mit dem die theoretischen Verteilungsfunktionen zur Anpassung an die experimentellen Kurven multipliziert werden mußten. Die Genauigkeit, mit der dieser Proportionalitätsfaktor definiert werden kann, hängt davon ab, wie genau sich die Nulllinie und der Maximalwert bei der entsprechenden Meßkurve bestimmen lassen. Der Fehler beträgt in unserem Fall höchstens 2%.

Die Bestimmung des ($v_z=0$)-Punktes ist im Abschnitt 4.3.3. beschrieben worden. Der maximale Fehler liegt im Falle der thermischen Geschwindigkeiten bei ca. ± 20 MHz auf der Frequenzskala. Dem entspricht eine Geschwindigkeitsungenauigkeit von ± 12 m/s, oder in der Wellenlängenskala ein Fehler von $\pm 0,024$ pm = $0,24$ mÅ bei einer Wellenlänge von 600 nm.

zu 3.:

Als letztes betrachten wir die einzelnen Meßfehler und ihren quantitativen Einfluß auf die Meßergebnisse.

a) Wie schon im Abschnitt 4.2. beschrieben, hat eine kleine Temperaturänderung bei 2100 K eine große Dichte- und damit Meßsignaländerung zur Folge. Die pyrometrische Messung der Temperatur ließ nur eine Genauigkeit von ± 4 K zu - dem entspricht ein Fehler in der Dichte der abgedampften Atome von ca. $\pm 7\%$. Temperaturschwankungen, die kleiner als ± 4 K sind, können nicht gemessen und somit auch nicht explizit angegeben werden. Bei der Auswertung sind deshalb nur die Temperaturänderungen berücksichtigt worden, die sich langfristig aufgrund von Materialabdampfung von der Folie ergeben; d.h. einige Meßkurven sind mit einem entsprechenden Faktor korrigiert worden. Dabei wurde davon ausgegangen, daß die Temperaturschwankungen wesentlich kleiner sind als der Meßfehler.

b) Fehler bei der Messung des Abstandes z des Streuvolumens von der Folie machen sich - zumindest bei kleinen Abständen - quantitativ recht stark bemerkbar. Nach der Theorie ist nämlich die Geschwindigkeitsverteilung bei kleinen Abständen sehr stark vom Abstand abhängig (s. Abb. 2.17, S.30). Die Abstände ließen sich auf etwa 0,1 mm genau bestimmen. Bei einem Abstand von 3 mm bedeutet dies eine Ungenauigkeit der theoretischen Geschwindigkeitsverteilung von maximal 4%, bei 10 mm Abstand eine Ungenauigkeit von maximal 2%.

c) Eine weitere Fehlerquelle liegt in der Messung der Laserleistung, die mit einer geeichten Photodiode gemessen und gleichzeitig mit der Intensitätsverteilung des Fluoreszenzlichtes auf einem Zwei-Kanal-Schreiber aufgezeichnet wurde. (s. Abb. 4.4, S.59) Schwankungen der Laserleistung um einen festen Mittelwert sind wegen der annähernden Gültigkeit der Gl.(2.23) als Korrekturfaktor bei der Glättung der gemessenen Fluoreszenzlichtverteilungen, wie im Abschnitt 4.3.3. beschrieben, berücksichtigt worden.

d) Einen merklichen Fehlerbeitrag können auch die statistischen Schwankungen der Photonenzählrate liefern. Normalerweise gehorchen Signal- und Rauschpulse einer Poisson-Vertei-

lung. Bei einer solchen Verteilung ist das Signal/Rausch-Verhältnis proportional zur Quadratwurzel der Meßzeit, da die Signalepulse linear mit der Meßzeit zunehmen, die Rauschpuls jedoch wegen der Subtraktion der beiden Zählkanalinhalt (s. Abschnitt 3.3.) nur um ihren mittleren Fehler ansteigen, der bei Poisson-Verteilungen gleich der Quadratwurzel der Zählrate ist. Wie man in Abb. 4.4 sieht, können die Schwankungen des Untergrundes für kleine Abstände wegen der großen Signalzählrate vernachlässigt werden. Die statistischen Schwankungen des Meßsignals betragen hier weniger als 1% im Maximum und bis zu 3% auf den Flanken der Meßkurven im Bereich kleiner und großer Geschwindigkeiten. Bei großen Abständen ($z=14$ mm) ergeben die Schwankungen des Meßsignals und des Untergrundes zusammengenommen einen Fehler von maximal 5%.

Addiert man alle Fehlerbeiträge bis auf die Fehler der Temperaturänderungen und der Laserleistungsschwankungen (sie sind schon bei der Glättung der Meßkurven berücksichtigt worden), so erhält man in ungünstigen Fällen maximale Abweichungen von $\pm 10\%$. Dies wird auch ziemlich gut durch die Streuung der Meßpunkte in Abb. 4.11 bestätigt.

4.6. Nachweisgrenzen der Meßmethode

Um einen Überblick über die Nachweisempfindlichkeit der Meßmethode zu geben, sei im folgenden die Zählrate, die von der Photonenzählapparatur registriert wird, für ein konkretes Beispiel abgeschätzt.

Nach Gl.(4.4) berechnet sich die Dichte der abgedampften Atome, die nach der Boltzmannschen Formel im Grundzustand sind, bei einer Temperatur von 2100 K zu etwa:

$$n_{01} = 10^{10} \text{ Atome/cm}^3.$$

Angeregt und damit zur Photonenemission erst befähigt werden nur die Atome, die sich in einem der Absorptionslinienbreite

Δv entsprechenden Geschwindigkeitsintervall befinden. Für diese „spektrale“ Teilchendichte erhält man nach Gl.(2.28) bei einem Geometriefaktor von $R/(z-z_B) = 2$ rund:

$$\Delta n_{01} = 10^6 \text{ Atome/cm}^3$$

für eine Geschwindigkeit von $v_z = 0,5 \text{ km/s}$ und eine Breite von $\Delta v = 0,4 \text{ MHz}$, der nach Gl.(2.2) ein Geschwindigkeitsintervall von $\Delta v_z = 2,4 \text{ cm/s}$ entspricht. (Im hochenergetischen Teil des Geschwindigkeitsspektrums wird bei $v_z = 1,5 \text{ km/s}$ $\Delta n_{01} = 6 \cdot 10^3 \text{ Atome/cm}^3$.) Das Geschwindigkeitsauflösungsvermögen des Lasers liegt natürlich im Bereich seiner effektiven Breite von ca. 15 MHz, was einem Geschwindigkeitsintervall von $\Delta v_z = 9 \text{ m/s}$ entspricht.

Das Meßsignal $J(n_2)$ ist proportional zum Fluoreszenzlicht, welches nach Gl.(2.22) proportional zu $n_2 A_{23}$ ist, wobei A_{23} die Übergangswahrscheinlichkeit in den beobachteten metastabilen Zustand ist. Die Dichte der angeregten Atome n_2 ist laut Gl.(2.21):

$$n_2 = (\lambda_L \gamma / 2\pi) (dn/dv_z) \cdot F(S_m, \alpha, \theta).$$

Bei einem Abstand von $z = 3 \text{ mm}$ und einer Geschwindigkeitskomponente von $v_z = 0,5 \text{ km/s}$ wird $F \approx 0,15$ für $S_m = 1$. (unter Berücksichtigung der Ergebnisse aus Abschnitt 4.4.3. und Abb. 4.11) und $dn/dv_z = 4,4 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}/(\text{m/s})$. Mit $\lambda_L = 600 \text{ nm}$ und $\gamma = 2,4 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ erhält man schließlich für die Dichte der angeregten Atome:

$$n_2 \approx 1,5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-3}.$$

75% aller angeregten Atome zerfallen in den beobachteten Zustand. Mit Gl.(2.1c) erhält man somit aus der Lebensdauer τ für die Übergangswahrscheinlichkeit $A_{23} = 1,8 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$, sodaß die Dichte der pro Sekunde emittierten Photonen

$$n_2 A_{23} = 2,7 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$$

wird. Die Größe des Streuvolumens beträgt ca. $4 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^3$. Außerdem trägt nach Abschnitt 3.3. höchstens der 10^{-5} -te Teil der Fluoreszenzphotonen zum Meßsignal bei, sodaß man eine Zählrate von etwa 10^5 Photonen/s erwarten kann. (Bei einer Geschwindigkeit von $v_z = 1,5 \text{ km/s}$ und sonst gleichen Bedin-

gungen wird $F=0,23$, $n_2=1,3 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-3}$, $n_2 A_{23}=2,4 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$,
und die Photonen-zählrate wird $9,6 \cdot 10^2 \text{ Photonen/s.}$)

Bei einem Streulichtuntergrund von weniger als 100 Photonen/s läßt sich dann noch ein gut aufgelöstes Geschwindigkeitsspektrum ausmessen, wenn die Gesamtteilchendichte n_{01} um einen Faktor 10 kleiner wird.

Eine Verbesserung dieser Nachweisgrenzen läßt sich unter anderem dadurch erzielen, daß man die Meßzeiten verlängert und/oder das Streuvolumen und den Raumwinkel vergrößert. Man muß dann allerdings einerseits eine schlechtere Zeitauflösung und andererseits eine geringere räumliche Auflösung in Kauf nehmen.

5. Messung der Geschwindigkeitsverteilung zerstäubter Zr-Atome

5.1. Experimenteller Aufbau

Zur Messung der Geschwindigkeitsverteilung zerstäubter Zr-Atome wurde das Laser- und Nachweissystem mit einer kontinuierlich arbeitenden Ionenquelle (Duopigatron High Current Ion Source) verbunden. In Abb. 5.1 ist der wichtigste Teil des Versuchsaufbaus schematisch dargestellt. Der durch einen Magneten abgelenkte Ionenstrahl trifft zusammen mit dem Laserstrahl senkrecht auf das Zr-Target. Die vor dem Target angebrachte Laserblende begrenzt gleichermaßen Ionen und Laserstrahl. Somit liegt im wesentlichen die gleiche Geometrie vor wie bei der thermischen Verdampfung. Außerdem sind Zerstäubungs- und Laserquerschnittsfläche gleich groß, sodaß die bei der Abdampfung benötigte Folienblende (s. Abb. 2.1, S.5) weggelassen werden kann.

Die Dicke des Streuvolumens betrug etwa 1 mm; seine Höhe $2R$ wurde durch den Radius der Blende ($R=5,7$ mm) bestimmt. Die Laserleistungsdichte ϕ_L betrug maximal $7,5 \text{ mW/cm}^2$, sodaß man für den Wert des Sättigungsparameters $S_m \leq 5$ erhielt; d.h. der effektive Sättigungsparameter war $S_{\text{eff}} = S_m/10 \leq 0,5$. Das Target wurde aus 99,9% reinem Zr von VDM-Duisburg herge-

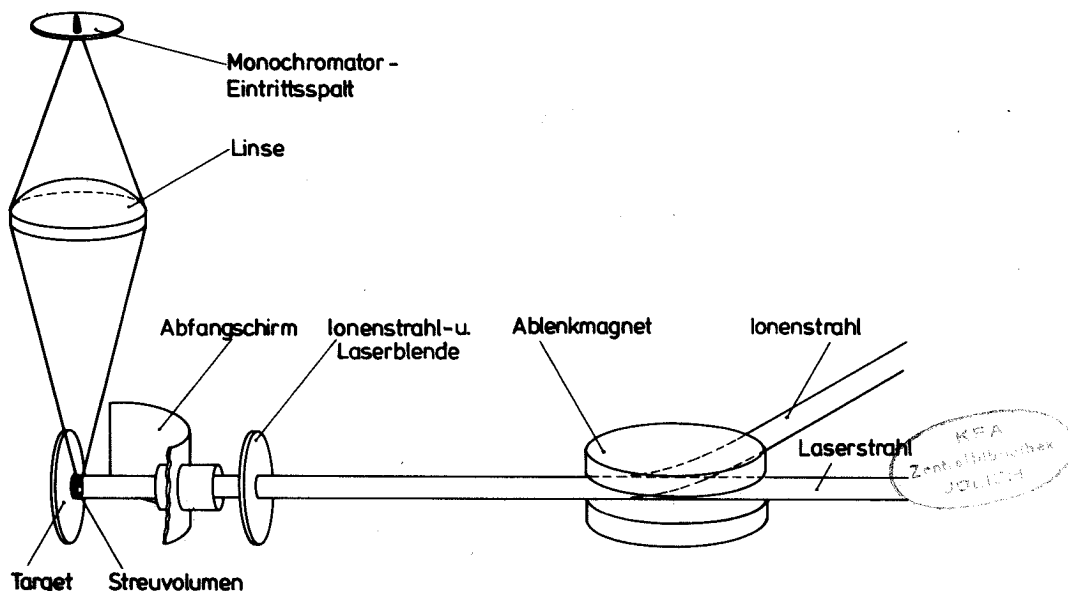


Abb. 5.1: Schematischer Versuchsaufbau zur Messung der Geschwindigkeitsverteilung zerstäubter Zr-Atome

stellt, mechanisch poliert und anschließend chemisch gereinigt. Zur Zerstäubung wurden Ar^+ -, He^+ - und D_3^+ -Ionen benutzt. Die Ar- und He-Ionen besaßen eine Energie von 8 keV, die D-Ionen eine Energie von 2,5 keV. Die Dichte des Ionenstromes betrug jeweils ca. 1 mA/cm^2 . Der Druck in der Targetkammer war etwa 2 Größenordnungen geringer als im Verdampfersystem; für Sauerstoff wurde ein Partialdruck von $p < 10^{-7} \text{ mb}$ gemessen. Bei der Zerstäubung mit D-Ionen wurde das Target zur Vermeidung von Hydridbildungen auf ca. 600°C aufgeheizt.

Die Dichte der durch Ar-Ionen zerstäubten Zr-Atome ist ungefähr gleich der thermischen Teilchendichte n_{th} bei 2100 K, d.h. $n_{\text{Ar}} \approx 4 \cdot 10^{10} \text{ Atome/cm}^3$ (bei einer Energie von 8 keV). Die Teilchendichten n_{He} und n_{D} der durch He- bzw. D-Ionen zerstäubten Atome sind wegen geringerer Zerstäubungsausbeuten um einen Faktor 50 bis 100 kleiner. Außerdem ist das Geschwindigkeitsspektrum der zerstäubten Atome um gut eine Größenordnung breiter als das der thermischen Atome. Zusammengekommen bedeutet dies, daß die Intensität des Meßsignals bei He- und D-Zerstäubung um einen Faktor 500 bis 1000, bei der Ar-Zerstäubung um einen Faktor 10 kleiner wird als das Meßsignal bei den thermischen Verteilungen. Zur Reduzierung dieses Faktors wurden einerseits das Streuvolumen und der Raumwinkel vergrößert, andererseits die Meßzeit verlängert. Für die Messungen der Geschwindigkeitsverteilungen der Ar-zerstäubten Atome war die Streuvolumen- und Raumwinkelvergrößerung ausreichend.

5.2. Experimentelle Bestimmung der Anregungswahrscheinlichkeit $F(S_m, \alpha, \theta)$

Um die Anregungswahrscheinlichkeit F aus der gemessenen Intensitätsverteilung des Fluoreszenzlichtes bestimmen zu können, ist es notwendig, daß man die Geschwindigkeitsverteilung kennt, durch die die entsprechende Intensitätsverteilung di-

vidiert werden muß. Da es im Falle der zerstäubten Atome keine eindeutige theoretische Beschreibung der Geschwindigkeitsverteilung gibt, muß sie direkt bestimmt werden.

Diese direkte Bestimmung der Geschwindigkeitsverteilung wurde mit Hilfe eines gepulsten Farbstofflasers nach der in /11/ beschriebenen Weise durchgeführt. Als Zerstäubungsionen dienten Ar-Ionen, deren Energie bei einer Ionenstromdichte von etwa 1 mA/cm^2 8 keV betrug; gemessen wurde bei einem Abstand von $z = 10 \text{ mm}$ und gleichen geometrischen Bedingungen wie bei der entsprechenden Messung mit dem Dauerstrich-Farbstofflaser. Die spektrale Breite des gepulsten Lasers betrug ca. $0,8 \text{ pm}$; die Geschwindigkeitsskala ließ sich somit auf $\pm 400 \text{ m/s}$ genau festlegen.

Zur Bestimmung von F wurde nun die Intensitätsverteilung $J(n_2)$, die mit dem Dauerstrichlaser gemessen wurde, durch die mit dem gepulsten Laser gemessene Geschwindigkeitsverteilung dn/dv_z analog zu Gl.(4.14) dividiert. (Auf eine Entzerrung nach den Gl.n.(4.10) kann verzichtet werden, da die Isotopieverschiebung nur rund 2% der Breite des Geschwindigkeitsspektrums ausmacht, somit also im Bereich der Genauigkeit der Ge-

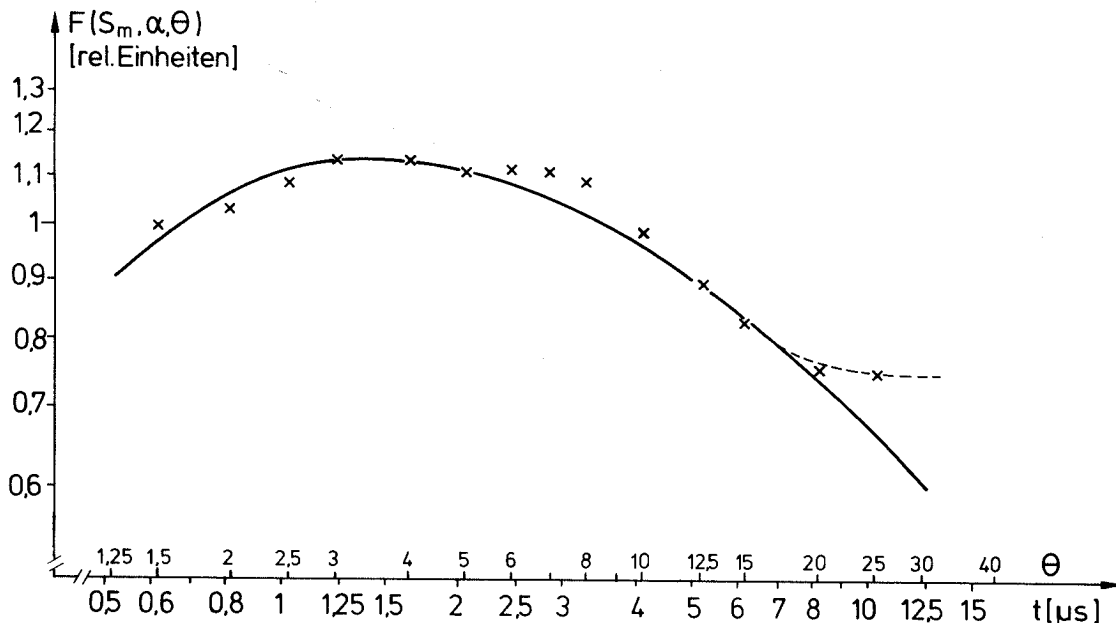


Abb. 5.2: Experimentell nach Gl.(4.14) ermittelte Anregungswahrscheinlichkeit F als Funktion der Aufenthaltsdauer $t = z/v_z$ der Atome im Anregungsvolumen in relativen Einheiten; zum Vergleich mit der Theorie ist der nach Gl.(2.20) berechnete F -Wert als Funktion von $\theta = t/\tau$ für $\tau = 0,41 \mu s$ und $S_m = 0,4$ ebenfalls eingezeichnet (durchgezogene Linie).

schwindigkeitsskala liegt.) Das Ergebnis dieser Auswertung ist in Abb. 5.2 dargestellt. Analog zur Abb. 4.11 ist die F-Funktion in relativen Einheiten im doppelt-logarithmischen Maßstab in Abhängigkeit von der Aufenthaltszeit $t = z/v_z$ der Atome im Anregungsvolumen aufgetragen. Zum Vergleich mit der Theorie ist auch die nach Gl.(2.20) berechnete Anregungswahrscheinlichkeit als Funktion der normierten Zeit $\theta = t/\tau$ für $\tau = 0,41 \mu s$ und $S_m = 0,4$ eingezeichnet (durchgezogene Linie).

Wie in Abb. 4.11 zeigt sich folgendes: Bis zu Flugzeiten vom Target zum Streuvolumen von etwa $6 \mu s$ folgt die F-Funktion mit guter Genauigkeit der theoretisch erwarteten Abhängigkeit. Für längere Zeiten bleibt die Anregungswahrscheinlichkeit konstant. Damit ist die in Abschnitt 4.4.3. gezogene Schlußfolgerung über die Anwendbarkeit der in dieser Arbeit entwickelten Meßmethode experimentell bestätigt worden; d.h.: Beträgt die Flugzeit der Atome durch das Anregungsvolumen weniger als 5 bis $6 \mu s$ ($\hat{=} \theta < 15$), so läßt sich die gemessene Fluoreszenzlichtverteilung nach Gl.(4.13) auswerten, wie im Abschnitt 4.4.2. beschrieben, wobei die Anregungswahrscheinlichkeit nach Gl.(2.20) berechnet wird. Sind die Flugzeiten größer als $6 \mu s$, muß die Geschwindigkeitsverteilung dn/dv_z mit Hilfe des F-Funktionswertes, wie er sich aus Abb. 4.11 ergibt (gestrichelte Linie), ermittelt werden.

5.3. Die Geschwindigkeitsverteilung Ar-, He- und D-zerstäubter Zr-Atome; Auswertung und Diskussion der Ergebnisse

Die Intensitätsverteilungen des Fluoreszenzlichtes $J(n_2)$ wurden, wie in Abschnitt 4.3.1. beschrieben, gemessen. Anstelle der Temperatur wurde die Ionenstromdichte i gemessen;

denn die Zahl der zerstäubten Atome ist direkt proportional zu i . Die Dichte der angeregten Atome, n_2 , wird also im Falle der Zerstäubung:

$$n_2 = (dn/dv_z)(\lambda_L \gamma / 2\pi) \cdot i \cdot F(S_m, \alpha, \theta). \quad (5.1)$$

Da für die Intensitätsverteilungen $J(n_2) \sim n_2$ gilt, müssen die Geschwindigkeitsverteilungen dn/dv_z nach folgender Auswertegleichung bestimmt werden:

$$dn/dv_z \sim J(n_2)/(i \cdot F(S_m, \alpha, \theta)). \quad (5.2)$$

Neben den Intensitätsverteilungen $J(n_2)$ und der Ionenstromdichte i wurden wieder die zur Berechnung von F benötigten Größen Laserleistungsdichte ϕ_L , Abstand z und Frequenzverschiebung $\Delta\nu$ gemessen; letztere wird zur Berechnung von θ in Geschwindigkeiten v_z umgerechnet. Bei der Ar-Zerstäubung wurden die Geschwindigkeitsverteilungen zu den Abständen $z = 3, 6$ und 10 mm, bei der He- und D-Zerstäubung jeweils zu $z = 6$ mm gemessen.

Nach Thompson /50/ nimmt die Energieverteilung zerstäubter Atome im Falle senkrechten Einfalles der Zerstäubungsenen auf eine ebene Fläche die Form

$$d\phi/dE = E \cdot \cos \vartheta / (E + E_b)^3 \quad (5.3)$$

an /51/, wo ϕ der Fluß der zerstäubten Atome, ϑ der Austrittswinkel zur Normalen des Targets und E_b die Oberflächenbindungsenergie der zerstäubten Atome sind; für Metalle nimmt man an, daß E_b gleich der Sublimationsenergie ist. Unter Berücksichtigung der Geometrie der Versuchsanordnung erhält man für die Geschwindigkeitsverteilung der zerstäubten Atome auf der z -Achse analog zu Gl.(2.28) /52/:

$$f(v_z) = (1 + E_z/E_b)^{-2} - (1 + (1+R^2/z^2)E_z/E_b)^{-2} \quad (5.4)$$

mit $E_z = (m/2) \cdot v_z^2$, R als Radius der Zerstäubungsfläche und z als Abstand zwischen Streuvolumen und Targetoberfläche.

Die von Thompson hergeleitete Energieverteilungsfunktion (5.3), die auch aus der Zerstäubungstheorie von Sigmund /53/ folgt, wurde unter den Annahmen hergeleitet, daß das Oberflächenpotential eben und die Zerstäubungskaskaden isotrop sind; d.h. daß die Winkelverteilung der zerstäubten Atome, wie beim

Verdampfen, einer $\cos$ -Verteilung gehorcht. Die Isotropiebedingung wird für schwere Zerstäubungsionen erreicht (z.B.: Xe, Kr), wenn ihre Energien > 5 keV sind. Für leichte Ionen (z.B.: He, D, H) müssen dazu die Energien > 10 keV sein /54/.

Die Ergebnisse der in dieser Arbeit zum ersten Mal mit einem Dauerstrich-Farbstofflaser gemessenen Geschwindigkeitsverteilungen von Atomen, die von Ionen niedriger Energien zerstäubt wurden (< 10 keV), sind in den Abbn. 5.3 und 5.4 dargestellt. Abb. 5.3 zeigt die nach Gl.(5.2) ausgewerteten Intensitätsverteilungen $J(n_2)$ für die Ar-zerstäubten Zr-Atome. Hier ist dn/dv_z in relativen Einheiten als Funktion der Geschwindigkeitskomponente v_z zu verschiedenen Abständen z aufgetragen und mit der theoretischen Geschwindigkeitsverteilung (5.4) verglichen.

Das hohe Auflösungsvermögen und die genaue Nullpunktsbe-

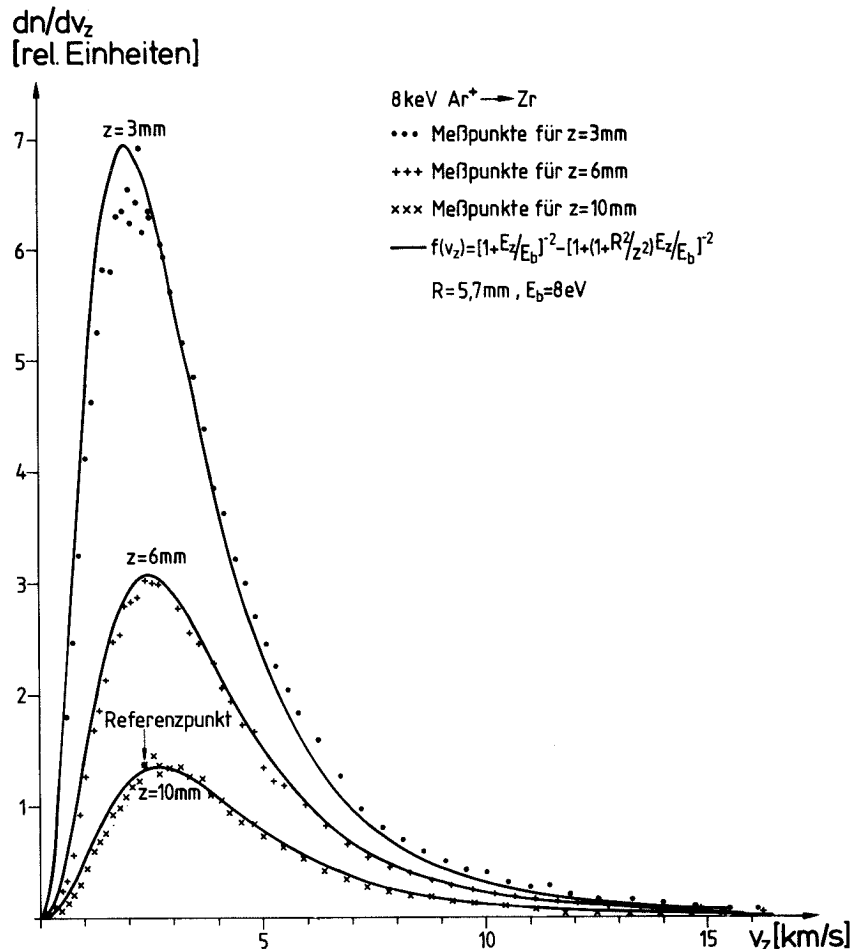


Abb. 5.3: Geschwindigkeitsverteilung Ar-zerstäubter Zr-Atome; zum Vergleich mit der Theorie sind die Verteilungsfunktionen nach Gl.(5.4) /52/ mit dem Parameter $E_b = 8$ eV eingezeichnet.

stimmung der Meßmethode lassen sich dazu ausnutzen, bisher nicht auflösbare Effekte deutlich zu zeigen. Setzt man nämlich für die Bindungsenergie E_b den Wert der Sublimationsenergie von Zr ein (6,4 eV), so erhält man geringfügige, jedoch eindeutige Abweichungen zur Theorie (s. Abb. 5.4). Diese Diskrepanz läßt sich praktisch aufheben, wenn man für die Bindungsenergie 8 eV einsetzt. Diese Verteilungsfunktion ist in Abb. 5.3 zum Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen als durchgezogene Linie eingezeichnet. Die geringen Abweichungen zur Geschwindigkeitsverteilung nach Gl.(5.4) beim Abstand $z = 3$ mm im höherenergetischen Teil lassen sich - zumindest qualitativ - durch die experimentell bedingte Inhomogenität des Ionenstrahles erklären. Außerdem wird mit guter Genauigkeit die durch Gl.(5.4) beschriebene Abhängigkeit der Geschwindigkeitsverteilung von der Geometrie der Versuchsanordnung bestätigt; d.h. daß sich auch für Ar-Ionen einer Energie von 8 keV die Zerstäubungskaskade isotrop ausbildet.

Ein Vergleich der gemessenen Geschwindigkeitsverteilungen der He- und D-zerstäubten Zr-Atome mit der Verteilungsfunktion (5.4) zeigt ein weiteres Phenomen, das sich nur aufgrund der guten Meßgenauigkeit auflösen ließ: Die theoretische Verteilungsfunktion kann für leichter werdende Zerstäubungsionen nur mit einem kleiner werdenden Parameter für die Bindungsenergie angepaßt werden; denn ohne daß sich Form und Amplitude der Funktion (5.4) ändern, verschiebt sich mit kleiner werdendem E_b das Maximum zu kleineren Geschwindigkeiten hin, wobei auch die Breite der Kurven geringer wird. Der Parameter E_b scheint somit von der Ionenart abhängig zu sein, im Gegensatz zur Zerstäubungstheorie, nach der die Geschwindigkeitsverteilung von der Ionenart unabhängig sein sollte.

Um diesen Effekt zu verdeutlichen, sind in Abb. 5.4 die Geschwindigkeitsverteilungen der Ar-, He- und D-zerstäubten Zr-Atome für den Abstand $z = 6$ mm miteinander verglichen; alle Verteilungskurven sind in der Amplitude auf Eins normiert. Die Verteilungsfunktion (5.4) wurde jeweils durch einen entsprechend geänderten Parameter E_b an die Meßkurven angepaßt, und zwar für Ar, wie schon erwähnt, durch $E_b = 8$ eV, für He

durch $E_b = 5,8$ eV und für D durch $E_b = 3,6$ eV. Zusätzlich ist auch die Verteilungsfunktion mit $E_b = 6,4$ eV, dem Wert der Sublimationsenergie, eingezeichnet. Die Verschiebung der Maxima der Geschwindigkeitsverteilungen zu kleineren Energien hin bei leichter werdenden Zerstäubungsionen bleibt auch dann qualitativ vorhanden, wenn man die Ungenauigkeiten der Nullpunktfestlegung (s. Abschnitt 5.4.) berücksichtigt. Eine detaillierte Diskussion dieses Effektes findet man in /55/.

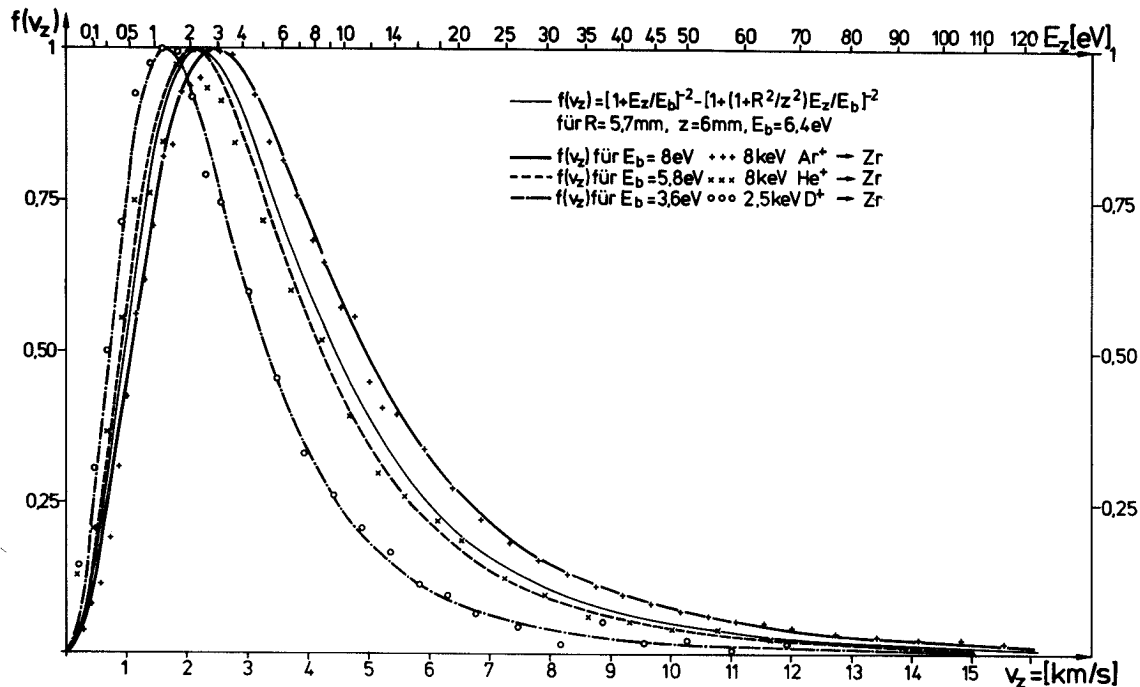


Abb. 5.4: Vergleich der Geschwindigkeitsverteilungen Ar-, He- und D-zerstäubter Zr-Atome beim Abstand $z = 6$ mm mit der theoretischen Verteilungsfunktion nach Gl.(5.4) für $E_b = 6,4$ eV.

5.4. Fehlerbetrachtungen

Die die Messungen beeinflussenden Fehler sind im wesentlichen die gleichen wie bei den thermischen Messungen und sollen hier nur insoweit besprochen werden, wie sie einen anderen oder größeren Einfluß auf die Meßergebnisse haben.

Anstelle der Dichteänderungen infolge von Temperaturschwankungen bei den thermischen Messungen treten nun Dichteände-

rungen aufgrund von Inhomogenitäten und Schwankungen der Ionenstromdichte i als Fehler auf; letzterer läßt sich jedoch wegen der einfachen Abhängigkeit der Teilchendichte von der Stromdichte i (s. Gl.(5.1)) bei der Auswertung leicht kompensieren.

Der Fehler bei der Abstandsmessung ist wegen der Streuvolumen- und Raumwinkelvergrößerung größer geworden, schätzungsweise $\pm 0,2$ bis $0,3$ mm. Die Unterschiede zwischen Theorie und Experiment der Ar-zerstäubten Atome beim Abstand von 3 mm lassen sich auch dadurch erklären.

Die Lage des Nullpunktes ($v_z=0$) wurde ebenso wie bei den thermischen Messungen durch Überfahren des Minimums bestimmt. (s. Abschnitt 4.3.3.) Die beiden Maxima liegen jedoch wesentlich weiter auseinander, sodaß die Lage des Minimums durch die Verbreiterung der Meßkurve ungenauer wird. (Die Berücksichtigung des Isotopieverschiebungseffektes kann wegen der Breite des Geschwindigkeitsspektrums, wie schon erwähnt, vernachlässigt werden.) Für die einzelnen Messungen lassen sich folgende maximale Ungenauigkeiten in der Nullpunktbestimmung angeben:

$$\text{Ar:} \quad \Delta v_z = \pm 50 \text{ m/s,}$$

$$\text{He, D:} \quad \Delta v_z = \pm 150 \text{ m/s.}$$

Den größten Fehlerbeitrag liefern die statistischen Schwankungen der Photonenzählrate und ein auf die Vergrößerung von Streuvolumen und Raumwinkel und die Meßzeitverlängerung (nur bei der He- und D-Zerstäubung) zurückzuführender Zuwachs der Untergrundstrahlung, die hauptsächlich aus im Monochromator getreutem Laserlicht besteht. Zu diesem Untergrund, der mit schwankender Laserleistungsdichte unterschiedlich stark ist, kommt bei den He- und D-Messungen eine wegen der Meßzeitverlängerung um einen Faktor 3 bis 4 stärkere statistische Streuung der Zählrate hinzu. Den Einfluß dieser Fehlerbeiträge erkennt man gut im hochenergetischen Teil der He- und D-Messungen (s. Abb. 5.4).

6. Anhang

6.1. Numerische Berechnung der F-Funktion

Zur Berechnung der Teilchendichte n_2 im angeregten Zustand müssen wir die Funktion $F(S_m, \alpha, \theta)$ berechnen, d.h. wir müssen das Integral

$$F = \int_0^{\infty} w_2(\xi) d\xi \quad (6.1)$$

lösen, wobei $w_2(\xi)$ nach Gl.(2.16a) einzusetzen ist. Dieses Integral läßt sich nicht mehr analytisch lösen. Für eine numerische Lösung ist jedoch die Integrationsgrenze ∞ ungeeignet. Wir führen $S(\xi)$ als Integrationsvariable ein (Gl.(2.6a):

$$S(\xi) = S_m \cdot 1/(1 + \xi^2) \quad (6.2)$$

und erhalten:

$$\frac{d}{d\xi} S(\xi) = -2\xi \cdot S_m / (1 + \xi^2)^2 = -2\xi \cdot S(\xi)^2 / S_m. \quad (6.3)$$

Da nach Gl.(6.2) $\xi = \sqrt{S_m/S(\xi) - 1}$ ist, erhält man aus Gl.(6.3) für $d\xi$:

$$d\xi = -S_m \frac{dS(\xi)}{2S(\xi)^2 \cdot \sqrt{S_m/S(\xi) - 1}}. \quad (6.4)$$

Substituieren wir nun

$$S(\xi) = S_m \cdot \cos^2 \varphi, \quad (6.5)$$

so erhalten wir mit $dS(\xi) = -2S_m \cdot \cos \varphi \cdot \sin \varphi \cdot d\varphi$ aus Gl.(6.4):

$$d\xi = (1/\cos^2 \varphi) d\varphi.$$

Nach Gl.(6.2) wird für $\xi=0$ $S(\xi)=S_m$, und für $\xi \rightarrow \infty$ geht $S(\xi)$ gegen Null. Die Integrationsgrenzen ändern sich somit zu $\varphi=0$ ($\hat{=}\xi=0$) und $\varphi=\pi/2$ ($\hat{=}\xi=\infty$). Setzt man die Substitution in den Ausdruck für w_2 nach Gl.(2.16a) ein, so erhält man schließlich:

$$F(S_m, \alpha, \theta) = g \cdot S_m \int_0^{\pi/2} \frac{d\varphi}{B(\varphi)} \cdot \exp \left\{ -\frac{\theta}{2} (A(\varphi) - B(\varphi)) \right\} \left[1 - \exp \left\{ -\theta \cdot B(\varphi) \right\} \right] \quad (6.7)$$

mit den Abkürzungen

$$A(\varphi) = 1 + (1+g) \cdot \alpha \cdot S_m \cdot \cos^2 \varphi \quad (6.8a)$$

$$B(\varphi) = \sqrt{A(\varphi)^2 - 4g\alpha(1-\alpha)S_m \cos^2 \varphi}. \quad (6.8b)$$

Das Integral (6.7) ist ohne größere Schwierigkeiten numerisch integrierbar, da der Integrand innerhalb der Integrationsgrenzen eine monoton steigende Funktion ist.

6.2. Analytische Näherungslösung des Integrals (6.7) für große θ und S_m

Um eine qualitative und grob-quantitative Aussage über die Abhängigkeit der Funktion $F(S_m, \alpha, \theta)$ von ihren Parametern machen zu können, versuchen wir, das Integral (6.7) näherungsweise analytisch zu lösen. Dazu führen wir folgende neue Variable ein:

$$y = \sqrt{S} \cdot \cos \varphi \quad (6.9)$$

$$\text{mit } S = (1+g)\alpha \cdot S_m. \quad (6.10)$$

Dann erhalten wir für $A(\varphi)$ und $B(\varphi)$ (Gln.(6.8) mit der Abkürzung

$$\alpha' = (1-\alpha)g/(1+g) \quad (6.11)$$

$$A(\varphi) = A(y) = 1 + y^2 \quad (6.12a)$$

$$B(\varphi) = B(y) = \sqrt{(1+y^2)^2 - 4\alpha'y^2} \quad (6.12b)$$

und somit für $F(S_m, \alpha, \theta)$

$$F = 2g \cdot \sqrt{\frac{\alpha S_m}{1+g}} \int_0^S dy / \left[(1+y^2) \cdot \sqrt{1 - \frac{4\alpha'y^2}{(1+y^2)^2}} \cdot \sqrt{1 - \frac{y^2}{S}} \right]^{-1} \cdot \left[\exp \left\{ -\frac{\theta}{2}(1+y^2) \left(1 - \sqrt{(1+y^2)^2 - 4\alpha'y^2} \right) \right\} - \exp \left\{ -\frac{\theta}{2}(1+y^2) \left(1 + \sqrt{(1+y^2)^2 - 4\alpha'y^2} \right) \right\} \right]. \quad (6.13)$$

Da die Wurzel $\sqrt{1-4\alpha'y^2/(1+y^2)^2} \leq 1$ ist, läßt sie sich in eine Reihe entwickeln:

$$\sqrt{1 - \frac{4\alpha'y^2}{(1+y^2)^2}} = 1 - \frac{2\alpha'y^2}{(1+y^2)^2} - \frac{2\alpha'^2 y^4}{(1+y^2)^4} - \dots \quad (6.14)$$

Damit erhält man aus dem Argument der ersten Exponentialfunktion:

$$\begin{aligned} & -\frac{\Theta}{2}(1+y^2)\left(1 - \sqrt{1 - \frac{4\alpha'y^2}{(1+y^2)^2}}\right) \\ & = -\Theta \left[\frac{\alpha'y^2}{1+y^2} + \frac{\alpha'^2 y^4}{(1+y^2)^3} + \frac{2\alpha'^3 y^6}{(1+y^2)^5} + \dots \right] \end{aligned} \quad (6.15)$$

und dem der zweiten Exponentialfunktion:

$$\begin{aligned} & -\frac{\Theta}{2}(1+y^2)\left(1 + \sqrt{1 - \frac{4\alpha'y^2}{(1+y^2)^2}}\right) \\ & = -\Theta \left[(1+y^2) - \frac{y^2}{1+y^2} - \frac{y^4}{(1+y^2)^3} - \dots \right] \end{aligned} \quad (6.16)$$

Mit den Gln.(6.15) und (6.16) und dem Kehrwert von (6.14) folgt aus (6.13):

$$\begin{aligned} F = 2g \sqrt{\frac{\alpha S_m}{1+g}} \int_0^\infty & \left[\exp \left\{ -\Theta \frac{\alpha'y^2}{1+y^2} \left(\frac{1}{1+y^2} + \frac{y^2}{2S(1+y^2)} + \dots \right. \right. \right. \\ & \left. \left. - \frac{\alpha'y^2}{(1+y^2)^4} - \frac{\alpha'y^4}{2S(1+y^2)^4} - \dots \right\} \right. \\ & \left. - \exp \left\{ -\Theta (1+y^2) \left(\frac{1}{1+y^2} - \frac{\alpha'y^2}{(1+y^2)^4} + \dots - \dots \right) \right\} \right] dy \end{aligned} \quad (6.17)$$

Die Erweiterung der oberen Integrationsgrenze ist näherungsweise zulässig, da für große Θ und S_m die Beiträge der Exponentialfunktion sehr klein werden. Mit der Substitution

$$w = y^2/(1+y^2)$$

erhält man dann aus dem ersten Integral (6.17):

$$\begin{aligned} F &= 2g \sqrt{\frac{\alpha S_m}{1+g}} \cdot \frac{1}{2} \cdot \sqrt{\frac{\pi}{\Theta \alpha'}} (1 + \dots) \\ &= \sqrt{\frac{g \alpha \pi S_m}{(1-\alpha) \Theta}} \cdot \end{aligned} \quad (6.18)$$

6.3. Näherungsweise Berechnung der Anregungswahrscheinlichkeit bei breitbandiger Anregung und driftender Laserlinie

Mit dem in Abschnitt 4.4.3. erläuterten Modell einer breitbandigen Anregung mit driftender Laserlinie läßt sich die Anregungswahrscheinlichkeit näherungsweise angeben, wenn man das Laserprofil als rechteckförmig ansieht und die Linienbreite der anzuregenden Atome klein gegenüber der Laserbreite ist; in diesem Fall werden die Sättigungsverbreiterungseffekte vernachlässigt. Da in diesem Modell die spektrale Anregungswahrscheinlichkeit $w_2(\xi)$ - wegen der Vernachlässigung des Dispersionsprofils der atomaren Absorptionslinie - gleich der F-Funktion ist, braucht nur w_2 berechnet zu werden. Dabei wird $S(\xi)$ nach Gl.(2.6) durch ein konstantes, nur noch von der Leistungsdichte und der Linienbreite des Lasers abhängiges S ersetzt, und man erhält anstelle von Gl.(2.16a):

$$w_2 = \frac{g \cdot \alpha \cdot S}{B} \left\{ \exp\left(-\frac{\theta}{2}(A-B)\right) \left[1 - \exp(-\theta B) \right] \right\} \quad (6.19)$$

mit den Abkürzungen:

$$A = (g+1) \cdot \alpha \cdot S + 1 \quad (6.19a)$$

$$B = \sqrt{A^2 - 4g(1-\alpha) \cdot \alpha \cdot S}. \quad (6.19b)$$

Zur Erklärung des mathematischen Verfahrens seien folgende Größen eingeführt (s. auch Abb. 6.1). Die Laserlinienbreite sei mit Δv_L bezeichnet. Ihre Driftgeschwindigkeit sei derart, daß sie in einer Zeit von maximal θ_m Lebensdauern über ihre eigene Breite Δv_L hinweggedriftet ist. Das Hin- und Herdrif-

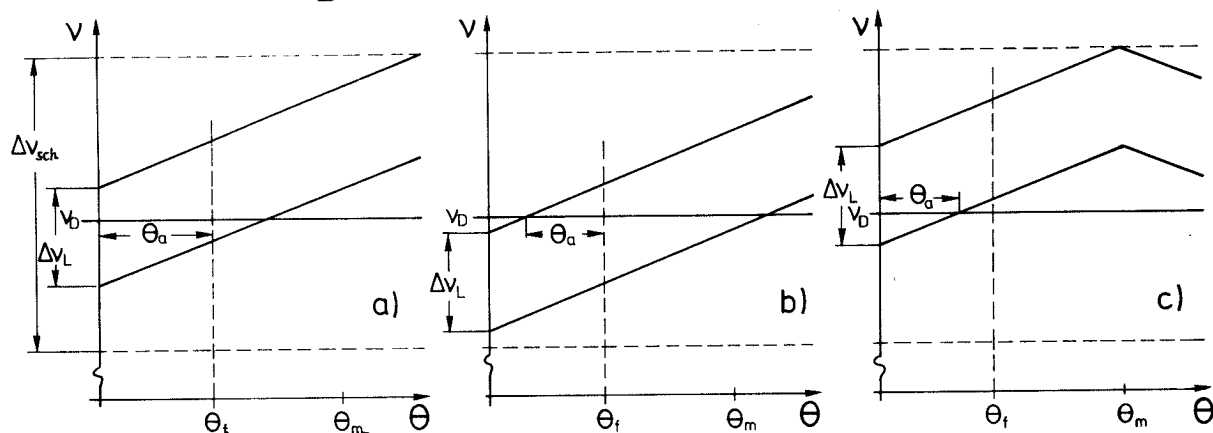


Abb. 6.1: Zur Berechnung der Anregungswahrscheinlichkeit bei driftender breiter Laserlinie

ten der Laserlinie führe zu der scheinbaren Breite $\Delta\nu_{sch}$. Betrachtet sei nun ein Atom, dessen doppler-verschobene Resonanzfrequenz ν_D im Frequenzbereich $\Delta\nu_{sch}$ der scheinbaren Breite liege. Seine Geschwindigkeitskomponente v_z sei derart, daß es eine Flugzeit von θ_f benötige, um das Anregungsvolumen vom Target zum Streuvolumen zu durchfliegen. (s. auch Abb. 2.1, S.5) Je nach Phasenlage der Laserlinie zum Zeitpunkt des Austritts des Atoms aus dem Target ist die Anregungszeit θ_a des Atoms unterschiedlich lang.

Um also die Anregungswahrscheinlichkeit des Atoms im Streuvolumen zu bestimmen, muß man alle Beiträge zur Anregung, die sich aufgrund einer unterschiedlichen Phasenlage der Laserlinie ergeben, zusammenaddieren. Dabei sei desweiteren angenommen, daß alle Phasenlagen gleichwahrscheinlich sind, also das gleiche Gewicht haben. Ferner sei zunächst $\theta_f \leq \theta_m$. Es muß zwischen folgenden Fällen unterschieden werden:

- a) Die Anfangsphasenlage der Laserlinie ist so, daß das Atom während seiner gesamten Flugzeit durch das Anregungsvolumen durch das Laserlicht fliegt (Abb. 6.1a). Für alle diese Fälle ist die Anregungswahrscheinlichkeit gegeben durch

$$w_2^a = \frac{g \alpha S}{B} \left\{ \exp\left(-\frac{\theta_f}{2}(A-B)\right) \left[1 - \exp(-\theta_f B) \right] \right\} = w_2(\theta_f). \quad (6.20a)$$

- b) Das Atom wird erst dann zum ersten Mal angeregt, wenn es sich in einem der Zeit $\theta_a < \theta_f$ entsprechenden Abstand vom Streuvolumen befindet (Abb. 6.1b). Seine Anregungswahrscheinlichkeit im Streuvolumen ist dann

$$w_2^b = \frac{g \alpha S}{B} \left\{ \exp\left(-\frac{\theta_a}{2}(A-B)\right) \left[1 - \exp(-\theta_a B) \right] \right\} = w_2(\theta_a). \quad (6.20b)$$

- c) Das Atom wird nur bis zu einem Abstand vom Target, der der Zeit $\theta_a < \theta_f$ entspricht, angeregt und fliegt den Rest der Strecke bis zum Streuvolumen, ohne angeregt zu werden; d. h. es verliert seine Anregung exponentiell (Abb. 6.1c).

Dann ist seine Anregungswahrscheinlichkeit im Streuvolumen

$$\begin{aligned} w_2^c &= \frac{g \alpha S}{B} \left\{ \exp\left(-\frac{\theta_a}{2}(A-B)\right) \left[1 - \exp(-\theta_a B) \right] \right\} \exp(-(\theta_f - \theta_a)) \\ &= w_2(\theta_a) \exp(-(\theta_f - \theta_a)) \end{aligned} \quad (6.20c)$$

Faßt man nun die Beiträge der Gln.(6.20) zusammen, so erhält man für die Gesamtanregungswahrscheinlichkeit mit den ent-

sprechenden Wichtungen folgenden Mittelwert:

$$w_2 = \sum_{\theta=0}^{\theta_f} w_2(\theta) [1 + \exp(-(\theta_f - \theta))] + (\theta_m - \theta_f) w_2(\theta_f). \quad (6.21)$$

Gl.(6.21) ist nur gültig, solange $\theta_f \leq \theta_m$ ist. Wird die Flugzeit θ_f jedoch länger als θ_m , also $\theta_f > \theta_m$, so wird, da kein Atom im Mittel länger als θ_m Lebensdauern hintereinander angeregt werden kann, aus Gl.(6.21):

$$w_2 = \sum_{\theta=0}^{\theta_m} w_2(\theta) [1 + \exp(-(\theta_f - \theta))]. \quad (6.22)$$

Die Anregungswahrscheinlichkeit $F(S, \alpha, \theta)$ in Abb. 4.12, S.76 wurde nach den Gln.(6.21) bzw. (6.22) für $S = 1$ und $\theta_m = 15$ Lebensdauern berechnet. Die Schrittweite $\Delta\theta$ bei der Summation betrug $\Delta\theta = 1$.

Literaturverzeichnis

- /1/ L.H. Germer: Phys. Rev. 25 (1925), 795
- /2/ H. Rössiger: Z. f. Phys. 19 (1928), 167
- /3/ R. Kollath: Ann. d. Phys. 27 (1936), 721
- /4/ I. Estermann, O.C. Simpson, O. Stern: Phys. Rev. 71 (1947), 238
- /5/ R.C. Miller, P. Kusch: Phys. Rev. 99 (1955), 1314
- /6/ H. Öchsner: Z. f. Phys. 238 (1970), 433
- /7/ A. Elbern: Dissertation, KFA Jülich (1977)
- /8/ P. Bogen, E. Hintz: Comments Plasma Phys. Cont. Fusion 4 (1978), 115
- /9/ A. Elbern, D. Rusbüldt, E. Hintz: Proc. Intern. Sym. Plasma Wall Interaction, Jülich (1976), Pergam. Press, Oxford (1976), 475
- /10/ W.M. Fairbank, Jr., T.W. Hänsch, A.L. Schawlow: Jour. Opt. Soc. Am. 65 (1975), 199
- /11/ A. Elbern, E. Hintz, B. Schweer: Jour. Nucl. Mat. 76 u. 77 (1978), 143
- /12/ D. Hammer, E. Benes, P. Blum, W. Husinsky: Rev. Sci. Instrum. 47 (1976), 1178
- /13/ D. Rusbüldt: Proc. Intern. Symp. Plasma Wall Interaction Jülich (1976), Pergamon Press, Oxford (1976), 483
- /14/ A. Unsöld: Physik der Sternatmosphären (1968), Springer-Verlag
- /15/ M. Born: Optik (1972), Springer-Verlag
- /16/ Maissel & Glang: Handbook of Thin Film Technology, McGraw Hill Book Company (1970)
- /17/ M.L. Citron, H.R. Gray, C.W. Gabel, C.R. Stroud, Jr.: Phys. Rev A, 16 (1977), 1507
- /18/ A. Einstein: Phys. Z. 18 (1917), 121
- /19/ B.R. Mollow: Phys. Rev. 188 (1969), 1969

- /20/ D. Rusbüldt: private Mitteilungen, KFA Jülich, Inst. f. Plasmaphysik
- /21/ F. Reif: Fundamentals of Statistical and Thermal Physics McGraw Hill Book Company (1965)
- /22/ F.P. Schäfer: Dye Lasers, Springer-Verlag (1975)
- /23/ B. Wellegehausen, H. Welling, B. Beigang: App. Phys. 3 (1974), 387
- /24/ B. Wellegehausen, L. Laepple, H. Weeling: App. Phys. 6 (1975), 335
- /25/ F. Flügge: Praxis der geometrischen Optik, Vandenhoeck & Ruprecht, Göttingen (1962), 33 f
- /26/ H. Kogelnik, E.P. Ippen, A. Dienes, Ch. V. Shank: IEEE J. Quant. Elektr. 8 (1972), 373
- /27/ Born & Wolf: Principles of Optics (1959), 323
- /28/ H. Kogelnik, T. Li: App. Opt. 5 (1966), 1550
- /29/ A.G. Fox, T. Li: Bell Syst. Tech. J. 40 (1961), 453
- /30/ G. Boyd, J.P. Gordon: ibidem, 40 (1961), 489
- /31/ G. Boyd, H. Kogelnik: ibidem, 41 (1962), 1347
- /32/ H. Kogelnik: ibidem, 43 (1964), 334
- /33/ T. Li: ibidem, 44 (1965), 917
- /34/ H. Kogelnik: ibidem, 44 (1965), 455
- /35/ T.S. Chin: ibidem, 45 (1966), 287
- /36/ Kleen & Müller: Laser, Springer-Verlag (1969), 49 ff
- /37/ B.B. Snavely: „Continuous Wave Dye Lasers“ in F.P. Schäfer: Dye Lasers, Springer-Verlag (1975)
- /38/ H. Wellin, H.W. Schröder, B. Wellegehausen: Spectr. Lett. 8 (1975), 685
- /39/ O. Teschke, J.R. Whinnery, A. Dienes: J. Quant. Electr. 12 (1976), 513
- /40/ Ch. Gerthsen, H.O. Kneser: Physik, Springer-Verlag (1969)

- /41/ C.H. Corliss, W.R. Bozman: Nat. Bur. Stand. (U.S.) Monograph 53 (1962)
- /42/ Ch. E. Moore: Contribution from the Princeton University Observatory Nr. 20 (1945)
- /43/ - - - -: Circular of the Nat. Bur. Stand. 407 (1952)
- /44/ C.C. Kiess, H.K. Kiess: J. Res. Nat. Bur. Stand. 6 (1931), 621
- /45/ H. Kopfermann: Kernmomente, Akadem. Verlagsgesellsch. Frankfurt a. M. (1956)
- /46/ O.H. Arroe, J.E. Mack: Phys. Rev. 76 (1949), 873
- /47/ S. Büttgenbach, R. Dicke, H. Gebauer, R. Kuhnén, F. Träber: Z. Phys. A (1978), 125
- /48/ E. Biémont, N. Grevesse, P. Hannaford, R.M. Lowe: Astrophys. J. 248 (1981), 867
- /49/ Y.T. Lie, A. Pospieszczyk, J.A. Tagle: DPG-Verhandlungen 4/1982, P 36
- /50/ M.W. Thompson: Phil. Mag. 18 (1968), 377
- /51/ G. Carter, G. Fischer, R. Webb, St. Dzioba, R. Kelly, O. Auciello: Rad. Eff. 45 (1979), 45
- /52/ E. Hintz, D. Rusbüldt, B. Schweer, J. Bohdanský, J. Roth, A.P. Martinelli: J. Nucl. Mat. 93 u. 94 (1980), 656
- /53/ P. Sigmund: Phys. Rev. 184 (1969), 383
- /54/ H.L. Bay, J. Bohdanský, W.O. Hofer, J. Roth: App. Phys. 21 (1980), 327
- /55/ H.L. Bay, W. Berres, E. Hintz: Nucl. Instrum. Methods 194 (1982), 555

Danksagung

Herrn Prof. Dr. E. Hintz, Institut für Plasmaphysik in der Kernforschungsanlage in Jülich, danke ich für sein Interesse an der vorliegenden Arbeit und dafür, die Möglichkeit zu ihrer Durchführung geschaffen zu haben.

Herrn Prof. Dr. H.J. Kunze danke ich für die Übernahme der Korreferenz der Arbeit.

Insbesondere möchte ich Herrn Dr. D. Rusbüldt für seine Hilfe bei der Durchführung der Experimente zur Messung der thermischen Geschwindigkeitsverteilungen und für viele klärende Diskussionen zum Verständnis des theoretischen Hintergrundes herzlich danken.

Herrn Dr. H.L. Bay möchte ich für seine Unterstützung bei der Messung der Geschwindigkeitsverteilungen zerstäubter Atome danken.

Allen genannten sowie den nichtgenannten Mitarbeitern des Instituts, die mir durch ihre Hilfe die Durchführung der Arbeit ermöglicht haben, möchte ich an dieser Stelle herzlich danken.

