

A12: Gepulste Laserspektroskopie an Na-Atomen

1. Thema

Zur optischen Spektroskopie an Atomen und Molekülen werden vielfach Laser eingesetzt, da sie Lichtstrahlung mit hoher spektraler Intensität zur Verfügung stellen. Eine wichtige Rolle spielen dabei Farbstofflaser (Dye-Laser), die über einen kleinen Bereich des optischen Spektrums durchstimmbare sind. Informationen über das dynamische Verhalten atomarer Systeme liefert die gepulste Laserspektroskopie. Zur Messung des Zeitverhaltens nach der Anregung durch einen kurzen Laserpuls müssen experimentelle Techniken eingesetzt werden, die eine hinreichend große Zeitauflösung gewährleisten.

Im vorliegenden Versuch steht ein Stickstofflaser zur Verfügung, der bei einer Wellenlänge von 337 nm Laserpulse einer Dauer von 3 ns emittiert. Damit wird ein Farbstofflaser optisch gepumpt, der sich im Bereich 570...610 nm durchstimmen lässt. Zur Verarbeitung der Messsignale wird ein boxcar-averager eingesetzt. Mit der Strahlung des Dye-Lasers werden Na-Atome in einer beheizten Dampfzelle optisch angeregt. Durch den Nachweis der Resonanzfluoreszenz lassen sich Aussagen über die Lage und Stärke der Absorptionslinien gewinnen; durch das Abklingverhalten der Fluoreszenzstrahlung wird die natürliche Lebensdauer eines der angeregten Zustände ermittelt.

2. Grundlagen

Im vorliegenden Experiment geht es um Anregungsspektroskopie an Na-Dampf in einer beheizten Dampfzelle. Zur möglichst selektiven Anregung der Zustände in Natriumatomen wird Laserlicht verwendet, welches sich nicht nur durch seine hohe Monochromasie sondern auch durch seine **Kohärenz*** [1, Kap. 12] auszeichnet, die zu Interferenzerscheinungen wie z.B. **speckle patterns** [1, Kap. 14.2.2] führt. Bei der Wechselwirkung von Licht mit atomaren und molekularen Systemen ist der Primärprozess die Absorption von Energie aus dem Strahlungsfeld, wobei ein Übergang zwischen **elektronischen Zuständen** erfolgt. Dieser Vorgang wird makroskopisch durch den **Absorptionskoeffizienten α** , mikroskopisch durch die Angabe der **Oszillatorstärke f_{ik}** eines Übergangs beschrieben [2, Kap. 2.7.7; 3, Kap. 2.6.2]. Die aufgenommene Energie kann in Form von **Fluoreszenzstrahlung** (z.B. Resonanzfluoreszenz) oder/und durch **strahlungslose Relaxation (Stokes shift)** wieder abgegeben werden. Für die Funktion des Lasers ist der Vorgang der **induzierten Emission** in Medien mit **Besetzungsinversion** entscheidend [2, Kap. 5.1]. Zur quantitativen Beschreibung von Absorption und Emission werden die **Einsteinkoeffizienten** eingeführt [2, Kap. 2.3]. Die elektronischen Zustände und damit auch alle Spektrallinien besitzen eine **natürliche Linienbreite**, die mit der **mittleren Lebensdauer** der Zustände verknüpft ist [2, Kap. 3.1].

Der **N₂-Laser** ist ein **Drei-Niveau-Laser** [4, Kap. 4.4.4.2], bei dem die Besetzungsinversion durch Elektronenstoß erzeugt wird. Seine Funktionsweise kann anhand eines Luftstickstofflasers mit sehr einfachem Aufbau gut demonstriert werden [5]. Aufgrund der Lebensdauer der beteiligten **Molekülniveaus** [5] kann er nur im Pulsbetrieb arbeiten. Beim **Dye-Laser** [4, Kap. 4.5] werden als aktives Medium Farbstoffmoleküle benutzt, die wegen ihrer Vielzahl von **inneren Freiheitsgraden** eine große Zahl eng benachbarter Zustände besitzen. Durch starke Wechselwirkung mit dem Lösungsmittel tritt zusätzlich zur natürlichen Linienbreite eine **Stoßverbreiterung (homogene Verbreiterung)** auf [2, Kap. 3.3]. Das Absorptionsspektrum zeigt daher eine breite Bandenstruktur. Im Gegensatz dazu fin-

* Die Themenkreise zu den **fett** gedruckten Stichworten sollten Sie zum Versuchsbeginn beherrschen

det man im Absorptionsspektrum von Na-Dampf Spektrallinien, deren Schärfe bei niedrigen Dampfdrücken allein durch die **Dopplerbreite (inhomogene Verbreiterung)** bestimmt wird [2, Kap. 3.2]. In diesem Versuch werden die beiden NaD-Linien betrachtet; d.h. Übergänge vom $3s^2S_{1/2}$ -Zustand in die beiden **Feinstruktur-niveaus** $3p^2P_{1/2}$ und $3p^2P_{3/2}$ [6, Kap. 5.2]. Die Energien dieser Niveaus im **Termschema** wurden durch spektroskopische Messungen genau bestimmt. Zur Berechnung der Wellenfunktionen in Mehrelektronensystemen gibt es Standardverfahren (z.B. Hartree-Fock), die insbesondere für **Alkalimetalle** präzise Ergebnisse liefern [6, Kap. 8]. Es gibt daher gute theoretische Voraussagen über die Lebensdauer der 3P-Zustände für Natrium: $^2P_{1/2} \tau = 16.40 \text{ ns}$, $^2P_{3/2} \tau = 16.35 \text{ ns}$ [7]. Bei der Messung von τ in einer Gaszelle muss der Dampfdruck möglichst klein sein, um Reabsorption der Fluoreszenzstrahlung zu vermeiden [8, Kap. IV].

3. Versuchsaufbau

Der durchstimmbare Farbstofflaser ist ausführlich in Ref. 9 beschrieben. Als wellenlängenselektives Element dient ein **geritztes Strichgitter** mit 600 Strichen/mm und einer **Blaze-Wellenlänge** von $2.7 \mu\text{m}$, das in der **5. Ordnung** in **Littrow-Anordnung** betrieben wird [1, Kap. 10.2.7]. Das UV-Licht des Stickstofflasers wird mit einer **Zylinderlinse** auf die 1 cm breite Küvette fokussiert, um durch den Strichfokus die Strahlrichtung zu definieren. Zur Erhöhung des **Auflösungsvermögens** bei der Wellenlängenselektion befindet sich im Strahlengang ein **Galilei-Teleskop** [1, Kap. 5.7.6]. Die Laserwellenlänge wird durch Drehung des Gitters mit einem Schrittmotor eingestellt; das Laserlicht durch eine Glasplatte ausgekoppelt und in die Natriumzelle fokussiert. Die Bandbreite der Strahlung kann mit einem **Fabry-Perot-Etalon** gemessen werden [1, Kap. 9.8]. Das Na-Fluoreszenzlicht wird mit dem **Photomultiplier** [2, Kap. 4.5.3] in ein elektrisches Signal umgewandelt und im **boxcar integrator** (gated integrator, fast sampler) [2, Kap. 4.5.10] zeitaufgelöst weiterverarbeitet. Hierbei wird das gepulste Signal über ein kurzes Zeitintervall integriert, wobei die Verzögerungszeit (delay) zwischen Laserpuls und Beginn der Integration durch einen **gate scanner** [10, Seite 82-95] verändert werden kann. Die Synchronisation (trigger) mit dem Laser erfolgt über eine Photodiode, die den Stickstofflaserpuls registriert. Zur Verbesserung des **Signal/Rausch-Verhältnisses** [11, Kap. B.0] wird das Ausgangssignal des gated integrator im nachgeschalteten **averager** über mehrere Pulse gemittelt, an den Messinstrumenten angezeigt und mit dem xy-Schreiber aufgezeichnet. Bei Messungen, bei denen nur die Intensität des Laserlichts interessiert, nicht aber die Zeitstruktur, wird mit einer langsamen **PIN-Photodiode** [2, Kap. 4.5.8] gemessen, die eine Vorintegration durchführt. Trotz der Vorintegration ist das **Tastverhältnis**, d.h. das Verhältnis aus Breite und Wiederholzeit der Pulse sehr klein, so dass der boxcar integrator wesentlich zur Unterdrückung unerwünschter Signale zwischen den Laserpulsen beitragen kann.

4. Aufgaben

A: Ein Teil des Superfluoreszenzlichts aus der Küvette wird auf den Eingangsspalt des Monochromators fokussiert. Das Signal der Photodiode am Ausgangsspalt wird auf dem Oszilloskop dargestellt und mit dem boxcar averager vermessen.

1. Signal der Photodiode

Bei kleiner Torbreite (gate width < 500 ns) und zwei Einstellungen Mittelung (30 und 300 samples) ist das Signal abzutasten und als Funktion der Verzögerung (gate delay 0...15 μs) auf dem Schreiber darzustellen.

2. Superfluoreszenzspektrum

Die Intensität der Fluoreszenzstrahlung ist als Funktion der Wellenlänge zu messen. Dazu wird die Wellenlänge am Monochromator auf Werte im Bereich 560...620 nm eingestellt, und die Signalintensität bei moderater Mittelung (30 samples) am Messgerät abgelesen. Es ist eine Tabelle anzulegen, in der in Abständen von ca. 2 nm Wellenlängen und Intensitätswerte notiert werden.

B: Aufbau und Justierung des Farbstofflasers

Zunächst wird das Gitter so eingestellt, dass der Strahl in sich reflektiert wird. Das Einsetzen der Lasertätigkeit ist an der Farbänderung und dem Auftreten des speckle pattern zu erkennen. Das Gitter muss so justiert werden, dass der Laserstrahl über den gesamten Durchstimbereich seine Lage nicht verändert. Nun wird die Glasplatte (Auskoppelspiegel) eingesetzt und senkrecht zum Strahlengang justiert. Die Bandbreite des Laserlichts ist nun so gering, dass nach Einsetzen des Fabry-Perot-Etalons das Ringsystem erscheint. Die Feinjustierung erfolgt durch feinfühliges Herumdrehen, zyklisch an allen verfügbaren Justierschrauben. Der Laser ist dann optimal justiert, wenn über den gesamten Durchstimbereich ein kontrastreiches Bild mit scharfen, nicht aufgespaltenen, Ringen zu beobachten ist.

C: Ähnlich wie in Aufgabe A wird der Laserstrahl auf den Monochromatorspalt fokussiert.

1. Durchstimbereich des Lasers

Der Laser wird, beginnend im grün-gelben, auf etwa 20 verschiedene Wellenlängen eingestellt. Am Monochromator wird zu jeder Einstellung der Wellenlängenwert für maximale Intensität ermittelt. Die Wellenlängen sind zusammen mit den Intensitäten und der jeweiligen Schrittmotoreinstellung zu notieren. Eine grobe Wellenlängenkabrierung des Dye-Lasers erhält man durch eine Auftragung der Wellenlängenwerte gegen die zugehörigen Schrittzahlen. **Damit die Kalibrierung erhalten bleibt, darf die Wellenlänge von nun an nur noch mit dem Schrittmotor verändert werden!**

D: Der Laserstrahl wird in das Zentrum der Na-Zelle fokussiert. Alle weiteren Messungen erfolgen mit dem Photomultiplier und dem fast sampler. Die Verstärkung des Multipliers kann am Hochspannungsnetzgerät eingestellt werden (**maximal 1 kV**).

1. Zeitstruktur des Laserpulses

Durch Streuung und Reflexionen an den Wänden der Na-Zelle gelangt ein Teil des eingestrahnten Laserlichts zum Photomultiplier. Der Streulichtpuls wird mit dem fast sampler im Bereich 0...100 ns abgetastet und dem xy-Schreiber aufgezeichnet.

2. Fluoreszenzabklingzeit

Das Tor wird ca. 2 ns hinter dem Streulichtpuls positioniert und der Dye-Laser auf die Wellenlänge maximaler Fluoreszenz eingestellt. Dann wird das Tor zu größeren Verzögerungszeiten verfahren und der Zeitverlauf des Fluoreszenzsignals aufgezeichnet.

3. Resonanzfluoreszenzspektrum

Das Tor des gated integrator wird fest auf eine Zeit ca. 2 ns hinter dem Laserpuls positioniert. Der Dye-Laser wird über ca. 3 nm im Bereich der NaD-Linien abgestimmt und die Fluoreszenzintensität synchron auf dem xy-Schreiber aufgezeichnet. Auf dem gleichen Schreiberblatt wird anschließend eine Kalibrierkurve mit dem Fabry-Perot-Etalon aufgenommen. Dazu werden das Etalon eingesetzt und die Photodiode im Zentrum des Ringsystems montiert. Die Modulation der im Zentrum transmittierten Intensität wird als Funktion der eingestrahnten Wellenlänge registriert.

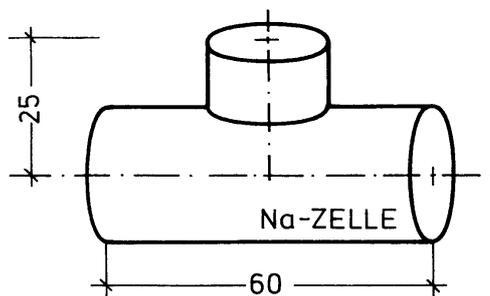
5. Auswertung

- A:** 1. Das vorintegrierte Signal der Photodiode zeigt einen steilen Anstieg und ein exponentielles Abklingen; man bestimme die Abklingzeit. Wie groß ist das Tastverhältnis für diese Messung bei einer Repetitionsrate von 10 Hz? Was bestimmt die Zeitkonstante des abklingenden Signals? Warum unterscheiden sich die Kurven für verschiedene Einstellungen der Mittelung?
2. Die Lage der Emission des verwendeten Farbstoffs Rhodamin 6G soll mit der Lage der Absorptionsbanden verglichen werden. Um eine übersichtliche Darstellung zu erhalten, trage man als Emissionsmaß $\log(I/I_{\min})$ in das Absorptionsspektrum ein, wobei I_{\min} die Minimalintensität der Messreihe ist.
- B:** 1. Die Intensitätskurve des Lasers wird analog zu 5.A.2 in das Absorptionsspektrum eingetragen. Erklären Sie die Lage der Kurven. Warum überlappen Absorption und Emission? Wie und warum unterscheidet sich das Fluoreszenzspektrum von der Laseremission?
- C:** 1. Zum Vergleich mit der Messung aus 5.A.1 bestimme man die Halbwertsbreite des Laserpulses und berechne das Tastverhältnis.
2. Aus dem Na-Termschema entnehme man die Energien der 3P-Zustände und berechne daraus den Frequenzunterschied der NaD-Linien (in GHz). Mit der Korrektur gemäß [12, Kap. E-373] sind die genauen Wellenlängen an Luft zu bestimmen. Man ermittle den gemessenen Frequenzabstand anhand der Kalibrierkurve (Fabry-Perot-Etalon $\text{FSR} = 400 \text{ GHz}$, $F^* = 15$). Man zeichne die Transmissionsfunktion gemäß der Airy-Formel für das verwendete Etalon in die Kalibrierkurve ein. Die gemessene Kurve ist aufgrund der endlichen Bandbreite $\delta\nu_L$ der Laserstrahlung gegen über der Airy-Funktion wesentlich verbreitert. Man schätze $\delta\nu_L$ (in GHz) ab unter der Annahme, dass die Bandbreite allein durch das Auflösungsvermögen des Gitters (Gitterkonstante $a = 1/600 \text{ mm}$) bestimmt wird. Die auf dem Gitter ausgeleuchtete Strecke in der Formel für das Auflösungsvermögen ist hier die Projektion des Strahldurchmessers hinter dem Teleskop ($d = 1 \text{ mm}$) auf die Gitterfläche (Einfallswinkel in Littrow-Anordnung berechnen). Die tatsächliche Bandbreite kann man direkt aus dem gemessenen Spektrum (Halbwertsbreite der Linien) entnehmen, da die Dopplerbreite $\delta\nu_D$ wesentlich kleiner als $\delta\nu_L$ ist. Man berechne $\delta\nu_D$ (in GHz) für die Temperatur während der Messung.
- Die Oszillatorstärken für die D-Linien sind $f_{D1} = 0.33$ und $f_{D2} = 0.65$ [3, Kap. 2.6.2]. Aus der Oszillatorstärke für die D_2 -Linie lässt sich das Wellenlängenintegral über den Absorptionskoeffizienten berechnen [3, Kap. 2.6.2]. Dazu muss zunächst mit Hilfe der Dampfdruckkurve für Na die Teilchendichte in der Zelle berechnet werden. Wie groß ist der Absorptionskoeffizient α_0 im Linienzentrum, wenn man als Verteilungsfunktion eine Gaußverteilung mit der Breite $0.42 \delta\nu_D$ annimmt? Wie groß ist der mittlere Absorptionskoeffizient $\bar{\alpha}$ über das Frequenzintervall $[\nu_0 - 1.3 \delta\nu_D, \nu_0 + 1.3 \delta\nu_D]$, in dem mehr als 99% der Absorption stattfindet? Welcher Bruchteil wird also in diesem Intervall absorbiert und wie groß ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Fluoreszenzphoton reabsorbiert wird, bevor es den Photomultiplier erreicht (Zellengeometrie beachten)? Welcher Anteil des gesamten einfallenden Laserlichts wird von der D_2 -Linie absorbiert, wenn man eine dreieckförmige Wellenlängenverteilung für das eingestrahlte Laserlicht und gleichmäßige Absorption mit dem Absorptionskoeffizienten $\bar{\alpha}$ im oben angegebenen Frequenzintervall annimmt?

3. Die Abklingkurve wird vermessen und die Werte **halblogarithmisch über der Zeit aufgetragen**. Aus der Steigung der Ausgleichsgeraden durch die Punkte bestimme man die Zeitkonstante τ und vergleiche sie mit dem Literaturwert [13]. Wie kann Reabsorption die Messung verfälschen? Welchen Wert (in MHz) erhält man aus der Messung für die natürliche Linienbreite der D₂-Linie?

6. Literatur

- [1] E. Hecht: Optics, Addison-Wesley 1998
- [2] W. Demtröder: Laser Spectroscopy, Springer 2003
- [3] W. Demtröder: Laser Spectroscopy, Springer 1981
- [4] A. Winnacker: Physik von Maser und Laser, B.I. 1984
- [5] H.D. Kornfeld, R. Winkler: Ein einfacher Demonstrationsfarbstofflaser und sein Einsatz in der Spektroskopieausbildung, Physik und Didaktik **1/1979**, 1
- [6] T. Mayer-Kuckuk: Atomphysik, Teubner 1985
- [7] C.E. Theodosion, L.J. Curtis: Accurate calculations of 3p and 3d lifetimes in the Na sequence, Phys. Rev. A **38** (9), 4435 (1988)
- [8] C. Göbel: Sättigungseffekte bei der Na-Resonanzfluoreszenz in einer Gaszelle, Seminararbeit 1991
- [9] J. Leikauf: Aufbau eines UV-gepumpten Farbstofflasers für Demonstrationsexperimente, Staatsexamensarbeit 1990
- [10] Stanford Research Systems - Scientific and Engineering Instruments: Fast Gated Integrators and Boxcar Averagers
- [11] K.D. Kramer: Elektronik-Praktikum, Bertelsmann 1973
- [12] R.C. Weat (Hrsgb.): CRC Handbook of Chemistry and Physics, CRC Press 1986
- [13] J. Carlsson: Accurate time-resolved laser spectroscopy on sodium, Z. Phys. D **9**, 147 (1988)



Geometrie der Na-Zelle

(Maße in mm)

← Laserstrahl

Versuchsaufbau

