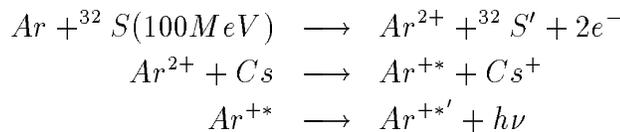


Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird ein Experiment beschrieben, bei dem soweit dem Autor bekannt, erstmals nichtresonanter, selektiver Ladungstransfer zwischen zweifach geladenen Argonionen und neutralen Cäsiumatomen bei thermischen Energien untersucht wurde. Bei Stößen zwischen den Ar^{2+} Ionen im Grundzustand und den Cäsiumatomen wird dabei das Valenzelektron des Alkalimetalles in einen angeregten Zustand des daraufhin nur noch einfach geladenen Argonions transferiert. Der Mechanismus, der im Hinblick auf die Entwicklung ionenstrahlgepumpter, kurzwelliger Laser untersucht wurde, konnte durch die nachfolgenden optischen Übergänge nachgewiesen und quantifiziert werden. Das Experiment hat gezeigt, daß dieser Ladungstransferprozeß sehr effizient ist und sich in der Tat als Pumpmechanismus für kurzwellige Laser zur Diskussion stellt.

Die Ar^{2+} Ionen wurden im Experiment durch Stoßionisation mit einem Schwerionenstrahl erzeugt. Durch dieses Verfahren, die Ionen direkt in einem kalten, dichten Gastarget zu produzieren, ist es möglich, den Ladungstransfer bei thermischen Energien der Stoßpartner zu beobachten. Durch Anwendung eines klassischen Coulombmodells konnten sowohl qualitative als auch quantitative Vorhersagen zum Transferschema gemacht werden. Danach sollten die 4d und 5s Niveaus im ArII, die 4.91eV unterhalb der Ionisierungsenergie des Ar^+ liegen, mit einem Stoßquerschnitt von etwa $6 \cdot 10^{-14} cm^2$ besetzt werden. Dies wurde durch die Messungen bestätigt. Im Überblick kann der gesuchte Mechanismus wie folgt dargestellt werden:



Um auf einfache Art erste Hinweise für das Auftreten einer Wechselwirkung zwischen Argonionen und Cäsium zu erhalten, wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit ein Experiment an festen Argon-Cäsiumtargets durchgeführt. In Abhängigkeit von der Cäsiumkonzentration in Argoneis wurde dabei die spektrale Emission im Wellenlängenbereich von 120 – 700nm gemessen. Dieses ist im Anhang beschrieben.

Für das eigentliche Experiment wurde eine Apparatur entwickelt, in der Edelgase mit Metalldämpfen in variablen Verhältnissen zueinander gemischt und mit dem Schwerionenstrahl angeregt werden können. Dabei wurde auf einen großen dynamischen Bereich der Mischungsverhältnisse geachtet, der es erlaubte, durch eine Variation der Temperatur von 20°C auf 512°C dem Edelgas bis zu 100hPa Cäsiumdampf beizumengen. Um mögliche Konkurrenzprozesse zum Ladungstransfer zu begrenzen, wählte man Argondichten von $7 \cdot 10^{18} \frac{1}{cm^3}$ und $2.8 \cdot 10^{18} \frac{1}{cm^3}$, die bei 200°C Drücken von 250hPa und 100hPa im Target entsprechen.

Die Targetmischungen wurden mit einem gepulsten 100MeV ^{32}S Schwerionenstrahl vom Münchner Tandem-van-de-Graaff Beschleuniger mit einer Pulsbreite von 2ns (FWHM) angeregt. Zur spektroskopischen Analyse der prognostizierten Ladungstransferreaktion wurden von dem dabei emittierten Licht sowohl Wellenlängenspektren als auch Zeitspektren aufgenommen.

Bei Zugabe des Cäsiumdampfes zum Argon Gastarget, wurde in den Wellenlängenspektren ein starkes Anwachsen einzelner Spektrallinien, knapp oberhalb der Photoabsorptionskante des Cäsiums beobachtet, die bei 318nm liegt. Alle diese Spektrallinien konnten Übergängen des einfach geladenen Argonions zugeordnet werden. Die oberen Niveaus dieser Linien liegen mit vier Ausnahmen in einem schmalen Energieband von 200meV etwa 4.8eV unterhalb der Ionisationskante, was nahezu exakt mit der Prognose aus dem Modell übereinstimmt. Die Abweichungen der vier anderen Linien konnten mit einer Beteiligung angeregter Niveaus sowohl im Cäsium als auch im Argon begründet werden. Etwa ein Viertel der insgesamt, auf allen durch den Ladungstransfer verstärkten Linien emittierten Intensität wird auf einer einzigen Spektrallinie ($4d\ ^4D_{7/2}-4p\ ^4D_{5/2}^0$) bei 349.15nm ausgesandt.

Der Ladungstransfer zwischen Ar^{2+} und Cäsium ist ein sehr effizienter Mechanismus, der schon ab einer Cäsiumkonzentration von $1.3 \cdot 10^{15} \frac{1}{\text{cm}^3}$ in einer Argonumgebung der Dichte $1.7 \cdot 10^{18} \frac{1}{\text{cm}^3}$ alle Konkurrenzprozesse im Target dominiert.

Die auf ausgewählten Linien aufgenommenen Zeitspektren waren eine weitere Bestätigung für die Modellvorstellungen und gestatteten eine quantitative Untersuchung der kinetischen Prozesse. Aus der Konzentrationsabhängigkeit in den Zeitspektren konnte unter Zuhilfenahme eines kinetischen Modells eine Ratenkonstante von $(1.4 \pm 0.2) \cdot 10^{-9} \frac{\text{cm}^3}{\text{s}}$ für den Ar^{2+} -Cs Ladungstransfer berechnet werden. Außerdem wurde mit derselben Methode eine Ratenkonstante von $(5.7 \pm 0.7) \cdot 10^{-31} \frac{\text{cm}^6}{\text{s}}$ für den stärksten Konkurrenzprozeß, die Bildung des zweifach geladenen Argondimers gemessen. Der Wert ist konsistent mit früheren Ergebnissen bei Beobachtungen am dritten Excimerkontinuum vom Argon und bestätigt damit dessen Zuordnung zum strahlenden Zerfall von Ar_2^{2+} . Der ebenfalls ermittelte, kleine Wert der Ratenkonstanten für den Ladungstransfer zwischen Ar^{2+} Ionen und Argonatomen, von $(3.5 \pm 8.2) \cdot 10^{-13} \frac{\text{cm}^3}{\text{s}}$ ist ebenfalls mit Werten aus der Literatur konsistent.

Im Ausblick werden einige Perspektiven zur Anwendung des selektiven Ladungstransfers bei schwerionenstrahlgepumpten Lasern erörtert. Die Argonionenlinie bei 349.15nm ist bisher nicht als Laserlinie bekannt. Betrachtungen an den Wellenlängenspektren der hier beschriebenen Experimente ergaben, daß das untere 4p Niveau dieses Überganges sehr stark durch nichtstrahlende Abregungsmechanismen entvölkert wird, was für die Aufrechterhaltung der Besetzungsinversion im Lasermedium erforderlich ist. Damit ist mit den bei diesem Experiment erprobten Strahlparametern und einer Länge des angeregten Volumens von 20cm eine Verstärkung von 1.4% bei dieser Wellenlänge erreichbar. Durch eine Optimierung des Schwerionenstrahlstromes, der erfahrungsgemäß noch um einen Faktor vier gesteigert werden kann, ergäbe sich eine beachtliche optische Verstärkung von maximal 5.6% pro Durchlauf

durch das aktive Medium direkt nach dem Anregungspuls. Es konnte abgeschätzt werden, daß bei einer typischen Resonator konstruktion mit heutigen technischen Möglichkeiten bereits mit den am Münchner Tandem-van-de-Graaff Beschleuniger verfügbaren Strahlleistungen ein Laser auf der 349.15nm Linie realisierbar sein sollte. Ein möglicher Laseraufbau wird beschrieben, wobei die Verwendung eines quasi kontinuierlichen Ionenstrahls zum Pumpen des Lasers vorgeschlagen wird.

Selektiver Ladungstransfer sollte aber auch zwischen anderen Stoßpartnern erfolgen, so daß bei geänderten Schwerionenstrahl- und Targetparametern durchaus noch kurzwelligere Linien optische Verstärkung zeigen könnten.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Physikalische Grundlagen	3
2.1	Modell des nichtresonanten Ladungstransfers	3
2.2	Erzeugung von Ionen in einem Gastarget durch den Schwerionenstrahl	7
2.3	Lichtausbeute am Detektorsystem	9
2.4	Auswahlkriterien für die Targetmischung	10
2.5	Die Kinetik des Ladungstransfers unter dem Einfluß möglicher Konkurrenzprozesse	12
2.5.1	Kinetik des Ladungstransfers unter idealen Bedingungen . . .	12
2.5.2	Einfluß möglicher Konkurrenzprozesse	13
2.5.3	Zeitverhalten der Linienemission unter realen Bedingungen . .	15
3	Aufbau der 'ArCHe' – Argon Cäsium Hochtemperaturexperiment	17
3.1	Der Ofen	17
3.2	Das Experimentiervolumen	19
3.3	Das Folienfenster	22
3.4	Das Cäsiumreservoir	23
3.5	Strahlparameter im Experiment	25
4	Das Datenaufnahmesystem	26
4.1	Wellenlängenspektren	26
4.2	Zeitspektren	27
5	Meßergebnisse und Interpretation	29
5.1	Die Wellenlängenspektren	29
5.1.1	Darstellung der Meßergebnisse	29
5.1.2	Vergleich der Ergebnisse aus den Wellenlängenspektren mit dem Modell	32
5.1.3	Die Effizienz des Ladungstransfers	34
5.1.4	Erste Zeitinformationen aus den Wellenlängenspektren	38
5.2	Die Zeitspektren	42
5.2.1	Wirkung des Ladungstransfers auf die Zeitstruktur der ArII Linie bei 349.15nm.	42
5.2.2	Einfluß der Cäsiumkonzentration auf die Zeitstruktur	42
5.2.3	Ableitung der Ratenkonstanten des Ladungstransfers	44
5.2.4	Experimentelle Bestätigung der Ratenkonstante zur Bildungskinetik des zweifach geladenen Argonmolekülions als Konkurrenzprozeß zum Ladungstransfer	46

6	Ausblicke	49
6.1	Grundlagen der Laserphysik	49
6.2	Nutzung des Ar^{2+} -Cs Ladungstransfers in einem Laser.	49
6.2.1	Abschätzung der optischen Verstärkung für die in diesem Experiment verwendeten Strahl- und Targetparameter	51
6.2.2	Optimierte Betriebsbedingungen	52
6.3	Weiterführende Überlegungen	55
6.3.1	Verwendung höherer Ladungszustände	55
6.3.2	Vermeidung von Reabsorbtion im Target	55
7	Anhang: Untersuchung der Emissionen aus festen Argon–Cäsium–Mischungen – ein Vorexperiment	57
7.1	Aufbau der Vorexperimente	57
7.2	Das Kryotarget	58
7.2.1	Atomstrahlapparatur	60
7.2.2	Abschätzung der Cäsiumkonzentration in den Kryotargets	60
7.3	Die Emissionen aus den festen Argon-Cäsium-Targets	62
	Abbildungsverzeichnis	65
	Literaturverzeichnis	67

Kapitel 1

Einleitung

Die Entwicklung kurzweiliger Laser ist von großem wissenschaftlichen Interesse und wird seit Jahren mit Nachdruck vorangetrieben [1][2]. Dieses Arbeitsgebiet fußt auf ersten Erfolgen im Jahr 1985. Mit einer Technik explodierender Folien konnte damals Lasertätigkeit in neonartigem Selen, bei ca. 20nm, und damit deutlich unter der Grenze von ca. 100nm, die lange Zeit bestanden hatte, nachgewiesen werden [3][4][5]. Für diese Experimente wurde als Pumpenergiequelle der bisher leistungsstärkste Laser (Nova), ein Nd-Glas Laser mit einer Maximalleistung von 6TW in 0.5ns, des Lawrence Livermore Laboratory in Kalifornien (USA), benutzt. In der folgenden Zeit wurden mit sehr ähnlichen Methoden vor allem neon- und nickelartige Ionen der unterschiedlichsten Atomsorten, für die die Laserschemata gut bekannt sind, untersucht.

Bisher funktionieren fast alle Laser im weichen Röntgengebiet nur als sogenannte ASE-Laser, bei denen die Verstärkung in einem einzigen Durchgang durch das aktive Medium erzielt wird. Bei solchen, durch Laserpulse gepumpten Systemen ist die Verwendung von Resonatoren etwas problematisch und auch die dabei auftretenden Dichtegradienten führen zu unerwünschten Beugungseffekten im aktiven Medium. Der Trend in der Röntgenlaserforschung geht heute hin zur Suche nach Systemen mit kleineren Pumpleistungen, höheren Repititionsraten, und besseren Strahlqualitäten.

Speziell im Wellenlängenbereich von etwa 2-4nm, dem sogenannten Wasserfenster, gibt es schon heute eine Vielzahl von Anwendungsmöglichkeiten der Laser [6]. Für Biologen und Biochemiker beispielsweise ist eine kohärente Röntgenquelle hoher Brillanz ein ideales Werkzeug zur Untersuchung kleinster Zellstrukturen oder einer Analyse von Makromolekülen. Diese Untersuchungen, die bisher bei Anwendung von Elektronenmikroskopen eine aufwendige Probenpräparation erfordern, könnten durch Röntgenlaser auch an lebenden Organismen durchgeführt werden und so das Wissen über biologische Zusammenhänge entscheidend vertiefen. Aber auch andere Bereiche der Naturwissenschaften, wie die Festkörperphysik, Chemie oder Medizin, sind an der Nutzung von kurzweiligen Lasern interessiert. Kurzweilige Excimerlaser mit Wellenlängen im 150-400nm Bereich werden bereits heute in Wissenschaft und Technik häufig eingesetzt.

Vergleichbare Strahlqualitäten in den für Laseranwender bisher noch nicht erschlossenen Spektralbereichen können nur mit Undulatoren an den großen Synchrotronbeschleunigern erzeugt werden. Synchrotronstrahlungsquellen haben zwar eine Fülle von Vorzügen wie z.B. die hohe mittlere Leistung, variable Wahl der Wellenlängen oder die Produktion von ultrakurzen Wellenlängen, die von den Röntgenlasern wohl kaum zu erreichen sein werden, aber nur eine Brillanz, die um mehr als eine Größenordnung unter der liegt, die von Röntgenlasern erwartet wird [7].

Abgesehen von einigen anderen Ansätzen, wie etwa dem Freien-Elektronen-Laser, muß es zur Verwirklichung kurzweiliger Laser gelingen, angeregte Niveaus in hochgeladenen Ionen zu besetzen, da nur diese die gewünschten kurzweiligen Übergänge zeigen. Diese Besetzung darf aber nicht der des thermischen Gleichgewichts entsprechen, da sonst eine für den Laser notwendige Besetzungsinversion nicht erreicht werden kann. Zur Produktion der hochgeladenen Ionen werden, wie oben beschrieben, bisher vor allem Hochleistungslaserpulse genutzt. Die hochangeregten Niveaus werden durch die dabei auftretenden Mechanismen der Elektronenstoßanregung oder durch Rekombination besetzt.

Hochleistungslaser können zwar gut thermisch hochgeladene Ionen erzeugen, die selektive Besetzung einzelner Niveaus abseits vom thermischen Gleichgewicht muß dann aber in einer geänderten Umgebung erfolgen. Als ein Ansatz dazu wurde bereits 1971 vorgeschlagen [8][9], durch Ladungstransferreaktionen die Entwicklung einer Besetzungsinversion im Lasermedium zu beschleunigen [10][11]. Dabei sollen angeregte Niveaus der hochgeladenen Ionen durch eine Ladungstransferreaktion mit anderen Spezies selektiv besetzt werden. Erste Experimente zu diesem Pumpschema wurden bereits durchgeführt [12][13][14]. Da bei dieser Reaktion in der Regel bestimmte Niveaus bevorzugt besetzt werden, führt dies automatisch zu Besetzungsdichten, die abseits der des thermischen Gleichgewichts liegen.

Je heißer allerdings das Lasermedium ist, umso stärker tritt die Selektivität des Ladungstransfers in den Hintergrund und man erhält wieder eine breitere Besetzung der ionischen Energieniveaus, deren Schwerpunkt außerdem von der kinetischen Energie der stoßenden Teilchen abhängt [15]. Zudem ist bereits bekannt, daß die Wirkungsquerschnitte für nichtresonanten Ladungstransfer zwischen zweifach geladenen Edelgasionen und Atomen bei einer Absenkung der Stoßenergien unter 5-10eV anwachsen [16]. Um einen selektiven Ladungstransfer in angeregte Niveaus beobachten zu können, muß man also hochgeladene Ionen in einer kalten und dichten Umgebung mit ihren Transferpartnern zusammenbringen. Bisher war die Methode immer die, daß entweder mit Ionenstrahlen experimentiert [15], oder die mehrfach ionisierten Atome in heißen Plasmen erzeugt, anschließend abgekühlt und mit den Elektronendonatoren in Kontakt gebracht wurden [17]. Nun erscheint es aber zweckmäßiger, diesen Schritt zu sparen und die Ionen gleich an Ort und Stelle mit den gewünschten Eigenschaften 'in situ' zu erzeugen [18]. Die Ionisation durch Schwerionenstrahlen in einem Gastarget erfüllt diese Bedingung fast optimal. Hierbei werden durch die Coulombstöße der hochenergetischen Schwerionen mit den Targetatomen nahezu rückstoßfrei hochgeladene Ionen erzeugt, ohne daß das Target wesentlich erwärmt wird.

In dem, in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Experiment wurde zum einen gezeigt, daß es bei der Kombination aus 'in situ' Produktion mehrfach geladener Ionen in einem Schwerionenstrahltarget und einer anschließenden Ladungstransferreaktion zu einer starken, selektiven Besetzung einzelner ionischer Energieniveaus kommt, und zum anderen diskutiert, wie dieser Mechanismus bei der Verwirklichung kurzweiliger Laser angewandt werden kann.

Kapitel 2

Physikalische Grundlagen

2.1 Modell des nichtresonanten Ladungstransfers

Zunächst soll der, für den Aufbau einer Besetzungsinversion wichtige Mechanismus des nichtresonanten Ladungstransfers beschrieben werden, wobei das Vorhandensein von Ionen der Ladung q^+ vorausgesetzt wird. Nichtresonant bedeutet in diesem Zusammenhang, daß keine Symmetrie zwischen Ausgangs- und Endzustand gegeben ist. Die im folgenden betrachtete Ladungstransferreaktion wird durch die Gleichung:



beschrieben. Eine allgemeine und exakte theoretische Beschreibung von Ladungstransferreaktionen zwischen Vielelektronenatomen ist schwierig. Es gibt dazu in der Literatur einige Näherungsansätze (z.B.: [19][20]). Diese sind aber in der Regel nur für kinetische Energien der Stoßteilchen im keV Bereich experimentell abgesichert. In dem in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Experiment sollte aber gerade der Ladungstransfer zwischen 'kalten' Stoßpartnern bei thermischen Energien von ca. 50meV betrachtet werden. Da es sich bei dem an dieser Stelle betrachteten Ladungstransfer aber um einen selektiven Prozeß handeln soll, bei dem einzelne, ausgewählte, angeregte Niveaus besetzt werden, erscheint es wenig sinnvoll, die oben erwähnten Berechnungen in den meV Bereich zu extrapolieren.

Grundsätzlich kann man sich den Stoß zwischen einem höher geladenen Ion A^{q^+} und einem neutralen Atom B anhand von Abbildung 2.1 veranschaulichen. Dort sind die Potentialkurven des Systems für kleine Geschwindigkeiten der Stoßteilchen über dem Kernabstand aufgetragen. Diese unterscheiden sich fundamental von solchen für große Teilchengeschwindigkeiten [16]. Bild a) zeigt den Fall, in dem das Wechselwirkungspotential von Ausgangs- und Endzustand I und II vernachlässigbar ist. Hierbei können die beiden als unabhängig von einander betrachtet werden und es kommt zu einer 'echten' Kreuzung der Potentialkurven. Damit verschwindet aber auch die Übergangswahrscheinlichkeit von I nach II.

Unter bestimmten Bedingungen [21] muß die wechselseitige Störung der Potentiale berücksichtigt werden. Durch die Wechselwirkung kommt es zu einer Mischung der Zustände I und II, die zu einer sogenannten 'vermiedenen' Kreuzung wie in Abbildung 2.1b) führt. Die Landau-Zener Theorie gibt nun für diesen Bereich eine endliche Übergangswahrscheinlichkeit p an, die im wesentlichen vom Wechselwirkungspotential der beiden Zustände abhängt [22][23]. Dieser Fall soll im folgenden auf stark vereinfachte Weise untersucht werden.

Man kann dazu versuchen, das klassische Coulomb-Modell, welches H.F.Beyer und R.Mann [24] für Stöße von nahezu 'nackten' Ionen mit neutralen Atomen be-

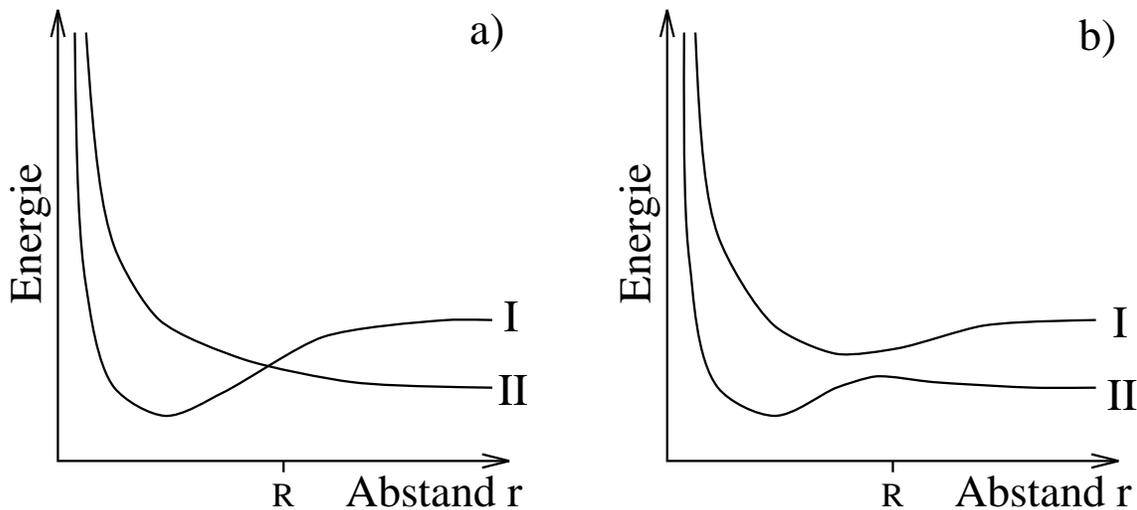


Abbildung 2.1: Potentialverlauf bei einer Annäherung von Atom und Ion. Die Kurven I markieren den Fall $A^{q+} + B$, die Kurven II die Konstellation $A^{((q-1)^+)*} + B^+$. Die linke Darstellung zeigt einen Kreuzungspunkt und entspricht dem ungestörten Fall. In der rechten Darstellung ist der Einfluß der wechselseitigen Störung der Potentiale mitberücksichtigt und es kommt zu einer sogenannten 'vermiedenen' Kreuzung.

nutzten, in etwas abgewandelter Form auf das hier durchgeführte Experiment anzuwenden. Dieses, in Anlehnung an die grundlegende Landau–Zener–Theorie entstandene Modell wurde in ähnlicher Form bereits 1976 von Olson und Salop zur Behandlung von Ladungstransferreaktionen vorgeschlagen [25]. Voraussetzung ist, daß die Stoßradien groß sind, um die Atomrümpfe als punktförmig annehmen und Abschirmeffekte oder Wechselwirkungen der Atomrümpfe vernachlässigen zu können. Außerdem sollen die Stöße, die den Ladungstransfer induzieren, so langsam erfolgen, daß die kinetischen Energien der Stoßpartner vernachlässigbar klein sind. Das ist bei den Rückstößen des Schwerionenstrahls gut erfüllt [26].

In Abbildung 2.2 sind die Potentialverhältnisse eines quasistatischen Stoßes zwischen einem Ion A und einem Atom B (dem Elektronendonator) für das, in der vorliegenden Arbeit angewandte, eindimensionale Coulombmodell nochmals detaillierter dargestellt. Die schmalen $\frac{1}{r}$ bzw. $\frac{q}{r}$ Linien veranschaulichen die Coulombpotentiale der Atomrümpfe, die darunterliegende breite Linie, die Summe aus beiden. Die dünnen Striche unterhalb der Atomrümpfe sollen die gebundenen Zustände des jeweiligen Atomes ohne gegenseitige Wechselwirkung darstellen. Speziell kennzeichnet J_B die Bindungsenergie des äußeren Elektrons im freien Atom, welches beim Transfer als Elektronendonator fungieren soll und E_{A0} die Energie eines bestimmten Niveaus des freien Ions mit der Ladung $(q-1)$.

Nähern sich nun die beiden Stoßpartner, so wirken die jeweiligen Coulombpotentiale wechselseitig auf den jeweils anderen, so daß es in der Summe bei beiden zu einer Absenkung der gebundenen Zustände kommt. Das Valenzelektron hat nun,

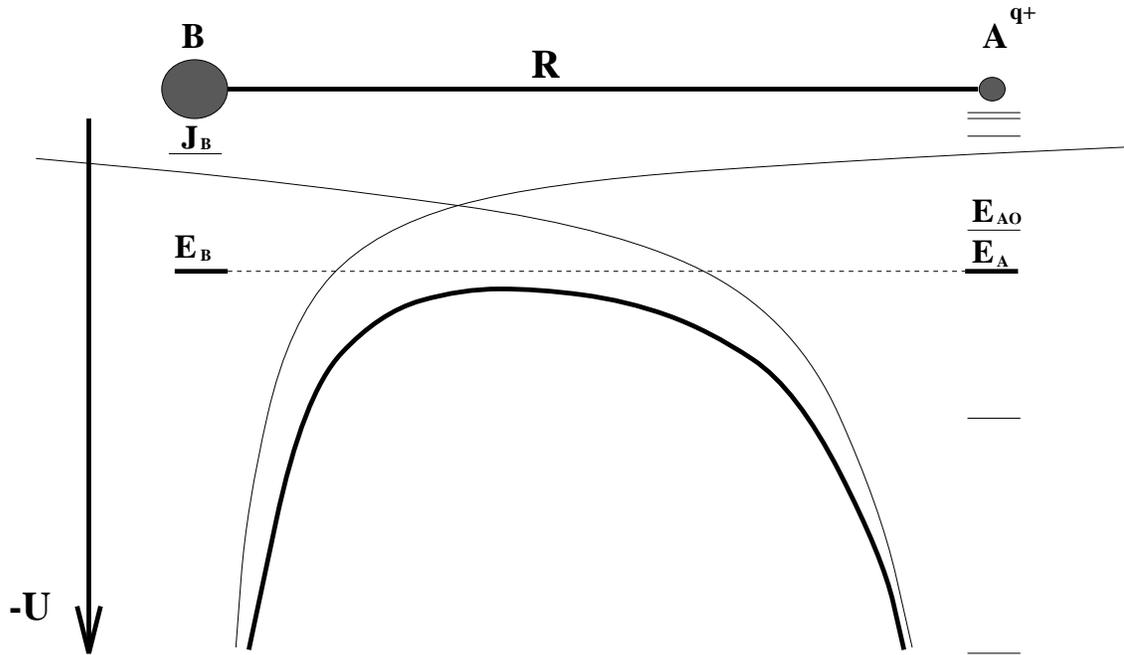


Abbildung 2.2: Potentialverlauf bei einer Annäherung von Atom und Ion in einem eindimensionalen Coulombmodell (Nach [24]).

sobald es sich oberhalb des Maximums des Potentialwalles zwischen den stoßenden Teilchen befindet, einen Kanal, um von B nach A zu gelangen. Damit entsteht jeweils ein $A^{((q-1)^+)*}$ und ein B^+ , die sich wieder voneinander entfernen. Der Prozeß kann klassisch nur dann als Zweiteilchenstoß ablaufen, wenn E_B und E_A bei einem Kernabstand genau identisch werden, bei dem sie beide auch höher als das Maximum der Potentialwalles liegen.

Rechnet man alle Energien von der Ionisationskante des jeweiligen Ladungszustandes aus, so läßt sich dieses Potentialmodell folgendermaßen quantifizieren:

$$E_A = E_{A0} - \frac{1}{R} \quad (2.2)$$

$$E_B = J_B - \frac{q}{R} \quad (2.3)$$

Für einen Zweiteilchenstoß bei sehr kleinen kinetischen Energien muß zusätzlich

$$E_A = E_B \quad (2.4)$$

gelten. Dieser Fall wird auch als 'accidental resonance' bezeichnet [22]. Zusätzlich soll

$$E_A \geq U_{max} \quad \text{sowie} \quad E_B \geq U_{max} \quad (2.5)$$

erfüllt sein, wobei das Maximum des Potentialwalles zwischen den Teilchen, U_{max} , durch die Gleichung

$$U_{max} = -\frac{(q^{\frac{1}{2}} + 1)^2}{R} \quad (2.6)$$

gegeben ist.

Davon ausgehend kann man eine Voraussage machen, in welche Energieniveaus E_{A0} das Valenzelektron des Donors transferiert werden kann. Löst man die obigen vier Gleichungen, so ergibt sich

$$E_{A0} \leq J_B \cdot \left[\frac{1 - q}{q - (q^{\frac{1}{2}} + 1)^2} + 1 \right] \quad (2.7)$$

als Bedingung für die Bevölkerung eines Niveaus. Außerdem kann man den maximalen Kernabstand, ab dem es zu einem Ladungstransfer zwischen A und B kommen kann, zu

$$R = \left[\frac{1 - q}{E_{A0} - J_B} \right] \quad (2.8)$$

berechnen.

In Gleichung 2.7 hängt der Wert der Größe E_{A0} nur von der Ionisierungsenergie des gewählten Elektronendonors und dem Ladungszustand des Ions ab. Das heißt, mit der Wahl dieser beiden Parameter liegen alle anderen fest, so daß man von dieser Berechnung ausgehend den idealen Ionenpartner suchen kann. Mit Gleichung 2.8 kann man dann über die Vorhersage des maximalen Stoßparameters sowohl die Voraussetzung eines großen Stoßradius prüfen, als auch bereits mit der Näherung einer 'harten Scheibe' einen maximalen Wirkungsquerschnitt für den nichtresonanten Ladungstransfer von Cäsiumatomen auf zweifach geladene Argonionen von $\sigma \simeq 6 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2$ prognostizieren.

Anhand dieser Abschätzung und einer mittleren thermischen Geschwindigkeit v der Teilchen von etwa $450 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ im Target ($\sim 200^\circ \text{C}$), läßt sich außerdem eine quantitative Vorhersage für die zu erwartende Ratenkonstante machen. Diese ist dabei durch die Gleichung:

$$k_{tr} = \sigma \cdot v \cdot 2p(1 - p) \quad (2.9)$$

gegeben, und hat somit den Wert $1.3 \cdot 10^{-9} \frac{\text{cm}^3}{\text{s}}$. p bezeichnet wieder die Übergangswahrscheinlichkeit vom Zustand $\text{Ar}^{2+} + \text{Cs}$ nach $\text{Cs}^+ + \text{Ar}^{+*}$. Eine obere Abschätzung für den Faktor $2p(1-p)$, der das notwendige, zweimalige Durchlaufen des 'Kreuzungspunktes' berücksichtigt, ist mit 0.5 gegeben.

Bei einer Dichte von beispielsweise $10^{10} \frac{1}{\text{cm}^3}$ der Ar^{2+} Ionen und $10^{17} \frac{1}{\text{cm}^3}$ Cäsiumatomen ergibt sich, daß unter Vernachlässigung aller Konkurrenzprozesse etwa 10^9 Photonen pro cm^3 und ns auf den vom Transfer bevölkerten Linien emittiert würden. Verglichen mit den bei der Schwerionenstrahlanregung direkt erzeugten Ionenlinien, auf denen größenordnungsmäßig etwa 10^7 Photonen pro cm^3 und ns abgestrahlt werden [27], müßten die Transferlinien zumindest in der Summe die Wellenlängenspektren dominieren.

2.2 Erzeugung von Ionen in einem Gastarget durch den Schwerionenstrahl

Ein Schwerionenstrahl mit einigen MeV/u, wie er z.B. vom Münchner Tandem Beschleuniger zur Verfügung gestellt wird, besteht aus hochgeladenen Projektilen, welche in einem Target ihre Energie vorwiegend über Coulombstöße verlieren. Neben elastischen Stößen und Anregung von Targetatomen ist die Ionisation der wesentlichste Mechanismus des Energieübertrages an die Stoßpartner.

Der besondere Vorteil der Ionisation durch Schwerionenstrahlen liegt darin, daß die erzeugten Ionen nur Rückstoßenergien besitzen, die um einen Schwerpunkt von etwa 100meV mit einer Breite von etwa 200meV (FWHM) verteilt sind [26]. Dadurch sind sie schon zu Beginn der Folgereaktionen im Target thermalisiert und ändern so bei weiteren Stößen mit anderen Targetatomen ihre kinetische Energie nur noch unwesentlich. Zudem sind die experimentellen Bedingungen so, daß es auch durch die mittlere Strahlleistung nicht zu einer wesentlichen Erwärmung des Targetgases kommt. Anschließende Reaktionen der Ionen finden also bei kinetischen Energien der Stoßteilchen, die sehr viel kleiner als die Anregungsenergien sind, mit einem Wort in 'kalter' Umgebung statt. Außerdem wird der Targetgasdruck so gewählt, daß die mittlere freie Weglänge im Target ebenfalls sehr viel kleiner als der Strahldurchmesser ist und es somit zu hohen Stoßraten zwischen den erzeugten Ionen und neutralen Atomen im Target kommt. Im folgenden wird dies als 'dichte' Umgebung bezeichnet. Es handelt sich folglich nicht um Einzelstoßexperimente, wie sie oft in der Kern- oder Atomphysik mit hochenergetischen Ionen von Beschleunigern gemacht werden.

In Abbildung 2.3 sind Ionisationswirkungsquerschnitte für die verschiedenen Ionisierungsstufen, die unter solchen Einzelstoßbedingungen gemessen wurden und hier zur Berechnung der Primärprozesse benutzt werden können, exemplarisch gezeigt [28]. Man erkennt, daß quasi alle Ladungszustände einer Targetspezies durch die Schwerionenstöße bevölkert werden. Das zeigt auch, mit welcher außergewöhnlicher 'Heftigkeit' die Stöße zwischen den Schwerionen und den Targetatomen ablaufen. Beispielsweise unterscheiden sich die Wirkungsquerschnitte für die Erzeugung von Ar^{1+} und Ar^{10+} nur um zwei Größenordnungen. Anhand empirischer Daten [29] kann man leicht nachvollziehen, daß der in Form von Ionisierungsenergie gespeicherte Anteil der Anregung für alle Ladungszustände von vergleichbarer Größe ist.

Abbildung 2.3 zeigt außerdem, daß die Wirkungsquerschnitte für n-fache Ionisation über einen weiten Bereich nur schwach von der Projektilenergie abhängen. Dieser Umstand erleichtert nicht nur die Vorhersage der im geplanten Experiment zu erwartenden Ionendichten, sondern sorgt auch für sehr ähnliche Bedingungen längs des gesamten Weges des Schwerionenstrahles durch das Target, was bei den geplanten Laseranwendungen ausgenützt werden kann [30]. Auf der anderen Seite hängen die Wirkungsquerschnitte für n-fache Ionisation ganz entscheidend von der Masse bzw. der Ordnungszahl der Targetatome ab. Um im Verhältnis zur Targetdichte möglichst hohe Ionendichten zu erreichen, gilt es, eine möglichst schwere Targetspezies zu wählen.

Nicht zuletzt hängt die ionisierende Wirkung der Schwerionen natürlich auch

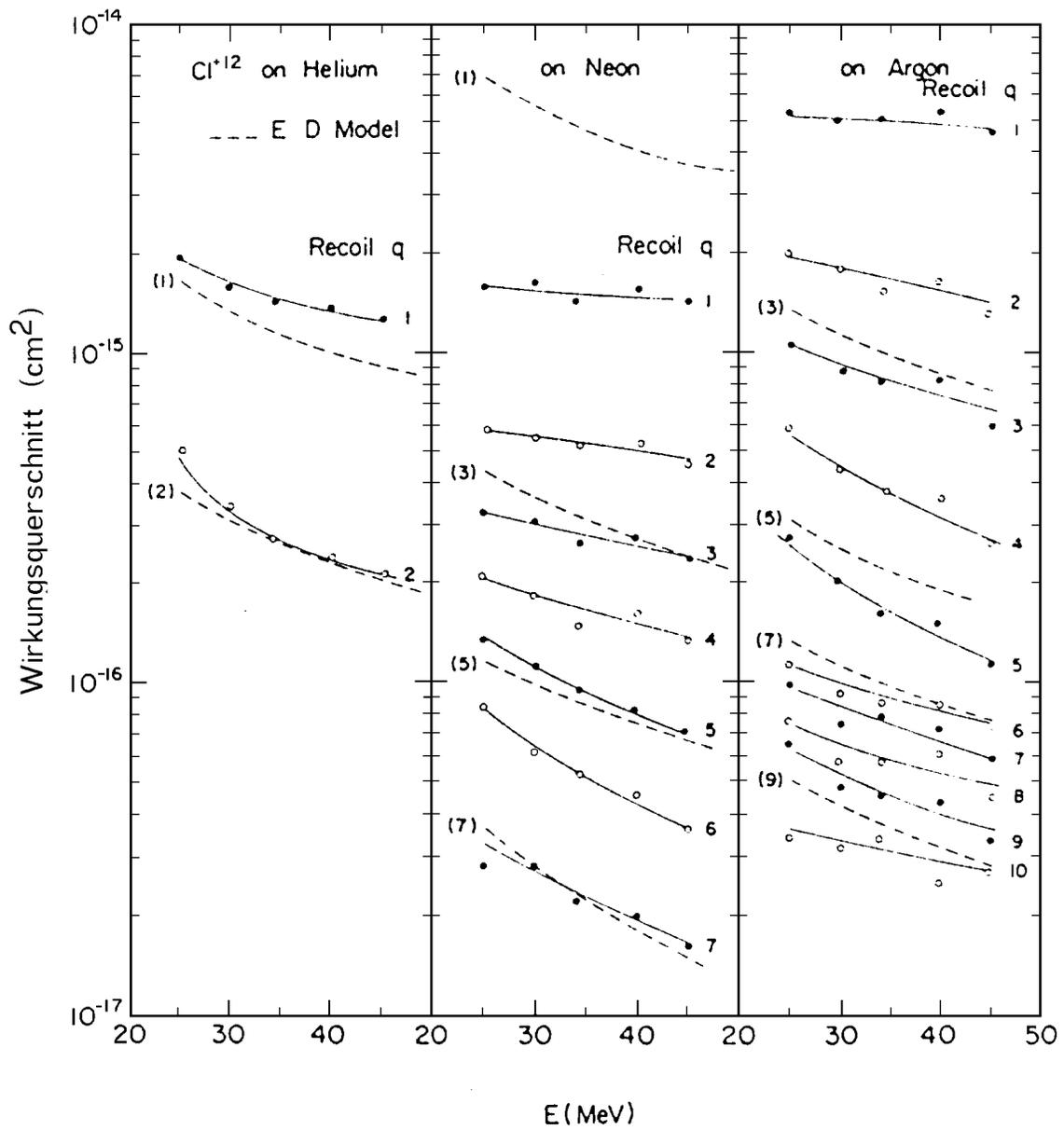


Abbildung 2.3: Wirkungsquerschnitte für die Ionisation von He, Ne und Ar in die verschiedenen Ladungszustände, durch Cl^{12+} Projektile in Abhängigkeit von deren kinetischer Energie. Die gestrichelten Linien sind Ergebnisse des 'Energy-Deposition'-Modells, die durchgezogenen Linien sind Hilfslinien (nach Cocke [28]).

stark von deren Ladungszustand ab. Mit einer Abschätzung nach der Formel von Bethe [31], skaliert der Wirkungsquerschnitt für q-fache Ionisation in etwa quadratisch mit der Projektilladung Z . Leider konnte dieses starke Einstellkriterium, durch die Möglichkeiten die an einem Tandembeschleuniger gegeben sind, in diesem Experiment nicht ausgenutzt werden. Daher wurde ein ^{32}S Strahl verwendet, der erfahrungsgemäß bei relativ hohem Ladungszustand mit sehr großen mittleren Strömen zuverlässig verfügbar ist.

Das in Kapitel 3 näher beschriebene Experiment wurde so aufgebaut, daß der Schwerionenstrahl, bevor er das spektroskopisch untersuchte Experimentiervolumen erreichte, sowohl ein Folienfenster als auch ca. 5cm Targetgas passieren mußte. Dabei wurden den Projektilen weitere Elektronen abgestreift und sie verloren bereits einen Teil ihrer kinetischen Energie. Am Ort der Messung besaßen sie dann noch eine mittlere Energie von etwa 30MeV sowie eine Ladungsverteilung um den Schwerpunkt $q=12^+$ [32][33]. Die Messungen der Ionisationsquerschnitte von Cocke [28] wurden mit $^{35}\text{Cl}^{12+}$ Projektilen durchgeführt, die sich damit in ihrer Wirkung nur unwesentlich von den ^{32}S Projektilen im hier beschriebenen Experiment unterscheiden. Daher konnten die Wirkungsquerschnitte aus Abbildung 2.3 zur Abschätzung von Ionendichten im Target direkt übernommen werden.

Aus Werten von $5 \cdot 10^{-15} \text{cm}^2$ bzw. $1.7 \cdot 10^{-15} \text{cm}^2$ für einfache bzw. zweifache Ionisation konnten Ionendichten von Ar^{1+} und Ar^{2+} zu $3 \cdot 10^{10}$ und $1.1 \cdot 10^{10} \text{cm}^{-3}$ und Strahlpuls berechnet werden. Hier wurde ein typischer Strahldurchmesser von 5mm, ein Strahlstrom von $4 \cdot 10^5$ Teilchen pro Puls und ein Argontargetdruck von 250 hPa verwendet. Mögliche Abbaumechanismen auf der 2ns Zeitskala, die der mittleren Pulsbreite des Ionenstrahles entspricht, wurden dabei vernachlässigt.

Das bedeutet bei einem Energieverlust des Strahles von etwa $14 \frac{\text{MeV}}{\text{cm}}$, der den gegebenen Randbedingungen entspricht, daß ca 1.2% der Strahlenergie zur Bildung der Ar^{2+} Ionen umgesetzt werden. Diesen Anteil möchte man mit möglichst hoher Effizienz, gezielt in Anregungsenergie, von einfach geladenen Argonionen umwandeln. Letztendlich soll der strahlende Zerfall dieser angeregten Niveaus beobachtet und möglicherweise in einem Laser genutzt werden.

2.3 Lichtausbeute am Detektorsystem

Die gesuchten Ladungstransferreaktionen sollen auf spektroskopischem Weg nachgewiesen werden. Da, bedingt durch den experimentellen Aufbau, keine ideale Sammeloptik ($[\frac{D}{f}]_{\text{Optik}} = [\frac{D}{f}]_{\text{Monochromator}}$) verwendet werden konnte, ist der spektroskopisch beobachtbare Raumwinkel $\Delta\Omega$ eng begrenzt. Daher ist es erforderlich, daß vom Target eine ausreichende Photonenstromdichte emittiert wird, um in endlicher Meßzeit sowohl eine möglichst gute Auflösung, als auch ein gutes Signal zu Rausch Verhältnis zu erhalten.

Die Zahl Z der pro Strahlpuls vom beobachteten Targetvolumen aus emittierten

Photonen genügt grundsätzlich der Abhängigkeit:

$$Z \sim \left[n_{Target} \cdot \sigma_{q+} \cdot \int_{Puls} j_{HI} dt \right] \cdot \Delta\Omega \cdot \epsilon \cdot \eta \quad (2.10)$$

Dabei bezeichnet η die Nachweiswahrscheinlichkeit der Photonen im Detektorsystem und ist eine Apparaturkonstante. Variiert werden kann dagegen der Term in der vorderen Klammer, der insgesamt die Dichte der produzierten Vorläuferionen für den Ladungstransfer beschreibt. Da die Schwerionenstromdichte j_{HI} durch den Beschleuniger vorgegeben ist, bleibt als wesentliches Einstellkriterium für Z der Wirkungsquerschnitt σ_{q+} für q -fache Ionisation. Aus Abbildung 2.3 erkennt man leicht, daß es empfehlenswert ist, sowohl einen möglichst niedrigen Ladungszustand für das Vorläuferion des Transfers, als auch ein Target mit möglichst hoher Ordnungszahl zu wählen. Beide Kriterien bewirken in σ_{q+} , also folglich auch in Z , eine Variation von jeweils einer Größenordnung. Ebenso sollte die Targetdichte n_{Target} im Experiment möglichst groß sein. Man muß allerdings beachten, daß diese Variable direkt auf das Verzweigungsverhältnis ϵ für Konkurrenzprozesse, in der in Abschnitt 2.5 beschriebenen Weise, zurückwirkt.

2.4 Auswahlkriterien für die Targetmischung

Da man schon bei der Planung eines Experimentes an eine Anwendung in der Laserphysik dachte, sollten angeregte Energieniveaus, die nicht über Grundzustandsübergänge zerfallen, bevölkert werden. Der Ladungstransfer mußte also in einen möglichst hochangeregten Zustand des Ions erfolgen. Anhand von Abbildung 2.2 läßt sich im Modell leicht einsehen, daß der Elektronendonator eine betragsmäßig sehr kleine Ionisierungsenergie haben sollte, um sein Elektron in die höheren Niveaus des Akzeptorions transferieren zu können. Das gilt besonders, wenn man zusätzlich noch einen niedrigen Ladungszustand der Vorläuferionen nutzen möchte.

Gesucht wurde also nach einer Targetmischung, in der alle in diesem Kapitel angesprochenen Kriterien berücksichtigt und optimiert sind. Diese hatte damit das im folgenden schematisch zusammengefaßte Anforderungsprofil zu erfüllen.

Donatoratome:	Akzeptorionen:
niedrige Ionisierungsenergie	Ladungszustand $q=2+$
in der Gasphase verfügbar	hohe Ordnungszahl
gegenseitig chemisch inert	
Für resonanten Ladungstransfer geeignete Energieniveaus E_{A0} und J_B	

Man findet die Alkalimetalle als ideale Elektronendonatoren, und speziell das Cäsium zeigt sich gut an das gegebene Anforderungsprofil angepaßt. Cäsium ist von den stabilen Elementen das mit der niedrigsten Ionisierungsenergie von -3.89eV . Das ist zwar gleichbedeutend mit einer Photoabsorptionskante bei 318nm , was beachtet werden mußte, aber sich glücklicherweise nicht störend auswirkte, da alle im beschriebenen Experiment betrachteten Emissionen langwelliger waren.

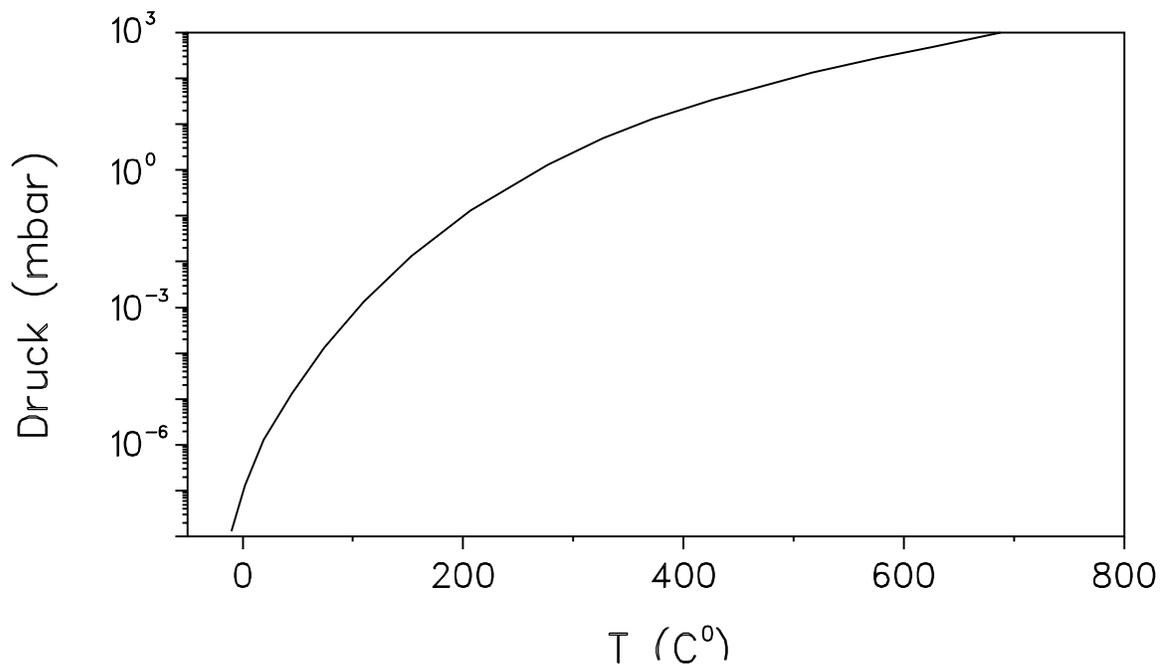


Abbildung 2.4: Dampfdruckkurve von Cäsium (Nach Daten aus [34])

Außerdem ist Cäsium nach Quecksilber das Metall mit dem höchsten Dampf-

druck. Aus seiner Dampfdruckkurve (Abbildung: 2.4) ist ersichtlich, daß bereits Temperaturen von 200°C ausreichende Dampfdichten von $1.6 * 10^{15} \frac{1}{\text{cm}^3}$ erzeugen. Ausreichend heißt hier, daß der Ladungstransfer den nach den in Abschnitt 2.5 angesprochenen Kriterien dominanten Prozeß im Target darstellt. Mit einer Erhöhung der Temperatur auf 500°C wird bereits ein großer dynamischer Bereich bis etwa $10^{18} \frac{1}{\text{cm}^3}$, wie er für solche Mischungsexperimente üblicherweise verwendet wird, erschlossen.

Im Kapitel 2.1 wurde gezeigt, daß das durch Transfer bevölkerte Energieniveau im wesentlichen durch die Ionisierungsenergie des Donors und den Ladungszustand seines Partnerions festgelegt wird. Setzt man den Zahlenwert für Cäsium in Gleichung 2.7 ein, so erhält man für die gesuchten Energieniveaus E_{A0} Werte von:

- 3.89eV für einfach geladene Ionen,
- 4.91eV für zweifach geladene Ionen und
- 5.64eV für dreifach geladene Ionen

als Stoßpartner.

Die Suche nach einem geeigneten ionischen Stoßpartner wird durch die chemischen Eigenschaften des Alkalimetalles stark eingeschränkt. Nur die Edelgase und einige Metalle sind bei den gewünschten Temperaturen chemisch inert gegen Cäsium. Es zeigt sich, daß unter den Edelgasen das zweifach geladene Argon der ideale Akzeptor für das Valenzelektron des Cäsiums zu sein scheint. Einfach geladene Argonionen besitzen im 100meV Bereich um -4.85eV mehrere 4d und 5s Niveaus, die durch den Übergang eines Elektrons vom Cäsium auf das zweifach geladene Vorläuferion nach unserem Modell besetzt werden können. Da die Energie des Ausgangsniveaus E_{A0} im Argonion und die Ionisierungsenergie J_B des Cäsiums somit den Anforderungen des Coulombmodells genügen, ist das Hauptkriterium, um einen selektiven Ladungstransfer beobachten zu können, erfüllt.

Die somit ausgewählten Stoßpartner für dieses erste Modellexperiment zum Ladungstransfer sind Ar^{2+} Ionen und Cäsium Atome. Argon hat eine ausreichend hohe Massenzahl, so daß der Wirkungsquerschnitt für zweifache Ionisation hohe Iondichten im Target liefert. Die Energie des Ausgangsniveaus E_{A0} und die Ionisierungsenergie J_B sind für gegenseitigen Ladungstransfer geeignet. Von den, durch Stöße mit Cäsium bevölkerten 4d und 5s Niveaus des ArII sind Grundzustandsübergänge verboten. Wie bereits erwähnt, hat Cäsium zwar seine Photoabsorptionskante, aufgrund seiner niedrigen Ionisierungsenergie bei 318nm, was aber kein Problem darstellt, da alle Übergänge des ArII , die von den 4d und 5s Niveaus ausgehen, bei größeren Wellenlängen beobachtet werden.

2.5 Die Kinetik des Ladungstransfers unter dem Einfluß möglicher Konkurrenzprozesse

2.5.1 Kinetik des Ladungstransfers unter idealen Bedingungen

Der in dieser Arbeit betrachtete Ladungstransfer wird durch den thermischen Stoß zwischen einem zweifach geladenen Argonion und einem neutralen Cäsiumatom induziert. Diese Stöße erfolgen statistisch nach der kinetischen Gastheorie. Anschau-

lich heißt das, daß die Teilchen nach der Anregung durch den Schwerionenstrahl wie im Modell der Brownschen Molekularbewegung mit einer mittleren thermischen Geschwindigkeit durch das Experimentiervolumen vagabundieren. Dabei treffen sie statistisch auch auf Cäsiumatome und es kann zu der prognostizierten Ladungstransferreaktion kommen. Dadurch werden nach und nach die Ar^{2+} Ionen, die durch einen Schwerionenpuls in sehr kurzer Zeit (quasi im Zeitnullpunkt) erzeugt wurden, abgebaut. Der ganze Prozeß muß also der Differentialgleichung:

$$\frac{d[Ar^{2+}]}{dt} = -k_{tr}[Ar^{2+}][Cs] \quad (2.11)$$

genügen, wobei $\frac{d[Ar^{2+}]}{dt}$ die Rate der Ladungstransferreaktionen darstellt. k_{tr} bezeichnet die Ratenkonstante des Prozesses. Die Dichten der jeweiligen Stoßpartner sind in eckigen Klammern angegeben. Löst man diese Gleichung, so erhält man als Ladungstransferrate:

$$\frac{d[Ar^{2+}]}{dt} = -k_{tr}[Cs][Ar^{2+}]_0 \cdot \exp(-(k_{tr}[Cs]t)) \quad (2.12)$$

$[Ar^{2+}]_0$ ist hier die Zahl der bei einem Strahlpuls pro Volumeneinheit, praktisch im Zeitnullpunkt, erzeugten zweifach geladenen Argonionen.

2.5.2 Einfluß möglicher Konkurrenzprozesse

Der betrachtete Ladungstransfer soll durch einen Zweiteilchenstoß induziert werden. Nun werden in einem schwerionenstrahlangeregten Gasgemisch nicht nur der gewünschte Effekt, sondern auch einige 'Konkurrenzprozesse' ablaufen, die verstanden werden müssen. Als 'Konkurrenzprozesse' sollen im folgenden alle Vorgänge im Target bezeichnet werden, über die Teile der erzeugten Ar^{2+} Ionen abgebaut werden können, ohne am Ladungstransfer teilgenommen zu haben. Die drei stärksten Abbaumechanismen für zweifach geladene Argonionen in einem dichten Argontarget sind relativ gut bekannt.

2.5.2.1 Die Molekülbildung

Die Bildung zweifach geladener Molekülonen ist, bei den hier betrachteten 'kalten' und 'dichten' Targets, der stärkste unter den Konkurrenzprozessen zum Ladungstransfer. Molekülbildung ist aufgrund der Energie- und Impulsbilanz ein Dreiteilchenprozeß. Sie läuft nach der Reaktionsgleichung:



ab. Der dritte Stoßpartner ist nur zum Ausgleich der Energie- und Impulsbilanzen erforderlich. Das aber bedeutet, daß die Molekülbildung stark mit dem Druck zunimmt. Für den Fall eines reinen Argontargets ist diese Situation beispielsweise von W.Krötz [35][36] näher untersucht worden. Die Molekülbildung gehorcht der Differentialgleichung:

$$\frac{d[Ar^{2+}]}{dt} = -k_{ex}[Ar^{2+}][Ar]^2 \quad (2.14)$$

Dafür wird die Ratenkonstante k_{ex} mit $1.3 \cdot 10^{-30} \frac{cm^6}{s}$ (bei Zimmertemperatur) angegeben [35]. Da die Targetdichte, die im vorgestellten Experiment möglichst hoch gewählt werden soll, um eine möglichst hohe Dichte der Ar^{2+} Ionen bei jedem Strahlpuls zu erzeugen, in die Abbaurate der Ar^{2+} quadratisch eingeht, gilt es schon vorab hier ein Optimum abzuschätzen. Ein Vergleich mit einer erwarteten Ratenkonstante von $10^{-9} \frac{cm^3}{s}$ der Ladungstransferreaktion mit der für die Bildung der Molekülonen ergibt eine obere Grenze für den Targetdruck bzw. eine untere für das Mischungsverhältnis von Donator und Akzeptor im Target. Nimmt man beispielsweise $10^{16} \frac{1}{cm^3}$ als Mindestteilchendichte für die Elektronendonatoren ($\simeq 0.6$ hPa), so werden bei einer Targetdichte von $7 \cdot 10^{18} \frac{1}{cm^3}$ ($\simeq 250$ hPa) nur noch ca. 30% der zweifach geladenen Ionen durch Transfer zerfallen. Die Zeitstruktur beobachtbarer Prozesse würde also im wesentlichen durch die Excimerbildung geprägt. Diese Tatsache war auch in den, im Rahmen dieser Arbeit aufgenommenen Zeitspektren beobachtbar.

2.5.2.2 Ladungstransfer zwischen Argonionen und Argonatomen

Eine weitere, für zweifach geladene Argonionen mögliche Reaktion ist zu dem gesuchten Ladungstransfer vom Cäsium sehr verwandt. Es kommt im Target nämlich auch zu einem Ladungsaustausch



zwischen ungeladenen und geladenen Argonspezies im Grundzustand. Diese Phänomene wurde bereits bei thermischen Energien genauer untersucht. Dabei wird eine Ratenkonstante von $k_{Ar} = (3.7 \pm 0.4) \cdot 10^{-13} \frac{cm^3}{s}$ für diesen Konkurrenzprozeß angegeben [37][38]. Bedenkt man, daß die Argondichten (maximal 250 hPa) um maximal drei Größenordnungen höher als die Cäsiumdichten (mindestens 0.5 hPa) in den Targets gewählt wurden, so dürfte auch dieser Konkurrenzprozeß nur am Rande interessieren.

2.5.2.3 Die freie Rekombination

Sie wird durch die Gleichung:



beschrieben. Die freie Rekombination ist ein sehr langsamer Prozeß auf der μs Zeitskala.

Zum einen wird die Reaktion sehr durch den Betrag ΔE gehemmt. Dieser macht nämlich aufgrund von Energie- und Impulserhaltung entweder einen dritten Stoßpartner 'X' erforderlich, oder aber es muß der sehr kleine Wirkungsquerschnitt für die strahlende Rekombination in Kauf genommen werden.

Zum anderen ist die geringe Dichte der freien Ladungsträger, die je nach Targetdichte in der Größenordnung zwischen $10^{11} \frac{1}{cm^3}$ und $10^{12} \frac{1}{cm^3}$ nach dem Anregungspuls [39] liegt, Ursprung der langen Zeitkonstanten dieser Reaktion. Typische Ratenkonstanten für die freie Rekombination zweifach geladener Argonionen liegen

für die im vorliegenden Experiment gewählten Targetparameter, in der Größenordnung von $10^{-8} \frac{cm^3}{s}$ [40]. Diese erscheinen zunächst sehr groß, ergeben aber im Produkt mit den Dichten der freien Elektronen nur noch einen vernachlässigbar kleinen Beitrag zum Abbau der Ar^{2+} Grundzustandsionen.

2.5.3 Zeitverhalten der Linienemission unter realen Bedingungen

Nun kann der Ladungstransfer in diesem Experiment nur indirekt, mit spektroskopischen Mitteln über den Zerfall seiner Reaktionsprodukte nachgewiesen werden. Beim Ar^{2+} -Cäsium-Transfer entstehen hochangeregte, einfach geladene Argonionen $[Ar^{+*}]$. Diese zerfallen mit ihren natürlichen Lebensdauern in einem bestimmten Verzweigungsverhältnis, das in dem Parameter γ berücksichtigt wird, sowohl strahlend als auch nichtstrahlend. Die Einsteinkoeffizienten für die strahlenden Zerfälle sind im Fall von Argon gut bekannt [41]. Beobachtet man nun das Zeitverhalten des oberen Niveaus einer vom Ladungstransfer bevölkerten Linie, so verhält sich dieses gemäß der Ratengleichung:

$$\frac{d[Ar^{+*}]}{dt} = -A_{ik} \cdot \frac{1}{\gamma} \cdot [Ar^{+*}] + k_{tr}[Ar^{2+}][Cs] \quad (2.17)$$

$A_{ik} \cdot [Ar^{+*}]$ bezeichnet dabei die meßbare Linienintensität auf dem vom Ladungstransfer bevölkerten Übergang. Berücksichtigt man zusätzlich noch die Excimerbildung als wesentlichsten Konkurrenzprozeß, so folgt die Dichte der Ar^{2+} Ionen im Target der Differentialgleichung:

$$\frac{d[Ar^{2+}]}{dt} = -k_{tr}[Ar^{2+}][Cs] - k_{ex}[Ar^{2+}][Ar]^2 \quad (2.18)$$

Die Lösung dieses Differentialgleichungssystems hat die Form:

$$[Ar^{+*}] = [Ar^{2+}]_0 \frac{k_{tr}[Cs]}{\frac{A_{ik}}{\gamma} - (k_{tr}[Cs] + k_{ex}[Ar]^2)} \cdot \left[\exp - [(k_{tr}[Cs] + k_{ex}[Ar]^2) \cdot t] \right] \quad (2.19)$$

$$+ Konst. \cdot \exp - \left(\frac{A_{ik}}{\gamma} \cdot t \right) \quad (2.20)$$

Aus den Randbedingungen, $[Ar^{+*}] = 0$ für $t=0$ und $[Ar^{+*}] = 0$ für $t=\infty$ berechnet sich die Integrationskonstante Konst. zu

$$Konst. = -[Ar^{2+}]_0 \frac{k_{tr}[Cs]}{\frac{A_{ik}}{\gamma} - (k_{tr}[Cs] + k_{ex}[Ar]^2)}, \quad (2.21)$$

so daß das Randwertproblem die allgemeine Lösung:

$$[Ar^{+*}] = [Ar^{2+}]_0 \frac{k_{tr}[Cs]}{\frac{A_{ik}}{\gamma} - (k_{tr}[Cs] + k_{ex}[Ar]^2)} \cdot \left[\exp - [(k_{tr}[Cs] + k_{ex}[Ar]^2) \cdot t] - \exp - \left(\frac{A_{ik}}{\gamma} \cdot t \right) \right] \quad (2.22)$$

hat. Mit der Näherung $A_{ik} \gg k_{tr}[Cs] + k_{ex}[Ar]^2$, die bei fast allen starken Ionenlinien erfüllt ist, gilt dann für die beobachtbaren Intensitäten schon ab Zeiten in der Größenordnung von $4 \cdot A_{ik}^{-1}$ nach dem Schwerionenanregungspuls:

$$A_{ik} \cdot [Ar^{+*}] = \gamma k_{tr}[Cs][Ar^{2+}]_0 \cdot \exp[-(k_{tr}[Cs] + k_{ex}[Ar]^2) \cdot t] \quad (2.23)$$

Auf diesem Wege kann dann die Ratenkonstante des Ladungstransfers relativ einfach aus der Zeitstruktur der beobachteten Linienemission bestimmt werden, indem man die Zeitkonstante $(k_{tr}[Cs] + k_{ex}[Ar]^2)$ für verschiedene Cäsiumkonzentrationen bei konstanter Argonkonzentration bestimmt.

Kapitel 3

Aufbau der 'ArCHe' – Argon Cäsium Hochtemperaturexperiment

Die 'ArCHe' ist eine neu konzipierte Apparatur, die speziell für den experimentellen Nachweis von Ladungstransferreaktionen zwischen Argon und Cäsium bei Schwerionenstrahlanregung gebaut wurde. Man kann in ihr Metaldampf-Gas-Gemische erzeugen und diese durch ein Folienfenster mit einem Schwerionenstrahl beschießen. Die erzeugten Anregungen können im Glasteil des Aufbaus beobachtet werden.

Gerade die besonderen physikalischen und chemischen Eigenschaften des Alkalimetalles stellten besondere Ansprüche an die Konstruktion. Zum einen sollte ein Temperaturbereich von 100°C bis 500°C zugänglich sein, um ausreichende Cäsiumdampfdrücke erzeugen zu können, zum anderen durften wegen der hohen Reaktivität von Cäsium, die ja gerade in dem erwünschten Effekt einer niedrigen Bindungsenergie des Valenzelektrons begründet ist, nur chemisch inerte Materialien verwendet werden. Abbildung 3.1 zeigt einen Überblick über den gesamten Experimentieraufbau. Das Herzstück der Apparatur - die ArCHe - steht auf einem höhenverstellbaren Grundgestell, in das die Versorgungseinheiten des Gas- bzw. Vakuumsystemes integriert wurden. Für die Gasversorgung wurde dabei Argon der Qualität 6.0 verwendet. Um eine ausreichende Reinheit der Apparatur zu gewährleisten, konnte diese zuvor mittels einer Turbomolekularpumpe und einer Drehschiebervorpumpe auf 10^{-5} hPa evakuiert werden. Auf der linken Seite erkennt man den Anschluß an das Strahlrohrsystem des Münchner Tandem-van-de-Graaff Beschleunigers. Dem Experiment sind zwei Einheiten der Strahldiagnostik vorgeschaltet, eine kapazitive Sonde mit deren Hilfe man sowohl den Zeitpunkt als auch die Intensität der ankommenden Strahlpulse detektieren kann, sowie ein Faraday-Cup mit dem der mittlere Strahlstrom gemessen werden kann. Danach trifft der Schwerionenstrahl in die ArCHe. Diese besteht im wesentlichen aus den vier Komponenten, die im folgenden näher beschrieben werden.

3.1 Der Ofen

Die eigentliche Experimentierapparatur befindet sich in einem homogen beheizbaren Volumen - einem Ofen. Eine gut definierte, homogene Temperaturverteilung innerhalb des Experimentiervolumens ist von außerordentlicher Bedeutung für die Bestimmung der Cäsiumdichten während des Experimentes. Der Cäsiumdampfdruck wird immer durch die kälteste Stelle im gesamten Volumen bestimmt und hängt in etwa exponentiell von der Temperatur ab. Als minimale Anforderung wurde daher ein maximaler Temperaturunterschied von 10°C innerhalb des Ofens festgelegt. Außerdem soll der Ofen zum einen ein ausreichend schnelles Erwärmen

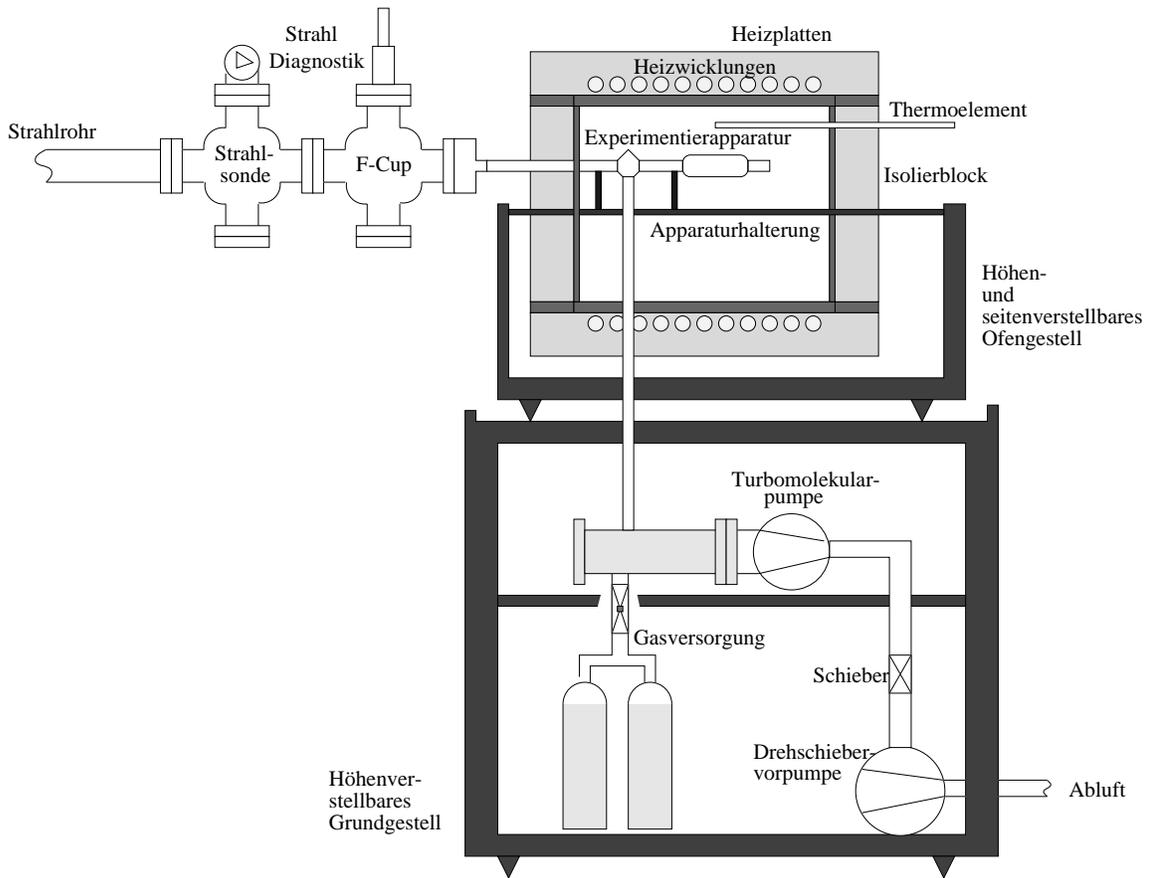


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Experimentieraufbaus.

der Apparatur ermöglichen, andererseits aber selbst so wenig Wärmekapazität wie möglich besitzen, um einen Eingriff in das Ofeninnere schon nach kurzer Abkühl-dauer während des Experimentes zu erlauben. Schließlich müssen Temperaturen von 500°C problemlos erreichbar sein.

Um all diesen Anforderungen zu genügen wurde der Ofen in einer Art Baukastensystem zusammengesetzt. Der Aufbau besteht dabei aus Heizplatten und Isolierblöcken (Firma Intertherm aus München) verschiedener Größen, welche in einer eigens konstruierten Halterung je nach Bedarf zu verschiedenen großen Quadern zusammengestellt werden können. Es wurden dabei als Grund- und Deckenheizung zwei Heizplatten der Größe $700 \times 600\text{mm}^2$ mit einer maximalen Gesamtleistung von 8400 W bei 220 V gewählt. Für die Seitenwände wurden 125 mm starke und 400 mm hohe Isolierblöcke in der aus den Abbildungen 3.1 und 3.2 ersichtlichen Weise verwendet. Besondere Vorteile sind hierbei, daß die Heizwicklungen bereits in die nötigen Isolierelemente integriert sind und die Isolierung aus einem hochtemperaturfesten Fasermaterial besteht, das einerseits sehr leicht und handlich, andererseits aber auch sehr gut zu bearbeiten ist. Dies machte den Aufbau sowie den Einbau von Durchführungen und optischen Fenstern einfach. Das Heizungssystem wird durch

einen PID (Proportional - Integral - Differential) - Regler (Firma Eurotherm Typ 815S), dessen Eingang mit einem NiCr - Ni Thermoelement im Ofeninneren verbunden ist, gesteuert. Der Regelmechanismus funktioniert dabei so, daß der PID - Regler einen Thyristor ansteuert, der nach Bedarf die 220 V Netzspannung schaltet. Durch die Wahl geeigneter PID Parameter kann dabei die Temperatur am Ort des Thermoelementes auf $\pm 1^\circ\text{C}$ genau eingestellt werden. Die gesamte Spannungsversorgung und Regelung ist in einen 19-Zoll-Einschub integriert.

3.2 Das Experimentiervolumen

Das Herzstück der ArCHE ist eine Edelstahlapparatur mit angeschmolzenem Glasrohr, welche in Abbildung 3.2 detailliert dargestellt ist. Da man den Ladungstransfer auf spektroskopischem Weg nachweisen will, muß man das im Experimentiervolumen emittierte Licht auf definierte Art zum Monochromator leiten. Der Einbau von hochvakuumdichten Fenstern ist aber in einem Cäsium-Hochtemperaturexperiment sehr schwierig. Erstens soll das Glas gegen den Metaldampf chemisch inert sein, zweitens sollte es gut transparent in einem Bereich ab 320nm sein und außerdem soll es möglich sein, die Apparatur in kurzen Zeitintervallen aufzuwärmen bzw. abzukühlen. Die Verwendung von Quarzglas ist aufgrund der erforderlichen Vielzahl von Übergangsgläsern beim Anschmelzen an Edelstahl nicht ratsam. Daher entschloß man sich dazu, direkte Metall - Glas Übergänge zu wählen. Zwei Möglichkeiten wurden dabei getestet. Es gibt käufliche Edelstahlrohr-Pyrex7740 Anschmelzungen (Firma Cajon). Pyrex Glas hat eine sehr gute Transmission von über 90% pro mm in einem Wellenlängenbereich ab 300nm. Leider erwies sich das Glas entgegen der Arbeit von Frank Siegling [42] als nicht besonders stabil gegenüber Cäsium. Wie in Abbildung 3.3 gezeigt, kam es nach mehreren Tagen in Cäsiumatmosphäre zu ganz erheblichen Verfärbungen der Glasinnenflächen, wodurch keine definierte Transmission mehr gewährleistet war. Es kann allerdings nicht ausgeschlossen werden, daß dieses Verhalten des Duranglases durch die, in solchen Experimenten unvermeidlichen Strahlenschäden induziert wurde und folglich bei anderen Fällen nicht aufgetreten ist.

Als bessere Lösung für dieses Problem erwiesen sich direkte Rohrübergänge von dem Edelstahl Vacon 70 auf das Schottglas 2860, das sich durch besondere Beständigkeit gegen Alkalimetalle auszeichnet. Auch dieser Übergang ist aufgrund der angepaßten Ausdehnungskoeffizienten ohne Glaslote möglich und stellt also weder thermisch noch chemisch ein Problem dar. Transmissionsmessungen ergaben eine ausreichende Durchlässigkeit in einem Bereich ab ca. 320nm. Nachteil dieser Lösung ist, daß das Schottglas 2860 sehr spröde ist und damit nicht nur in der Verarbeitung sondern auch während des Experimentes Probleme bereitet. So sind zwei dieser Rohre aufgrund leichter Vibrationen, die durch die Gasversorgung in die Apparatur eingekoppelt wurden, während des Experiments gebrochen. Daher wurden letztendlich alle Messungen mit den Pyrex7740 kolben gemacht, wobei geringfügige Änderungen der Transmission während einer Meßreihe in Kauf genommen werden mußten.

Die Metall-Glas Übergangsröhre wurden mittels edelstahlgedichteter Verschrau-

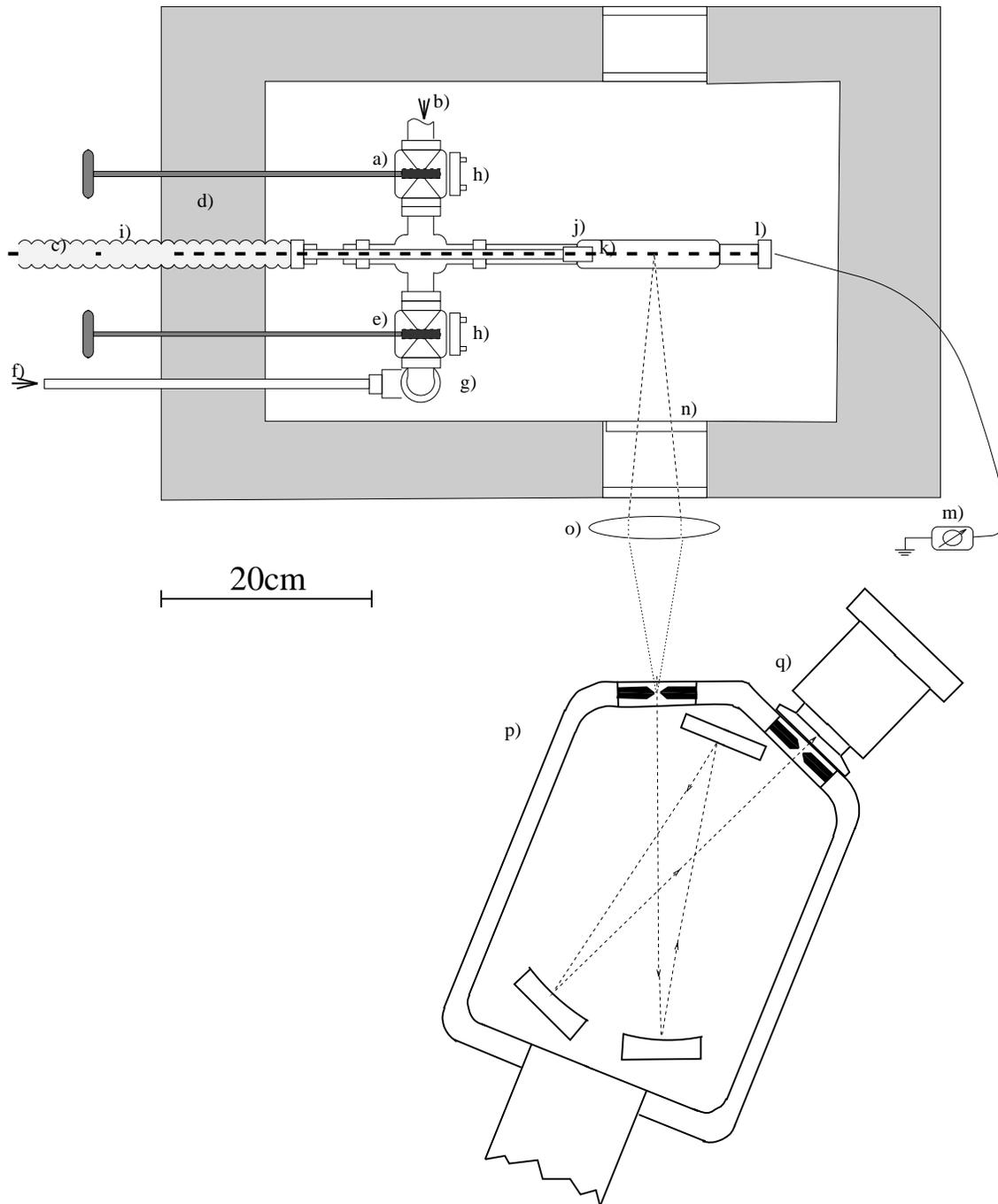


Abbildung 3.2: Aufbau der Hochtemperaturapparatur. Die Details: a) Absperrventil zum Gassystem, b) Gaszufuhr, c) Schwerionenstrahl, d) Isolierblock, e) Absperrventil zum Cäsiumreservoir, f) Preßluftanschlüsse des Wärmetauschers, g) Cäsiumreservoir, h) Halterung, i) Wellenschlauch Strahlrohr, j) Metall-Glas Anschmelzung, k) Folienhalter, l) Faraday-Cup, m) Nanoamperemeter zur Messung des Strahlstromes n) Quarzfenster, o) Quarzsammellinse, p) Gittermonochromator, q) Photomultiplier

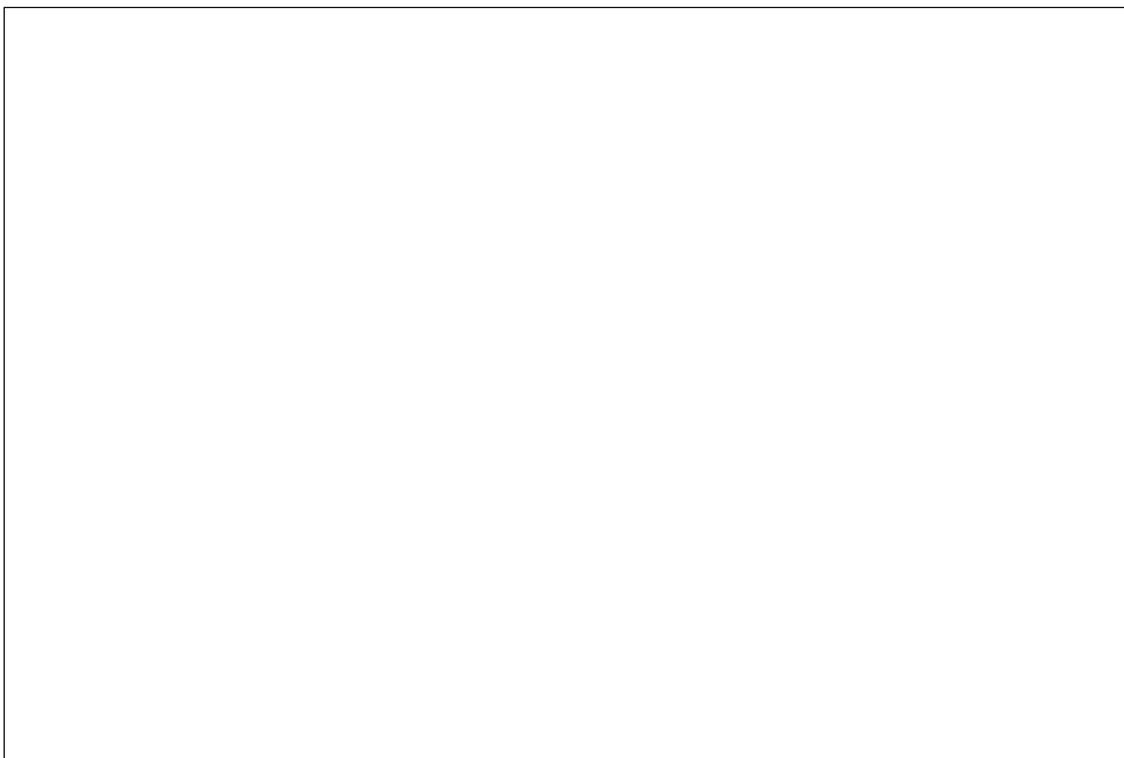


Abbildung 3.3: *Oben : Rohrübergang Vacon 70 nach Schottglas 2860 vor und nach Kontakt mit der Cäsiumatmosphäre unverändert.*

Mitte : Edelstahlrohr-Pyrex7740 Anschmelzungen (Firma Cajon) vor dem Gebrauch. Rechts erkennt man den eingeschmolzenen Faraday-Cup, links die edelstahlgedichtete Verschraubung.

Unten : Ein identisches Reaktionsgefäß nach zwei Tagen Experimentierbetrieb mit Schwerionenstrahl und Cäsiumdampffüllung.

bungen mit dem Versorgungsteil der Apparatur hochvakuumdicht verbunden. Auch dieses Versorgungsteil wurde im Baukastensystem aus Edelstahlfittings (Firmengruppe Swagelock) zusammengestellt. Dieses System, das z.B. auch in der Raketentechnik Verwendung findet, hat den großen Vorteil, daß alle Bauteile durch Edelstahlverschraubungen ohne andere Materialien gedichtet werden. In Abbildung 3.2 sind deutlich die beiden Faltenbalgventile (Firma Nupro) erkennbar, die ein Abtrennen des Experimentiervolumens von der Gaszufuhr – nach oben – und dem Cäsium Reservoir – nach unten – ermöglichen. Das Kreuzstück in der Mitte wird von links nach rechts vom Strahlrohr durchquert, das in einem Folienfenster im gläsernen Experimentierrohr endet, so daß die Wechselwirkung der Schwerionen mit den Targetatomen direkt nach dem Eintritt des Strahles in das Gasvolumen beobachtet werden kann.

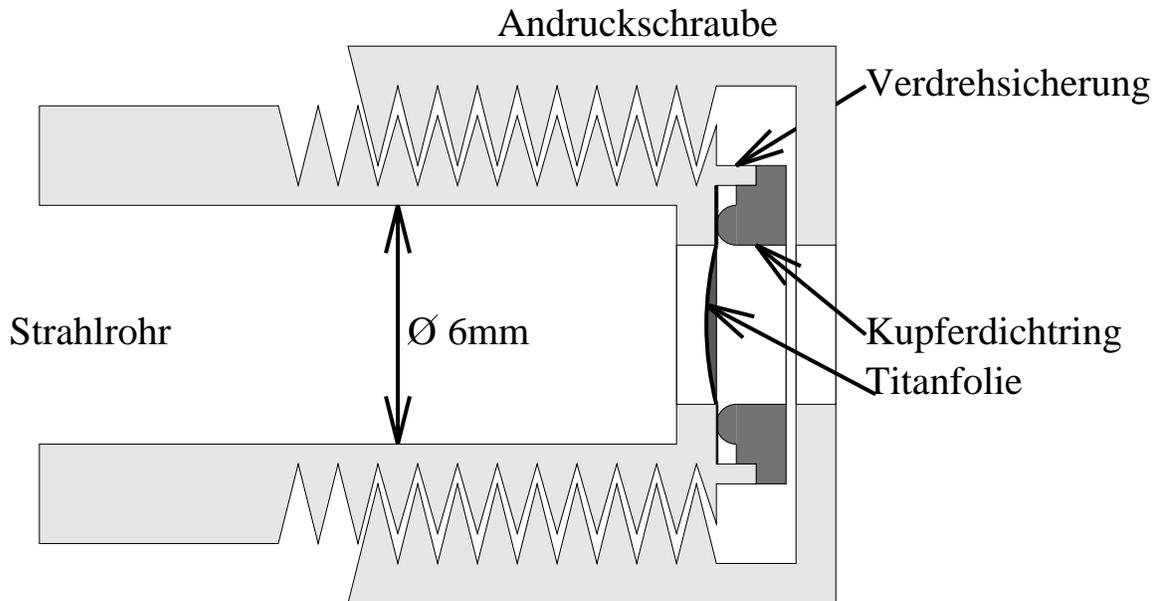


Abbildung 3.4: Aufbau des Folienhalters im Querschnitt

3.3 Das Folienfenster

Das Strahlrohr, in dem UHV-Bedingungen herrschen, und das gasgefüllte Experimentiervolumen müssen physisch voneinander getrennt sein. Dazu kann man beispielsweise den Übergangsbereich differentiell pumpen [43], wie es in ähnlichen Experimenten zur Untersuchung von Edelgas-Alkali Molekülemissionen getan wurde [44][45]. Eine wesentlich einfachere Methode besteht darin, wie im vorliegenden Experiment das Strahlrohr in einem dünnen Folienfenster enden zu lassen, in dem die Strahlteilchen nur einen geringen Teil ihrer kinetischen Energie verlieren. Frühere Experimente haben gezeigt [46], daß etwa $1 \frac{\text{mg}}{\text{cm}^2}$ dicke Titanfolien eine ausreichende Stabilität garantieren und beispielsweise einen $100\text{MeV } ^{32}\text{S}^{8+}$ nur um ca. 10% seiner Energie schwächen [47]. Erste Vorexperimente haben aber gezeigt, daß Titanfolien in einer Cäsiumatmosphäre ihre Stabilität verlieren. Außerdem kann die Folie aus Gründen der thermischen Belastbarkeit nicht wie üblich mit Epoxidharzkleber (UHU-Endfest 300) gedichtet werden. Drei wesentliche Überlegungen haben zu der in Abbildung 3.4 gezeigten, neuen Form des Folienfensters geführt.

1. Die Titanfolie kann durch eine $200 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2}$ dicke Silberbedampfung gegen Cäsium passiviert werden. (Zusätzlicher Energieverlust in der Folie etwa 2MeV bei $90\text{MeV } ^{32}\text{S}^{8+}$ Teilchen).
2. Titan ist sehr hart und kann so auch mit Kupferingen gedichtet werden, sofern die Oberflächenrauigkeit des Auflagers kleiner als die Dicke der Folie ist.
3. Titanfenster und Halterung müssen einen Durchmesser von weniger als 10mm haben, da dies dem maximal möglichen Durchmesser von thermisch belastba-

ren Metall-Glasrohr-Verbindungen darstellt.

Die neue Konstruktion hat sich in der drei Tage dauernden Meßzeit gut bewährt, ohne daß irgendwelche Mängel auftraten.

3.4 Das Cäsiumreservoir

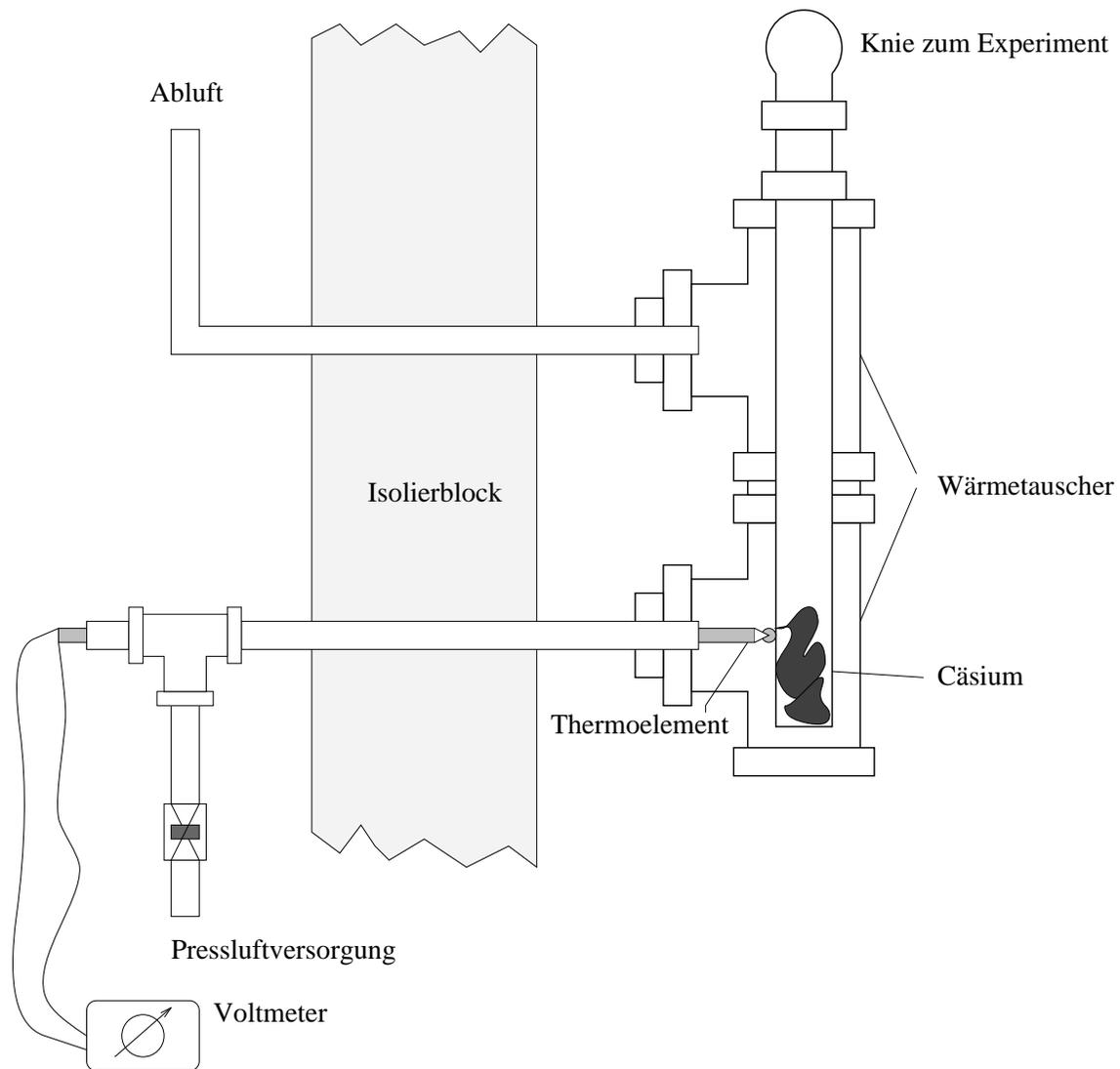


Abbildung 3.5: Querschnitt durch das Cäsiumreservoir

Der Cäsiumdampf für das Experiment wurde aus einem gesonderten Volumen, dem Reservoir, über eines der beschriebenen Ventile in das Experimentivolumen geleitet. Vor Beginn des Experimentes wurde das Reservoir in einem Handschuhkasten unter Stickstoffatmosphäre mit flüssigem Cäsium der Reinheit 99.9% befüllt, an das Absperrventil angeflanscht, dann erst ins Experiment eingebaut und bepumpt.

Das Cäsium wurde anschließend noch durch einige Aufheiz-, Abkühl- und Pumpzyklen von eventuell gelösten, flüchtigen Verschmutzungen gereinigt. Die Temperatur des Reservoirs wurde während der Experimente immer um ca. 5°C niedriger gehalten als die der übrigen Apparatur, um unerwünschte Kondensation von Cäsium an den optischen Fenstern zu vermeiden. Überwacht wurde dies mit einem weiteren NiCr - Ni Thermoelement. Abbildung 3.5 zeigt, wie das Reservoir selbst in einem Wärmetauscher integriert wurde, der zwei wesentliche Vorteile bot. Erstens konnte durch Regelung des Luftstromes im Wärmetauscher eine Überhöhung der Reservoirtemperatur vermieden werden. Zweitens konnte das Cäsium wie mit einer Kühlfalle aus dem Experiment gepumpt und damit ein Gasaustausch oder ein verschmutzungsfreier Umbau der Apparatur durchgeführt werden. Beim Experiment zeigte sich allerdings, daß dies nur in einem sehr begrenzten Rahmen funktioniert. Cäsium besitzt relativ starke Adhäsionskräfte und setzte sich so in allen Ritzen und Ecken der Apparatur fest. Es zeigte sich, daß dieses Alkalimetall selbst bei sehr hohen Temperaturen von über 400°C über einige Stunden aus dem Experimentiervolumen ausgeheizt werden muß, um Konzentrationen unterhalb der Meßgrenze von etwa $10^{12} \frac{1}{\text{cm}^3}$ zu erreichen. Das legt den Verdacht nahe, daß Cäsium sich außerdem sehr gut an die Oberflächen der Experimentierkammer anlagert und von dort über lange Zeit in das Experimentiervolumen ausgast.

Abschließend sei noch angemerkt, wie einfach eine Reinigung aller Edelstahlteile von Cäsiumrückständen ist. Sowohl Cäsium als auch Cäsiumoxid sind sehr gut wasserlöslich. Einfaches Ausspülen der Apparatur erzeugt bereits rückstandsfreie Oberflächen. Man muß anschließend allerdings dafür sorgen, daß vor dem Einfüllen von neuem Cäsium die Wasserrückstände vollständig ausgeheizt werden.

3.5 Strahlparameter im Experiment

In diesem Experiment wurde ein gepulster 100MeV $^{32}\text{S}^{8+}$ vom Münchner Tandem Van-de-Graaff Beschleuniger verwendet. Dabei war eine Pulsbreite von 2ns und eine Repetitionsrate von 39kHz gewählt worden. Bei dieser Einstellung erreichte man eine Strahlintensität von etwa $4 \cdot 10^5$ Teilchen pro Puls. Alle Strahlparameter sind in der folgenden Tabelle nochmals übersichtlich aufgeführt.

Terminalspannung : 11.1 MV

Ionensorte : $^{32}\text{S}^{8+}$

Teilchenenergie : 100 MeV

Energie am Experimentort : 30MeV

Pulsrate : 39 kHz

Pulsbreite : 2 ns

Teilchen pro Puls : 4×10^5

Energie eines Pulses : $64 \mu\text{J}$

Strahldurchmesser : ca. 5mm

Mittlerer Strahlstrom : 25 nA

Strahlleistung im Puls : 32 kW

Kapitel 4

Das Datenaufnahmesystem

Die Messungen wurden mit gepulster Anregung durch den Schwerionenstrahl aufgenommen. Dabei gelang es, durch elektronische Koinzidenzschaltungen, langlebige Emissionen aus den Spektren herauszufiltern und das Detektorrauschen teilweise auszublenden. Alle Daten wurden im 'single photon counting mode' gewonnen. Das bedeutet, daß nur bei einem kleinen Bruchteil der ankommenden Strahlpulse auch ein Photon den Detektor erreicht, um dort ein Signal zu erzeugen. Dieses Verfahren ermöglichte es trotz geringem optischen und elektronischen Aufwand über die Statistik das maximale Auflösungsvermögen des Monochromators zu nutzen. Die Fokussieroptik vor dem Monochromatoreintrittsspalt war vor Beginn der Messungen so eingestellt worden, daß bei der Wellenlänge 476.5nm maximale Intensität im Detektor nachgewiesen werden konnte.

4.1 Wellenlängenspektren

Bei der Aufnahme der Wellenlängenspektren wurden die Emissionen vom Target mit einem 0.3m Gittermonochromator (McPherson Modell 218) analysiert und mittels eines Photomultipliers an dessen Austrittsspalt detektiert. Die unterschiedlichen Wellenlängen werden dabei durch mechanisches Verstellen der Gitterneigung erfaßt. Im Monochromator wurden Gitter mit 1200 Linien pro Millimeter, und einer Blazewellenlänge von 300nm verwendet. Die Schritte der elektronischen Weiterverarbeitung der gewonnenen Signale sind in Abbildung 4.1 schematisch dargestellt.

Die Weiterverarbeitung der Spektren wurde dabei so durchgeführt, daß durch Koinzidenzelektronik bereits eine erste Zeitinformation über die Emissionen bei unterschiedlichen Wellenlängen gewonnen werden konnte. Es wurden dabei Zeitfenster definiert, die jeweils nur die Photonen registrieren, die in dem jeweiligen Zeitintervall nach dem Anregungspuls emittiert wurden.

Die Einstellung der Zeitfenster war folgende:

Zeitfenster:	Intervall:
I	0 - 4 ns
II	2 - 6 ns
III	4 - 8 ns
IV	8 - 16 ns
V	16 - 32 ns
VI	32 - 128 ns
VII	0 - 3 μ s

Der Nullpunkt der Zeitskala war dabei so gelegt, daß das Maximum des Schwerionen-anregungspulses (2ns FWHM), in den Zeitfenstern bei $2\text{ns} \pm 0.5\text{ns}$ zu liegen

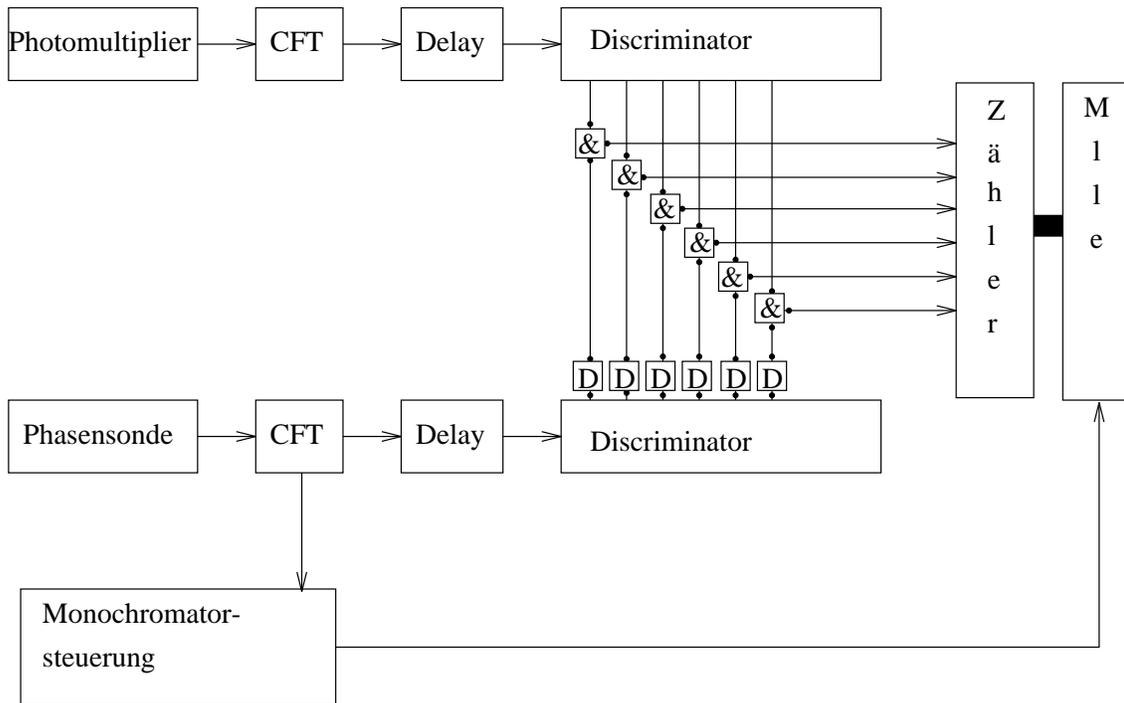


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung des elektronischen Aufbaus zur Aufnahme der Wellenlängenspektren. Mit der Phasensonde wurde das Eintreffen eines Strahlpulses am Experiment detektiert [39].

CFT	— 'constant fraction timing'-Diskriminator
Delay	— Verzögerungsleitungen
D	— Verzögerungsleitungen für die individuellen Zeitfenster
&	— Koinzidenzelektronik
Zähler	— CAMAC-Zählermodul
Mlle	— Datenaufnahmerechner auf VME-Bus Basis

kam.

4.2 Zeitspektren

Zur Aufnahme der Zeitspektren wurde der Monochromator auf die Wellenlänge eingestellt, bei der das zeitliche Emissionsverhalten untersucht werden sollte. In Abbildung 4.2 ist schematisch dargestellt, wie die Photomultipliersignale für diesen Fall weiterverarbeitet wurden.

Dabei gewinnt man die gewünschte Information, indem man bei jedem Photon, das im Photomultiplier ein Signal erzeugt, aufzeichnet, wieviel Zeit seit dem vorangegangenen Strahlpuls vergangen ist. Da es sich hierbei um eine statistische Messung handelt, benötigt man eine Vielzahl von Ereignissen, um eine zuverlässige Zeitinformation zu erhalten. Näheres zu beiden Meßmethoden kann z.B. in der Arbeit von G.Ribitzki [39] nachgelesen werden.

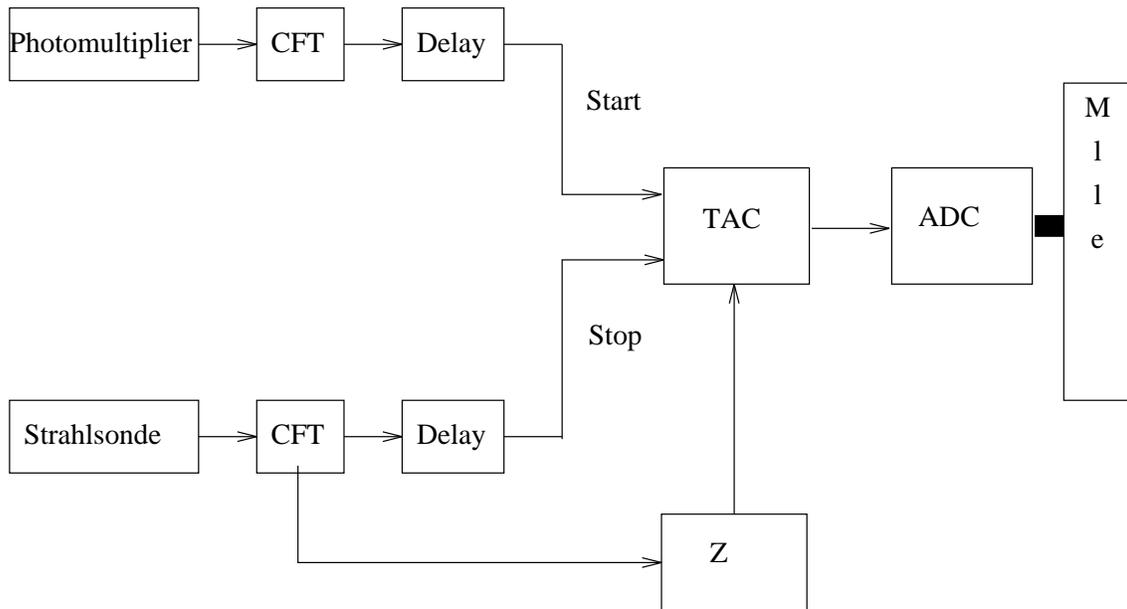


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des elektronischen Aufbaus zur Aufnahme der Zeitspektren [39].

CFT	— 'constant fraction timing'–Diskriminator
Delay	— Verzögerungsleitungen
TAC	— Zeit-zu-Amplitude-Konverter
Z	— Zähler für gültige Strahlpulse stoppt TAC nach voreingestellter Pulszahl
ADC	— Analog-zu-Digital-Konverter
Mlle	— Datenaufnahmerechner

Kapitel 5

Meßergebnisse und Interpretation

Im folgenden werden die während der Strahlzeiten vom 25.01.1993 bis 28.01.1993 und 17.03.93 bis 20.03.93 am Beschleunigerlabor der TU/LMU München gewonnenen experimentellen Daten präsentiert und interpretiert. Bei den Experimenten wurde eine Vielzahl von Wellenlängenspektren im Bereich von 300 bis 600nm und Zeitspektren über Intervalle von 200ns und $2\mu s$ für variable Cäsiumkonzentrationen in einem Argongastarget aufgenommen. Die Dichte der Argonteilchen konnte aus dem Einfülldruck bestimmt werden, während das Mischungsverhältnis durch Änderung der Temperatur bei geöffnetem Cäsiumreservoir variiert wurde.

5.1 Die Wellenlängenspektren

5.1.1 Darstellung der Meßergebnisse

Zu Beginn der Strahlzeit wurden die Referenzspektren in einem reinen Argontarget aufgezeichnet.

Es wurden 250hPa Argon bei einer Temperatur von 375°C in die vorher ausgeheizte und gespülte Apparatur gefüllt, was einer Teilchendichte von $3.1 \cdot 10^{18} \frac{1}{\text{cm}^3}$ entspricht. Im unteren Teil von Abbildung 5.1 ist das Spektrum solch eines schwerionenstrahlangeretzten Argontargets in einem Zeitfenster $0-3\mu s$ nach dem Anregungspuls, also quasi zeitintegriert zu sehen. Gut sichtbar sind eine große Zahl von Argonionenlinien, von denen die 476.5nm, 4p-4s Linie exemplarisch gekennzeichnet wurde. Diese Linienemission wird, wie schon aus früheren Untersuchungen bekannt ist [48], direkt angeregt und wird für spätere Betrachtungen noch eine Rolle spielen. Direkt angeregt heißt, daß die Argonatome in einem Schwerionenstoß sowohl ionisiert als auch in ein angeregtes Niveau gebracht werden.

Auf der linken Seite bei etwa 357nm erkennt man ein breites Maximum auf dem einige Linien sitzen. Diese Emission kann einer N_2 Molekülbande zugeordnet werden. Stickstoffverunreinigungen lassen sich bei dieser Art von Experimenten nur mit größtem Aufwand vermeiden, sind aber in dieser Höhe noch kein ernstes Problem. Das obere Spektrum in Abbildung 5.1 entstand, nachdem man *unter sonst identischen Versuchsbedingungen* durch Öffnen des Ventiles zum Cäsiumreservoir dem Targetgas eine Konzentration von $1 \cdot 10^{17} \frac{1}{\text{cm}^3}$ des Alkalimetalles hinzugefügt hatte.

Die Linie bei 476.5nm zeigt, da sie in oberem und unterem Spektrum in ihrer Intensität sehr gut übereinstimmt, daß sie zum einen von der Cäsiumbeimengung kaum beeinflußt wird und andererseits die Anregung durch den Schwerionenstrahl in beiden Spektren grundsätzlich vergleichbar war. Die beiden ('himmelblauen') Cäsium Resonanzlinien bei 455.5 und 459.3nm, nach denen ihr Entdecker Bunsen dieses Element benannt hatte, sind in Abbildung 5.1 mit b) gekennzeichnet. Das

Spektrum hat durch die Mischung einen völlig anderen Charakter erhalten. Es wird jetzt deutlich von einigen Linien im Wellenlängenbereich von 345 bis 385nm dominiert, die im reinen Argon zum Teil kaum gegen den Untergrund aufgelöst werden konnten. Diese werden im folgenden noch genauer diskutiert, da sie den gesuchten Effekt markieren.

Um die Wirkung des Cäsiums im Target besser isoliert darstellen zu können, werden im weiteren Differenzspektren gezeigt, d.h. vom Emissionsspektrum der jeweiligen Mischung wird das entsprechende Spektrum des reinen Argon subtrahiert. Abbildung 5.2 zeigt so im oberen Teil die Differenz aus den beiden Spektren in Abbildung 5.1. Zum Vergleich ist im unteren Fenster wieder die Emission des reinen Argon gezeigt. Die wieder mit a) gekennzeichnete 476.5nm ArII Linie ist logischerweise jetzt im Differenzspektrum nicht mehr zu sehen, dafür treten die Cäsium-Resonanzlinien deutlicher hervor. Nahezu alle Linien, die im reinen Argon deutlich zu sehen waren verschwinden in der Differenz, was bedeutet, daß der direkte Anregungsmechanismus durch den Schwerionenstrahl nahezu ungestört vom Cäsium

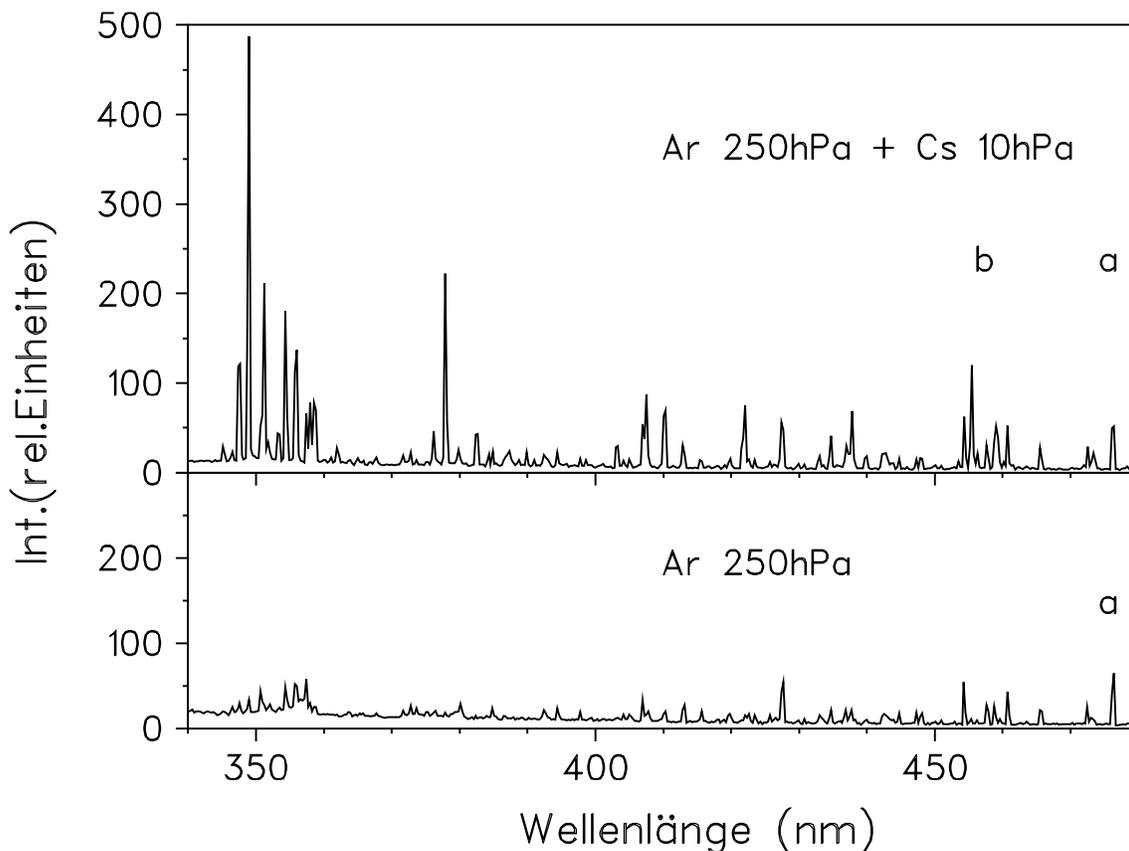


Abbildung 5.1: Wellenlängenspektren in einem Zeitfenster $0-3\mu\text{s}$ nach dem Anregungspuls von reinem Argon und einer Argon-Cäsium Mischung im Überblick. Eine typische Argonionnenlinie bei $476,5\text{nm}$ ist mit a), die Cäsiumresonanzlinien bei $455,5$ und $459,3\text{nm}$ sind mit b) gekennzeichnet.

abläuft.

Übrig bleiben ca. 20 starke Linien im ultravioletten und blauen Wellenlängenbereich, die mit Ausnahme der beiden Cäsiumresonanzlinien alle dem einfach geladenen Argonion zugeordnet werden konnten. Es handelt sich bei dem beobachteten Effekt also nicht um eine Anregung des Cäsiums durch den Schwerionenstrahl, sondern eindeutig um eine Wechselwirkung zwischen den Targetspezies. Um eine genaue Identifikation geben zu können, ist der wesentliche Wellenlängenbereich in Abbildung 5.3 nochmals herausvergrößert. Anhand des Argonvergleichsspektrums im unteren Fenster kann man gut sehen, daß gerade die Linien, die dort eher schwach emittiert werden, von der Cäsiumbeimischung profitieren. Die Y-Achsen der Spektren besitzen jeweils die gleichen absoluten Einheiten, so daß das Spektrum des reinen Argons in Abbildung 5.3 durch die veränderte Achsenskalierung gespreizt erscheint.

Die zwölf stärksten Linien aus diesem Spektrum konnten eindeutig den 4d-4p Übergängen im Argon II zugeordnet werden. Diese sind in Tabelle 5.1 vollständig

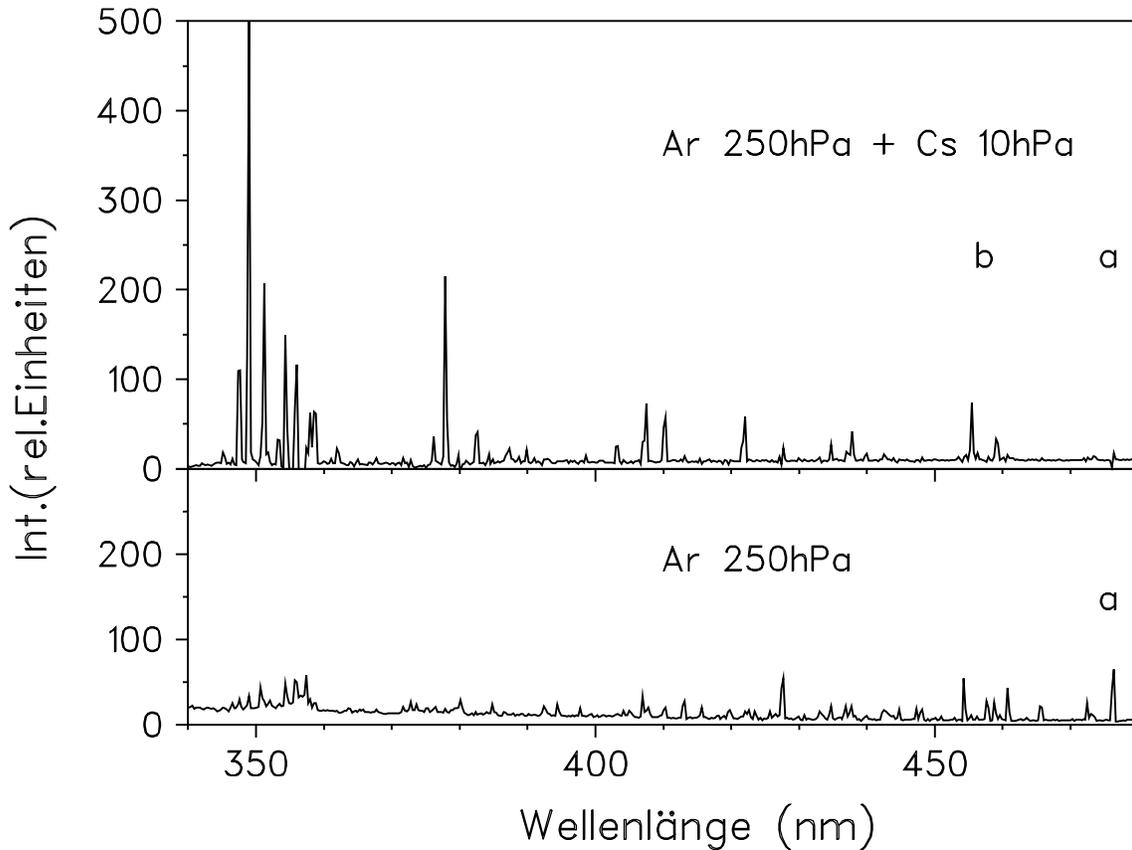


Abbildung 5.2: Wellenlängenspektren in reinem Argon (unten) und Differenzspektrum aus Argon und einer Argon-Cäsium Mischung im Überblick. Zeitfenster 0-3 μ s nach dem Anregungspuls. Eine typische Argonionenlinie bei 476,5nm ist mit a), die Cäsiumresonanzlinien bei 455,5 und 459,3nm sind mit b) gekennzeichnet.

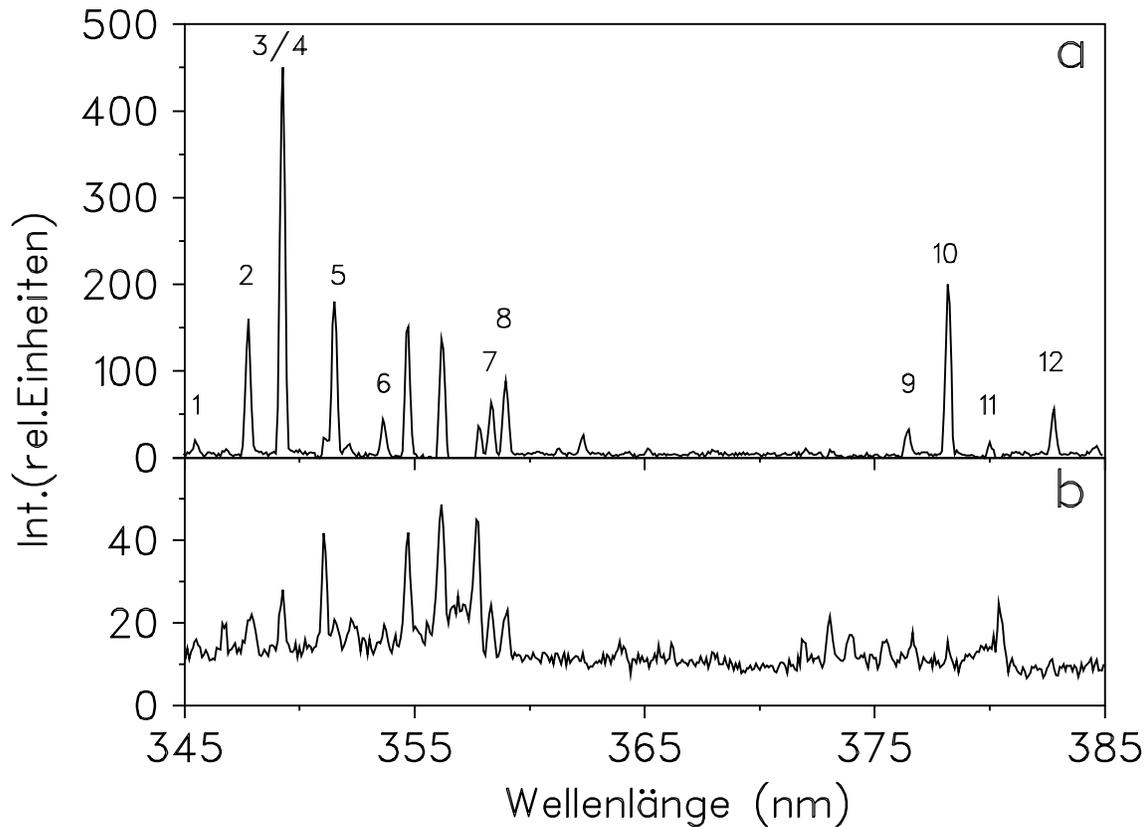


Abbildung 5.3: *a:* Differenz der Wellenlängenspektren einer Argon-Cäsium Mischung und dem von reinem Argon in einem Zeitfenster $0-3\mu\text{s}$ nach dem Anregungspuls im interessanten Wellenlängenbereich von $340-390\text{nm}$. *b:* Zum Vergleich ist darunter nochmals das reine Argonspektrum in vergleichbaren Intensitätseinheiten gezeichnet. Deutlich erkennbar sind die $4d-4p$ Linien des ArII um ein Vielfaches angewachsen.

charakterisiert. Es handelt sich fast ausschließlich um $4d\ ^4D_j - 4p\ ^4P_j^0$ Zerfälle. Bereits an dieser Stelle fällt auf, daß die Linienintensität von j abzuhängen scheint. Die beiden starken Linien Nr.3 und Nr.10 besitzen ein j von $\frac{7}{2}$, die mittelstarken Nr.2, 5 und 12 von $\frac{5}{2}$ und die schwachen Linien Nr.1, 6, 9 und 11 ein j von $\frac{3}{2}$ im oberen Niveau. Ebenso verhält es sich bei beiden $4d\ ^4F_j - 4p\ ^4D_j^0$ Linien, bei denen auch diejenige mit dem größeren Gesamtdrehimpuls des oberen Niveaus stärker emittiert wird.

Alle weiteren Linien in den Differenzspektren wurden ebenso eindeutig identifiziert und werden im folgenden Absatz 5.1.2 noch genauer untersucht.

5.1.2 Vergleich der Ergebnisse aus den Wellenlängenspektren mit dem Modell

Zunächst kann festgestellt werden, daß eine Wechselwirkung zwischen den beiden Targetspezies bei Schwerionenstrahlanregung beobachtet worden ist. In der sechsten

Tabelle 5.1: Auflistung der stärksten Linien mit der jeweils exakten Kennzeichnung der zugehörigen Energieniveaus im ArII, nach Sventitzkii [29] und Wiese [41].

Nr.	Wellenlänge (nm)	unteres Niveau (ll)	oberes Niveau (ul)	E_{ll} (eV)	E_{ul} (eV)	A_{ik} ($10^8 s^{-1}$)
1	345,41	$4p^4P_{\frac{5}{2}}^o$	$4d^4D_{\frac{3}{2}}$	-8.41	-4.82	0.45
2	347,68	$4p^4P_{\frac{5}{2}}^o$	$4d^4D_{\frac{5}{2}}$	-8.41	-4.84	1.34
3	349,12	$4p^4P_{\frac{3}{2}}^o$	$4d^4D_{\frac{3}{2}}$	-8.37	-4.82	2.2
4	349,15	$4p^4P_{\frac{5}{2}}^o$	$4d^4D_{\frac{7}{2}}$	-8.41	-4.86	3.0
5	351,43	$4p^4P_{\frac{3}{2}}^o$	$4d^4D_{\frac{5}{2}}$	-8.37	-4.84	1.23
6	353,53	$4p^4P_{\frac{1}{2}}^o$	$4d^4D_{\frac{3}{2}}$	-8.33	-4.82	0.82
7	358,16	$4p^4D_{\frac{1}{2}}^o$	$4d^4F_{\frac{3}{2}}$	-7.99	-4.53	1.8
8	358,84	$4p^4D_{\frac{7}{2}}^o$	$4d^4F_{\frac{9}{2}}$	-8.14	-4.68	3.39
9	376,35	$4p^4D_{\frac{7}{2}}^o$	$4d^4D_{\frac{5}{2}}$	-8.14	-4.84	0.14
10	378,08	$4p^4D_{\frac{7}{2}}^o$	$4d^4D_{\frac{7}{2}}$	-8.14	-4.86	0.94
11	379,93	$4p^4D_{\frac{5}{2}}^o$	$4d^4D_{\frac{3}{2}}$	-8.08	-4.82	0.23
12	382,68	$4p^4D_{\frac{5}{2}}^o$	$4d^4D_{\frac{5}{2}}$	-8.08	-4.84	0.15

Spalte der Tabelle 5.1 sind die Energien der Ausgangsniveaus der stärksten, identifizierten Übergänge aufgetragen. Diese liegen alle in einem auffällig schmalen Band von nur etwa 300meV oberhalb von -4.86eV. Diese Werte sind nahezu identisch mit dem in Abschnitt 2.1 prognostizierten Wert für E_{A0} von -4.91eV.

Alle weiteren Linien des in Abbildung 5.2 gezeigten Differenzspektrums entsprechen optischen Übergängen aus den Niveaus $5s^2P_{\frac{1}{2}}$, $5s^2P_{\frac{3}{2}}$ bzw. $5s^4P_{\frac{1}{2}}$, $5s^4P_{\frac{3}{2}}$, $5s^4P_{\frac{5}{2}}$ und $3d^2S_{\frac{1}{2}}$, die wiederum Energien von -4.83eV, -4.93eV bzw. -4.95eV, -5.04eV, -5.12eV und -4.81eV besitzen. Das bedeutet aber, daß auch diese in einem schmalen Energieband um den vorhergesagten Wert von E_{A0} liegen. Man stellt sogar fest, daß alle bekannten Energieniveaus [29] des einfach geladenen Argonions in einem Bereich von etwa -4.8eV bis -5.0eV nach der Zugabe von Cäsium in diesem Experiment verstärkt besetzt wurden. Es kann also bereits hier festgestellt werden, daß im Rahmen der Genauigkeit des angewandten Modells exakt der vermutete physikalische Effekt aufgetreten ist. Bei diesem Experiment ist damit, soweit dem Autor bekannt, erstmals bei thermischen Energien Ladungstransfer zwischen zweifach geladenen Argonionen und neutralen Cäsiumatomen beobachtet worden.

Die Abbildungen 5.4 und 5.5 zeigen einen Überblick sowohl über alle energetischen Niveaus, die an der Ladungstransferreaktion beteiligt sind, als auch über alle daraus resultierenden Linienemissionen. Diese können in drei Gruppen eingeteilt werden.

Die Hauptgruppe besteht aus den 20 Linien, die die untere Hälfte von Abbildung 5.4 füllen. Unter diesen sind auch die stärksten 4d-4p Übergänge. Alle diese Linien werden durch die Ladungstransferreaktion zwischen den zweifach geladenen Ar^{2+} Ionen im 3P_2 Grundzustand und den Cäsium Grundzustandsatomen verstärkt. Tendenziell nehmen auch die Linienintensitäten, die direkt mit den Besetzungszahlen der Vorläuferebenen korreliert sind, mit zunehmendem Abstand ihrer Energien vom theoretischen Ergebnis ab. Das mag zwar ein zufälliger Zusammenhang sein, der aus einer Drehimpulsabhängigkeit des Stoßmechanismus resultieren könnte, was noch genauer zu untersuchen wäre.

Die zweite Gruppe besteht aus den beiden Linien, die in Tabelle 5.1 die Nummern 7 und 8 tragen. Deren obere Niveaus liegen etwa 180 und 330 meV oberhalb der am stärksten vom Transfer bevölkerten Niveaus und dürften daher nach der Modellvorstellung nicht so stark besetzt werden, wie dies aus Abbildung 5.3 hervorgeht. Eine einfache Erklärung dieser 'Verschmierung' könnte durch die angeregten Niveaus knapp über dem Grundzustand im zweifach geladenen Argonion gegeben sein. Dort befinden sich die beiden metastabilen $3p^4\ ^3P_0$ und $3p^4\ ^3P_1$ Niveaus jeweils 190 bzw. 140 meV oberhalb der $3p^4\ ^3P_2$ Ionisationsenergie. Diese drei Niveaus (über Besetzungsdichten ist dem Autor nichts bekannt) bedeuten für den Transfer drei verschiedene Ausgangszustände, d.h. drei verschiedene Nullpunkte für die Termleiter im ArII. Diese Überlegung ist in dem Niveauschema 5.5 veranschaulicht.

Ungeklärt dagegen ist die auffallende Verstärkung der beiden Linien bei 354.58 nm und 356.10 nm, die die dritte Gruppe bilden. Diese sind Übergängen von $4d'\ ^2G_{\frac{7}{2}} - 4p'\ ^2F_{\frac{5}{2}}^0$ bzw. $4d'\ ^2G_{\frac{9}{2}} - 4p'\ ^2F_{\frac{7}{2}}^0$ zugeordnet, deren obere Energieniveaus beide 3.01 eV unter der Ionisationskante des Ar^+ liegen. Bisher angestellte Vermutungen gehen dahin, daß diese von einem Transfer zwischen den Ar^{2+} und angeregten Cäsiumatomen herrühren. Im neutralen Cäsium gibt es ein sehr langlebiges angeregtes Energieniveau, das genau 1.81 eV oberhalb des Grundzustandes liegt. Dieses ist das einzige, das durch eine Vielzahl starker Übergänge im Cäsium bevölkert wird und dessen Zerfall in den Grundzustand optisch verboten ist. Die Differenz dieser beiden Energien ergibt aber gerade wieder den Wert von -4.81 eV, der uns von den stärksten Transferlinien wohl bekannt ist. Auch dieser Mechanismus ist in Abbildung 5.4 (oben rechts) veranschaulicht.

5.1.3 Die Effizienz des Ladungstransfers

Die bereits erwähnte Argonionenlinie bei 476.5 nm ist eine bekannte Laserlinie. Besonders vorteilhaft für die Auswertung der Wellenlängenspektren war der Umstand, daß diese Linie bereits von J. Wieser unter direkt vergleichbaren Bedingungen sehr genau untersucht worden ist [27]. Dabei wurde ebenfalls mit einem 100 MeV $^{32}S^{8+}$ Strahl ein Argontarget mit nahezu identischer Dichte angeregt. Allerdings waren die Strahlpulse mit $1.5 \cdot 10^6$ Teilchen ca. vier mal intensiver als in dem, in der vor-

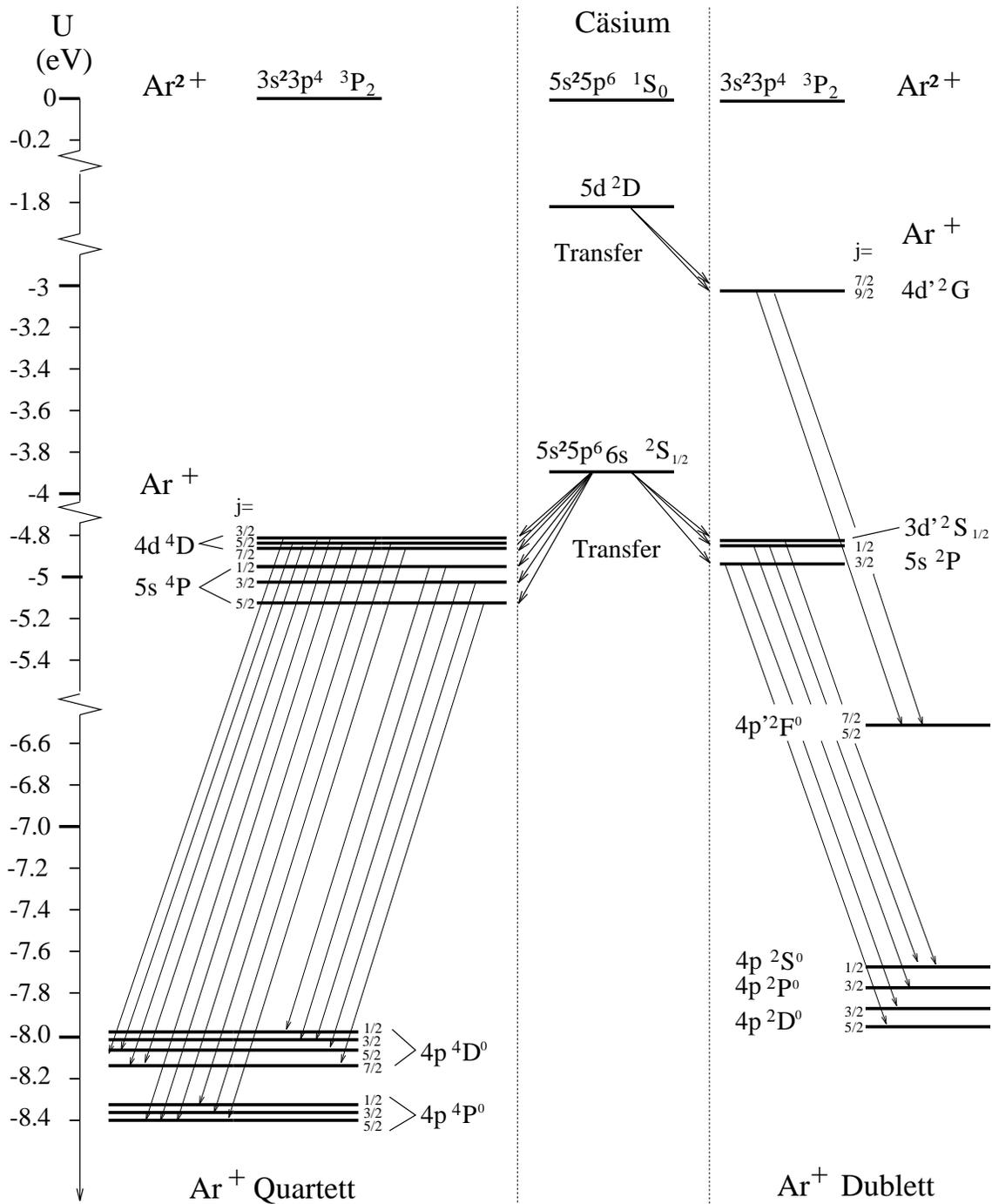


Abbildung 5.4: Niveauschema der gefundenen, vom Ladungstransfer bevölkerten Linien im Überblick. Es sind alle aus der Transferreaktion resultierenden Linien durch die dünnen Pfeile angedeutet, wohingegen die etwas stärkeren Pfeile in der mittleren Spalte den Weg des Elektrons beim Ladungstransfer andeuten. Die Energieabstände sind einheitlich skaliert und auf die Ionisierungsgrenze von Cs^0 und Ar^+ oder anders ausgedrückt auf die Grundzustände von Cs^+ und Ar^{2+} bezogen. Diese liegen nach dem Modell auf gleicher Ebene und bilden sozusagen das 'Vakuumniveau' für das Transferelektron. Man beachte, daß die Energieachse mehrfach unterbrochen ist.

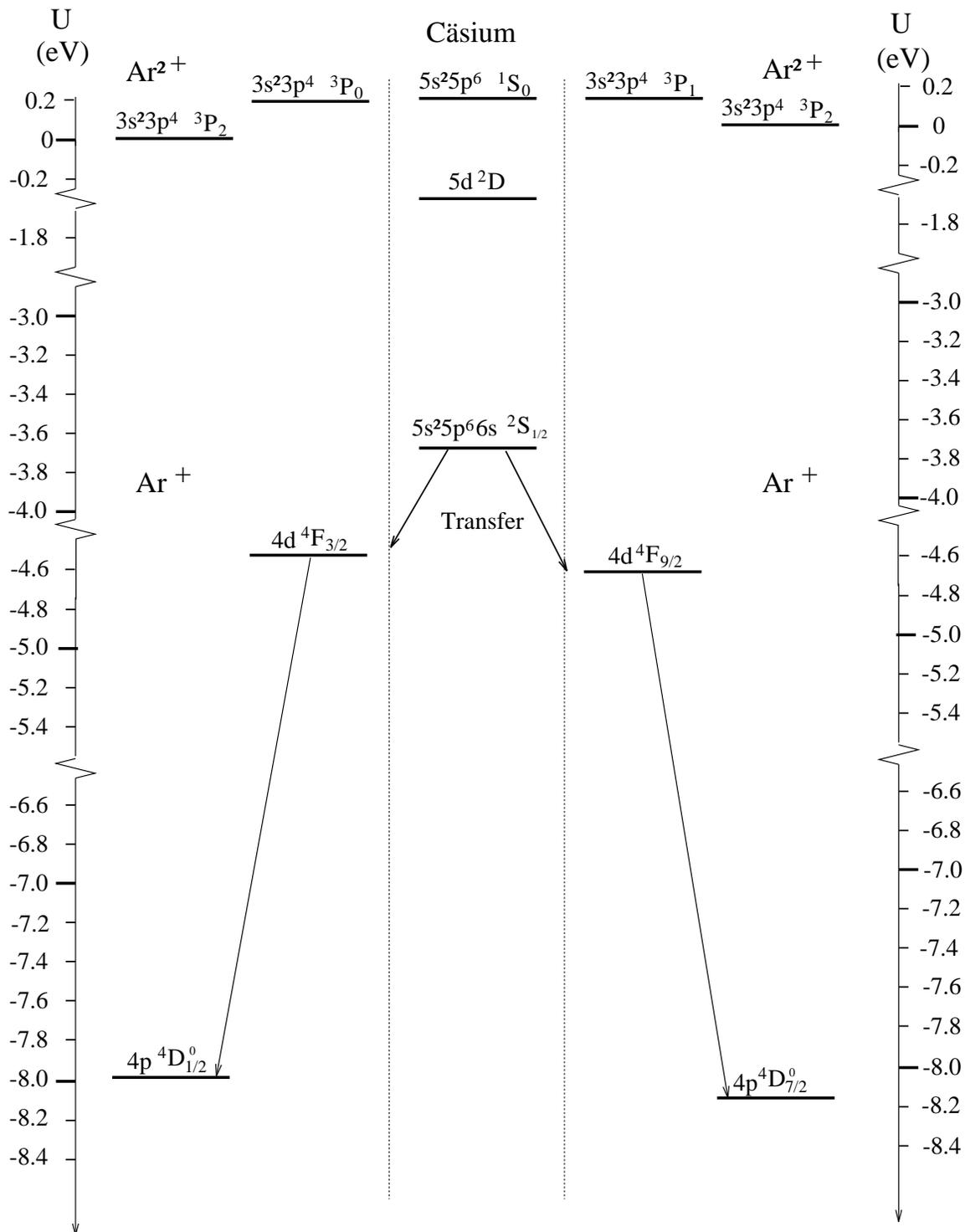


Abbildung 5.5: Niveauschema zur Veranschaulichung der Wirkung der beiden Niveaus nahe des Grundzustandes im zweifach geladenen Argonion. Die beiden metastabilen $3s^23p^4 \ ^3P_0$ und 3P_1 Energieniveaus, die 190 und 140 meV über dem Grundzustand des Ar^{2+} liegen, können ebenfalls Transferpartner für das Cäsium sein. Dies könnte die Besetzung von höherliegenden Energieniveaus im Argonion erklären.

liegenden Arbeit beschriebenen Experiment. Herrn Wieser war es möglich, die Zahl der emittierten Photonen mit $P = 5 \cdot 10^7 \frac{1}{\text{cm}^3 \text{Puls}}$ in dem Zeitintervall von 2 - 6 ns nach der Anregung zu bestimmen. Er gab dabei $\pm 50\%$ als Fehlerobergrenze an.

Mit dieser Information gelingt es relativ einfach die Zahlen der auf den hier gefundenen Linien emittierten Photonen pro Puls und cm^3 durch Vergleich der Linienintensitäten abzuschätzen. Die im folgenden gezeigte Methode ist vorteilhaft, da sie die Fehler in der Messung des Strahlstromes ohne Wirkung läßt und auch die geometrischen und optischen Gegebenheiten der Messung an der ArCHe keinen Einfluß auf die Qualität des Ergebnisses haben. Einzig die Dispersion der Quarzlinse und des Experimentierrohres verfälschen das Resultat geringfügig. Da die ganze optische Einheit des Experimentes aber auf die 476.5 nm Linie optimiert war, gab die folgende Abschätzung in jedem Fall eine untere Grenze für die Intensität der Transferlinien.

Man bildet die Integrale über die gemessenen Intensitäten der Transferlinien und setzt sie ins Verhältnis zu der absoluten Emissivität der Linie bei 476,5nm. Die gesuchte Zahl der nach Transfer emittierten Photonen T ist damit:

$$T = \sum_{\text{Transferlinien}} \frac{\int_{\lambda_i - \Delta\lambda}^{\lambda_i + \Delta\lambda} I(\lambda) d\lambda}{\int_{476.5\text{nm} - \Delta\lambda}^{476.5\text{nm} + \Delta\lambda} I(\lambda) d\lambda} \cdot P \quad (5.1)$$

Setzt man nun die Zahlenwerte ein, so erhält man, daß ca. $7 \cdot 10^8$ Photonen pro cm^3 und Strahlpuls vom Target über alle Transferlinien summiert, emittiert werden. Der Fehler bleibt, wie bei P in der Größenordnung $\pm 50\%$. Gut die Hälfte davon wird allein auf den beiden Linien, die als oberes Niveau $4d \ ^4D_{\frac{7}{2}}$ gemeinsam haben, erzeugt. Dieses ist somit das vom Ladungstransfer am meisten bevorzugte und somit für eine Laseranwendung interessanteste Niveau. Nimmt man weiter an, daß typischerweise nur etwa 50% der angeregten Atome strahlend zerfallen, so kann man abschätzen, daß in der Größenordnung $10^9 \frac{1}{\text{cm}^3 \text{Puls}}$ nutzbare, angeregte Argonionen im Zustand $4d \ ^4D_{\frac{7}{2}}$ erzeugt werden. Auch dieses Ergebnis ist wieder in sehr guter Übereinstimmung mit der Prognose aus dem Modell. Der Faktor 2, der dabei die nichtstrahlende Stoßabregung berücksichtigt, ist eine relativ grobe Schätzung. Zahlenwerte für die Linie bei 349.15nm waren nicht bekannt, so daß man die Werte der Argonionenlinie bei 476.5nm zur Abschätzung heranzog. Für diese ist eine Ratenkonstante von $4 \cdot 10^{-10} \frac{\text{cm}^3}{\text{s}}$ bekannt [49]. Mit einer Argondichte von $1.7 \cdot 10^{18} \frac{1}{\text{cm}^3}$ ergibt sich dabei eine Stoßabregungsrate, die in etwa mit dem A_{ik} der Linie bei 349.15nm vergleichbar ist.

Der angeregte $4d \ ^4D_{\frac{7}{2}}$ Zustand zerfällt strahlend im wesentlichen über die zwei Kanäle, die in Tabelle 5.1 beschrieben sind. Dabei entfallen aufgrund der jeweiligen Einsteinkoeffizienten A_{ik} etwa 75% auf die Linie bei 349.15nm. In Abbildung 5.2 zeigt sich die Linie bei 349nm als stärkste im gesamten Spektrum. Bei genauere Betrachtung erkennt man, daß sie aus zwei Linien bei 349.12nm und 349.15nm zusammengesetzt ist, wovon nur letztere den stark besetzten $4d \ ^4D_{\frac{7}{2}}$ Zustand als oberes Niveau hat. Der geringe Abstand dieser Linien liegt gerade noch an der

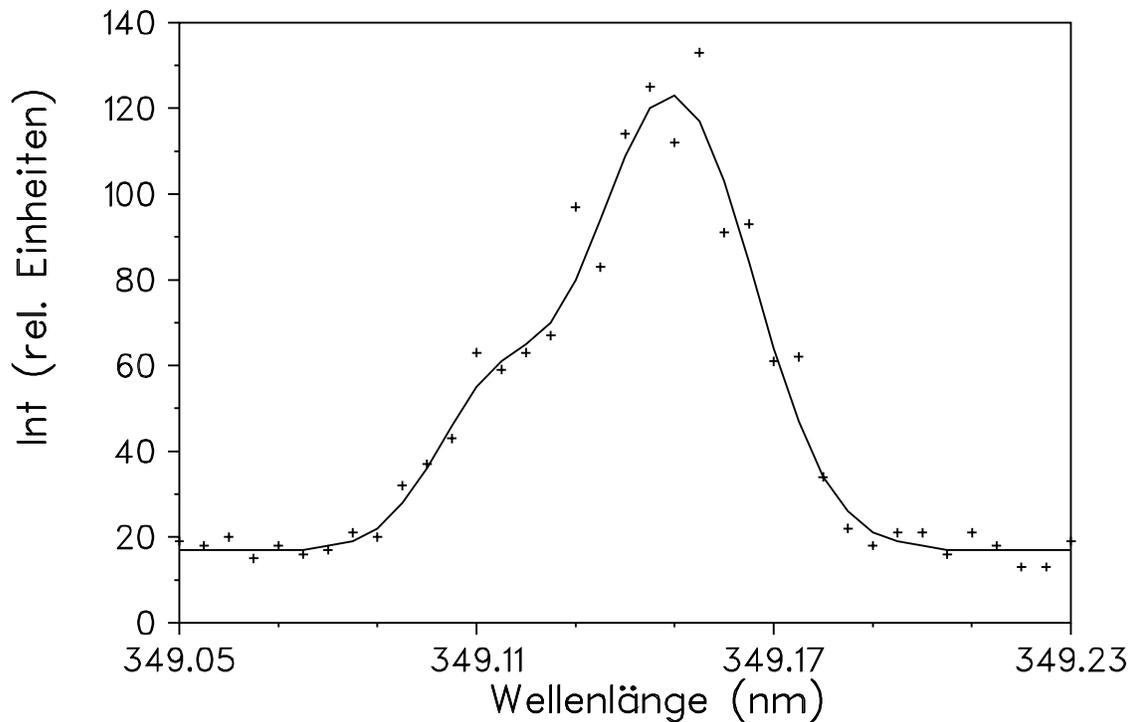


Abbildung 5.6: *Detaildarstellung der beiden Linien bei 349.12nm und 349.15nm. Die Kreuze markieren die Meßpunkte. Die durchgezogene Linie zeigt die Summe aus zwei Gaußkurven, die an die Meßpunkte angepaßt wurden.*

Grenze des Auflösungsvermögens des verwendeten Monochromators. In Abbildung 5.6 wurden zwei Gaußkurven an die aufgenommenen Daten angepaßt, um beide Linien eindeutig zu identifizieren und ihr Intensitätsverhältnis zu bestimmen. In der Tat bestätigte sich obige Vermutung und es zeigte sich, daß die Linie bei 349.15nm etwa 85% zur Intensität dieser beiden beiträgt. Zusammenfassend kann man unter Berücksichtigung der jeweiligen Einsteinkoeffizienten berechnen, daß sich etwa ein Drittel der beim Ladungstransfer erzeugten, angeregten Argonionen im oberen Niveau dieser stärksten Linie befinden und sie somit die interessanteste Kandidatin für eine spätere Laseranwendung darstellt. Die gefundenen Linienintensitäten sind darüberhinaus auch gut mit den bekannten A_{ik} Werten [41], die ebenfalls in Tabelle 5.1 aufgeführt sind, verträglich. Aus diesen läßt sich dann, wie in Kapitel 6 geschehen, auf die Besetzungsdichten der angeregten Niveaus zurückschließen.

5.1.4 Erste Zeitinformationen aus den Wellenlängenspektren

Durch die in Abschnitt 4.1 beschriebene Aufnahmetechnik der Wellenlängenspektren erhält man einen Überblick über die zeitliche Entwicklung der Lichtemission im gesamten untersuchten Wellenlängenbereich. Das ist nicht nur für die Auswahl der Wellenlängen, auf denen die Zeitspektren gemessen werden sollen hilfreich, sondern

gibt auch einen guten Einstieg in die Beurteilung des gesamten Reaktionsmechanismus.

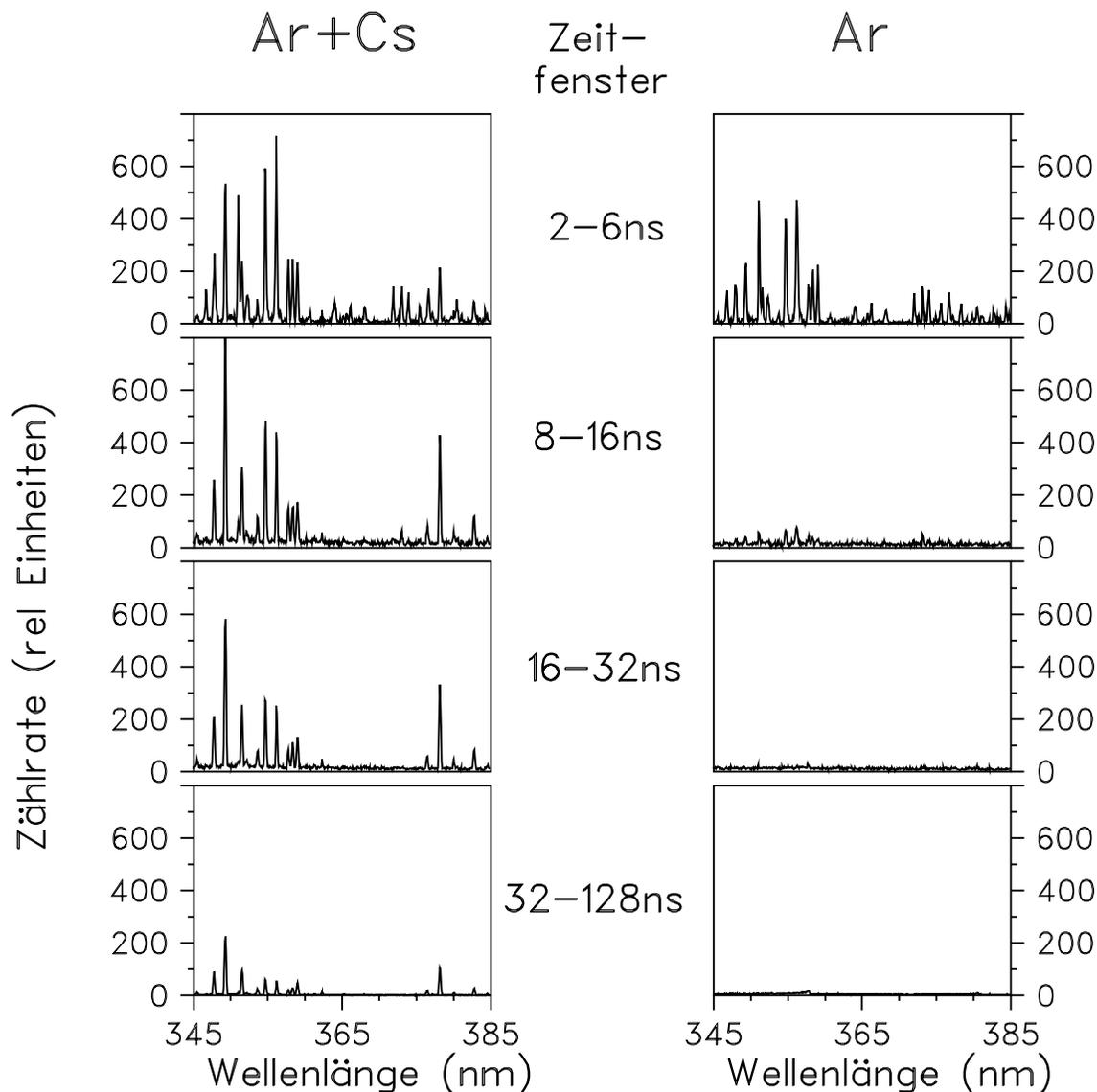


Abbildung 5.7: Gezeigt sind verschiedene Zeitfenster in den Emissionsspektren einer Argon-Cäsiummischung im Wellenlängenbereich von 345 bis 385 nm. Daneben befindet sich dieselbe Darstellung für reines Argon zum Vergleich. Gut erkennbar verhalten sich die Transferlinien sehr unterschiedlich zu den charakteristischen Argonionenlinien.

Abbildung 5.7 und 5.8 zeigen chronologisch ausgewählte Zeitfenster im Vergleich des reinen Argon mit einer Argon-Cäsiummischung bei 375°C . Die Bedingungen sind identisch mit denen, die in den Abbildungen 5.1, 5.2 und 5.3 quasi-zeitintegriert dargestellt sind. Alle Informationen, die den Bildern 5.7 und 5.8 entnommen werden können, entsprechen wiederum den Erwartungen aus dem Modell.

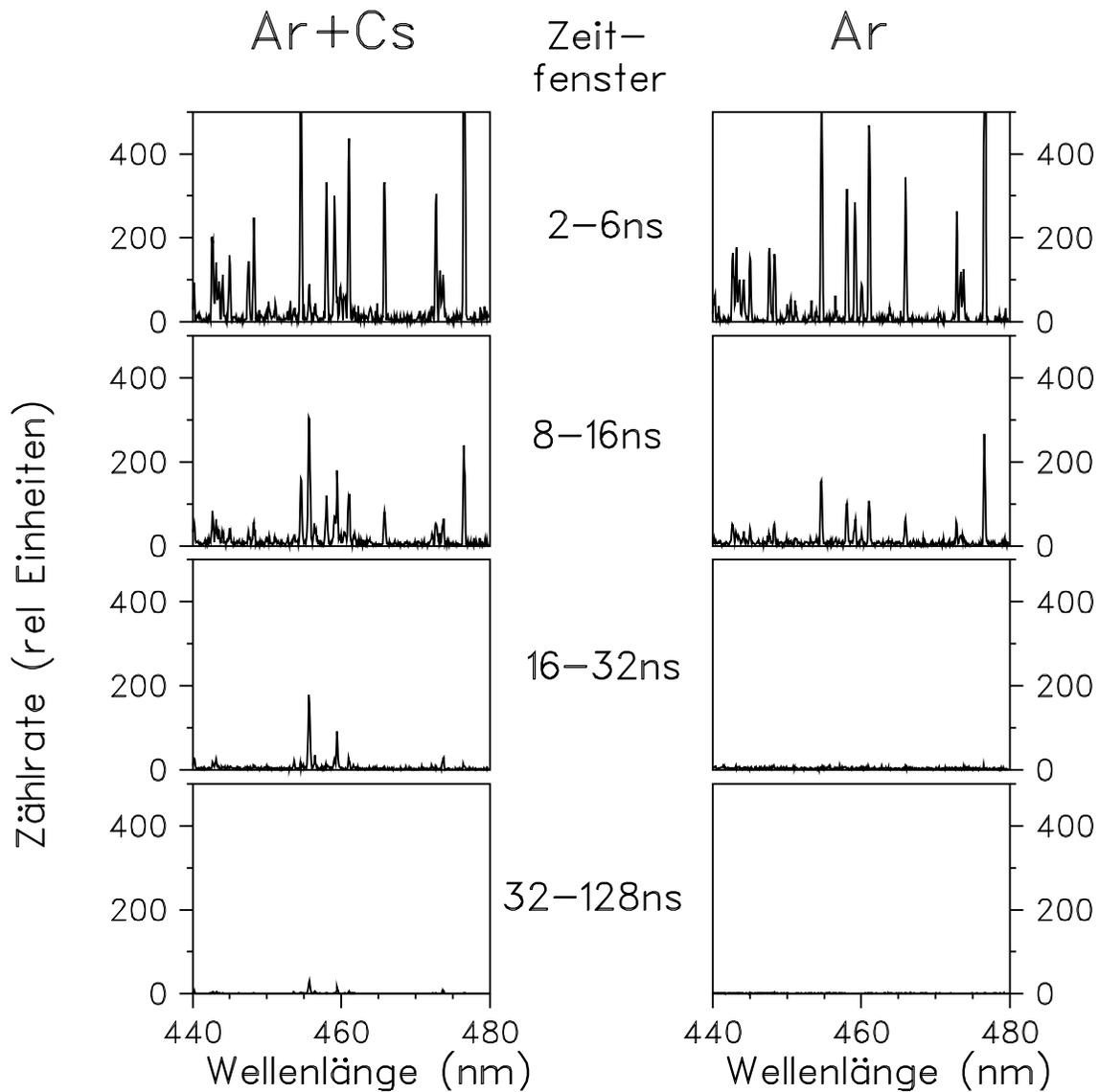


Abbildung 5.8: Gezeigt sind verschiedene Zeitfenster in den Emissionsspektren einer Argon-Cäsiummischung im Wellenlängenbereich von 440 bis 480 nm. Daneben ist dieselbe Darstellung für reines Argon zum Vergleich. Gut erkennbar zeigen auch die Cäsiumresonanzlinien bei 455,5nm und 459,3nm eine ungewöhnlich hohe Lebensdauer im Vergleich zu den charakteristischen Argonionenlinien.

- Die Emissionen auf den vom Transfer bevölkerten Linien setzen bereits prompt nach dem Anregungspuls ein, wie das für einen Zweiteilchen-Stoßprozeß zu erwartet war.
- Die auch im reinen Argon auftretenden charakteristischen Ionenlinien sind nahezu unabhängig von der Cäsiumbeimischung. Dies zeigt erneut, daß zum einen der direkte Anregungsmechanismus im Argon durch den Schwerionen-

strahl nicht wesentlich von der Mischung beeinflusst wird, zum anderen die Argonionenlinien im allgemeinen nicht stark von den Alkaliatomen gequenchet werden.

- In Abbildung 5.8 sieht man, daß die beiden Cäsium Resonanzlinien bei 455nm und 459nm eine ähnliche Lebensdauer besitzen wie die 'Transferlinien'. Diese lange Lebensdauer kann entweder durch die Resonanzabsorption in einem, auf dieser Wellenlänge optisch dichten Medium erzeugt werden oder aber durch Sekundärprozesse des Ladungstransfers bedingt sein. Denkbar wäre, daß die im Transfer gebildeten Cs^+ Ionen, gegebenenfalls über den Zwischenschritt der Bildung eines Molekülions [39], mit freien Elektronen rekombinieren und dabei Licht auf der Resonanzlinie emittiert wird. Der genaue Zusammenhang dieses Randeffektes konnte noch nicht geklärt werden.
- Die Emission im Bereich der Transferlinien nimmt mit einer, relativ zur natürlichen Lebensdauer viel größeren Zeitkonstante ab. Der Ladungstransfer ist also als gaskinetischer Prozeß viel langsamer als typische Lebensdauern von Ionenlinien.

Da im letzten Punkt auch Konkurrenzprozesse, die die Grundzustandsniveaus der Ar^{2+} Ionen entvölkern, eine Rolle spielen, wird die Kinetik des Ladungstransfers anhand von detaillierteren Zeitspektren in Kapitel 5.2 untersucht.

5.2 Die Zeitspektren

Zur Untersuchung der genauen Zeitstruktur der gefundenen Ladungstransferreaktion wurde eine Reihe von Zeitspektren mit einer Auflösung von etwa 1ns akkumuliert. Im wesentlichen wurde dazu die stärkste der beim Experiment gefundenen Linien bei 349.15nm für unterschiedliche Cäsiumkonzentrationen im Argontarget aufgenommen. Die natürliche Lebensdauer dieser Linie ist mit 3.33ns [41] sehr kurz. Damit war es, wie in Abschnitt 2.5 gezeigt wurde, möglich, die Kinetik des Ladungstransfers direkt aus den Zeitspektren der Linienemissionen abzuleiten. Aus der Konzentrationsabhängigkeit des Zeitverhaltens ließ sich dann die Ratenkonstante für die beschriebene Ladungstransferreaktion ermitteln. Ebenso wurde der Einfluß der Argondichte im Target dokumentiert, um experimentell die möglichen Konkurrenzprozesse separieren zu können und eine optimale Targetzusammensetzung für den im Ausblick vorgeschlagenen Laser zu finden. Daneben wurden die ArII Linie bei 476.5nm und weitere Transferlinien als Referenzen untersucht.

5.2.1 Wirkung des Ladungstransfers auf die Zeitstruktur der ArII Linie bei 349.15nm.

Abbildung 5.9 zeigt zunächst einen Vergleich der Emission bei 349.15nm aus einem reinen Argontarget (b.) mit der einer Argon-Cäsiummischung (a.) in Abhängigkeit von der Zeit nach den Anregungspulsen. Man sieht, daß beide Kurven nach einem schnellen Anwachsen in guter Näherung einen exponentiellen Abfall nach dem Maximum zeigen. Die Zeitkonstante, die man aus der Kurve b. ableiten kann, ist dabei in guter Übereinstimmung mit der natürlichen Lebensdauer der Linienemission des erwarteten 4d-4p Überganges. Kurve a. dagegen zeigt ein völlig anderes Verhalten. Die Zeitkonstante τ^{-1} des exponentiellen Abfalles ist wesentlich kleiner als im Fall des reinen Argon und der Maximalwert ist in der Mischung so stark überhöht, daß die prompte Emission durch die direkte Anregung, also Kurve a., die ja auch in diesem Fall dem Ganzen unverändert überlagert sein müßte, bereits nicht mehr erkennbar ist. Die Flächen unter den Kurven entsprechen der jeweils zeitintegriert auf dieser Wellenlänge emittierten Intensität. In der Mischung ist diese um ein Vielfaches größer. Der Ladungstransfer ist also ein höchst wirksamer Mechanismus, um diese Linie anzuregen. Der Ladungstransfer setzt auch sofort nach der Anregung ein, wie man dies bei einem Zweiteilchenstoß zwischen niederenergetischen Stoßpartnern erwartet. Gut erkennbar ist auch der gleichmäßige, exponentielle Abfall in Kurve a. der exakt den Erwartungen aus Abschnitt 2.5 entspricht.

5.2.2 Einfluß der Cäsiumkonzentration auf die Zeitstruktur

Handelt es sich bei dem gefundenen Effekt in der Tat um den postulierten Ladungstransfer zwischen zweifach geladenen Argonionen und den Cäsiumatomen, so müßte eine Veränderung der Targetmischung sich in einer Änderung der zeitlichen Emission niederschlagen. Um dies zu überprüfen, wurden weitere Zeitspektren bei 349.15nm und geänderter Konzentration des Alkalimetalles im Target aufgezeichnet. In Abbildung 5.10 ist eine repräsentative Auswahl dieser Spektren gezeigt.

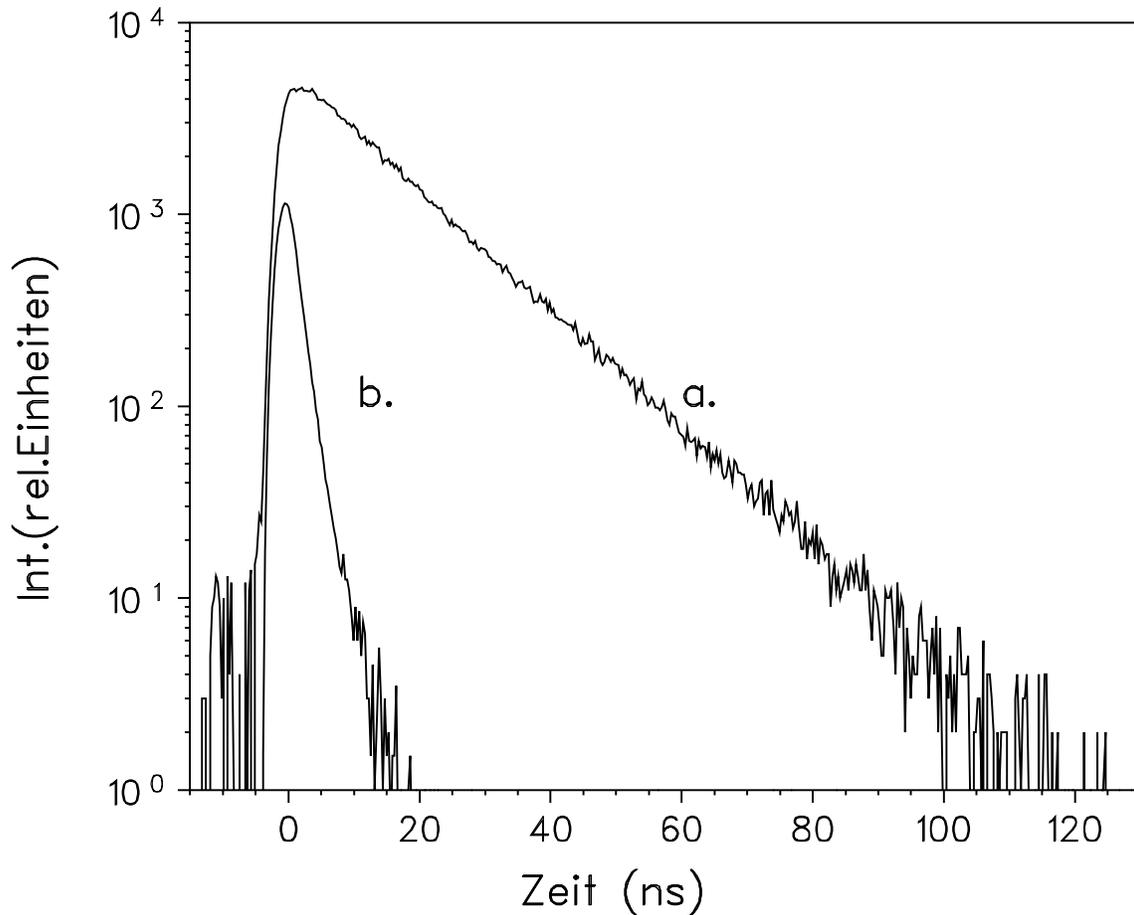


Abbildung 5.9: Zeitspektrum bei $\lambda = (349.1 \pm 0.1) \text{ nm}$ für reines Argon (b.) bei einer Dichte von $4 \cdot 10^{18} \frac{1}{\text{cm}^3}$ im Target und einer Argon-Cäsium-Mischung von $1.7 \cdot 10^{18} \frac{1}{\text{cm}^3}$ Argon und $4.2 \cdot 10^{16} \frac{1}{\text{cm}^3}$ Cäsium im Vergleich.

Zwei Dinge werden anhand dieser Darstellung deutlich. Zum einem nehmen mit steigendem Cäsiumanteil im Target die Steigungen der Zeitspektren also die Zeitkonstanten des Ladungstransfers, von Kurve a nach Kurve d stark zu. Dies entspricht dem entworfenen Bild vom Ladungstransfer. Je mehr Stoßpartner für die Ar^{2+} Ionen vorhanden sind, umso schneller können diese durch den Ladungstransferstoß abgebaut werden. Zum anderen konnte anhand dieser Spektren aber auch gezeigt werden, daß die zeitintegrierte Intensität auf der Linie 349.15nm im Rahmen der Meßgenauigkeit schon ab Cäsiumdichten von etwa $2 \cdot 10^{15} \frac{1}{\text{cm}^3}$ und einer Argondichte von $1.7 \cdot 10^{18} \frac{1}{\text{cm}^3}$ nahezu konstant ist. In Abbildung 5.11 sind zur Veranschaulichung die Meßergebnisse aus Bild 5.10 in zeitintegrierter Form dargestellt. Diese sind auf den Strahlstrom korrigiert und zeigen eine gute Konvergenz. Damit ist für diese Randbedingungen bereits eine Grenze gefunden, ab der die Summe der Konkurrenzprozesse, die unabhängig von der Cäsiumbeimischung stattfinden, vernachlässigt werden können.

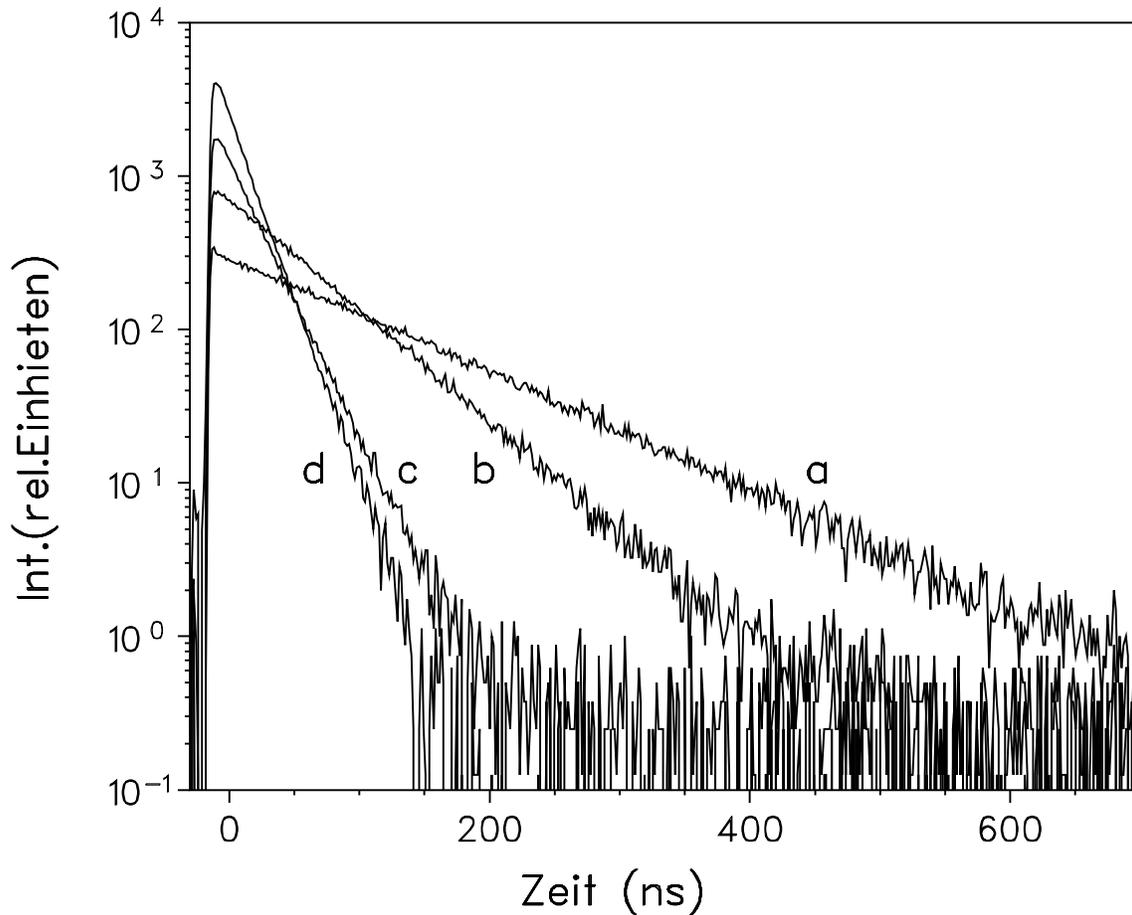


Abbildung 5.10: Zeitspektrum bei $\lambda = (349.12 \pm 0.1)$ nm für unterschiedliche Cäsiumkonzentrationen in einem $1.7 \cdot 10^{18} \frac{1}{\text{cm}^3}$ Argontarget. Die Cäsiumdichten sind dabei im Fall a: $3.6 \cdot 10^{15} \frac{1}{\text{cm}^3}$, b: $9.2 \cdot 10^{15} \frac{1}{\text{cm}^3}$, c: $2.3 \cdot 10^{16} \frac{1}{\text{cm}^3}$ und d: $4.2 \cdot 10^{16} \frac{1}{\text{cm}^3}$.

5.2.3 Ableitung der Ratenkonstanten des Ladungstransfers

Nach den Ausführungen in Abschnitt 2.5 folgt die beobachtete Linienemission bei Vernachlässigung aller Konkurrenzprozesse wegen der, verglichen mit der Zeitkonstante des Transfers, sehr kurzen natürlichen Lebensdauer der Gleichung:

$$I(t) = I_0 \exp -(k_T[C_s]t), \quad (5.2)$$

d.h. die Zeitstruktur der Linienemission ist identisch mit der des Ladungstransfers. Das ist ähnlich zu dem Mutter-Tochter-Prinzip in der Kernphysik, wo man bei einer vergleichsweise kurzen Lebensdauer der Tochterkerne an deren Zerfallsrate direkt die Lebensdauer der Mutterkerne ablesen kann.

An die fallenden Flanken der Kurven in Abbildung 5.10 können ohne große Fehler Exponentialfunktionen angepaßt werden, die dann wiederum durch Gleichung 5.2 beschrieben werden. Trägt man die gefundenen Werte $\tau^{-1} = (k_T[C_s])$ nun über der Cäsiumkonzentration wie in Abbildung 5.12 auf, so beschreiben diese eine Gerade.

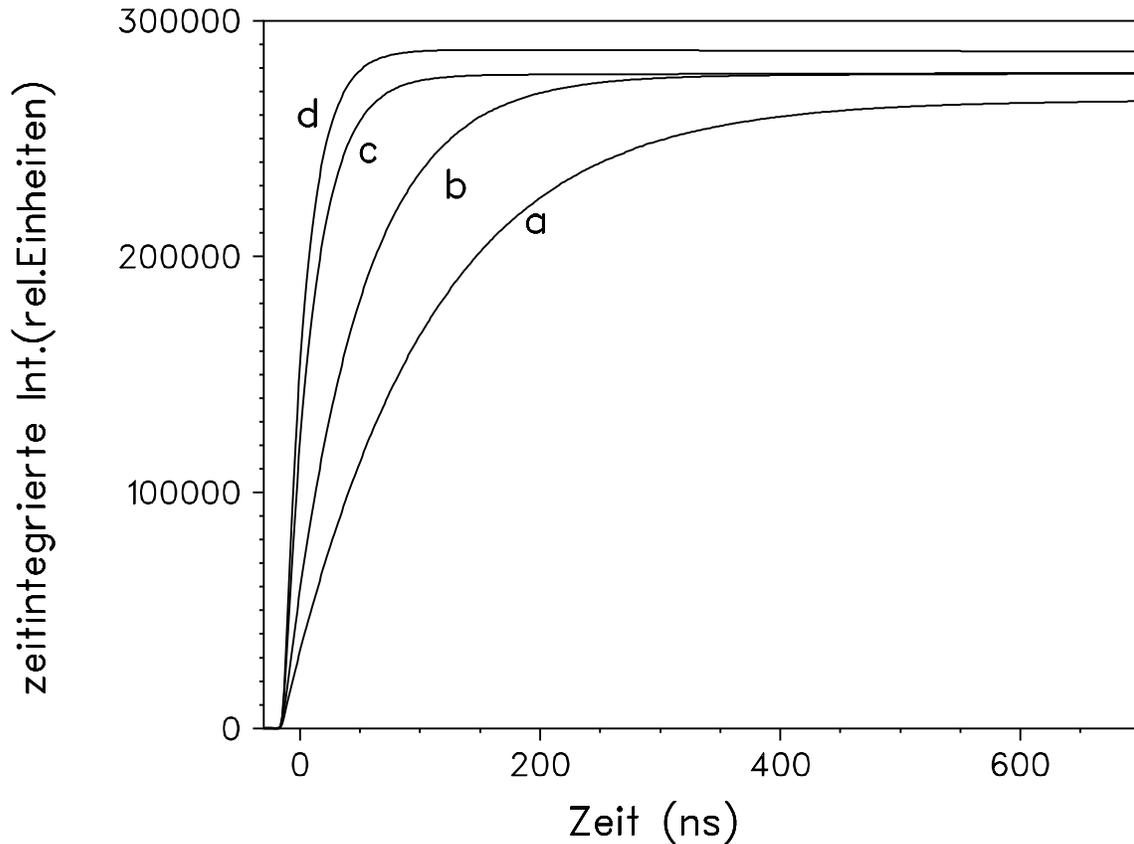


Abbildung 5.11: *Zeitintegrierte Emission bei $\lambda = 349.1 \pm 0.1$ nm für unterschiedliche Cäsiumkonzentrationen in einem $1.7 \cdot 10^{18} \frac{1}{\text{cm}^3}$ Argontarget. Die Cäsiumdichten sind dabei im Fall a: $3.6 \cdot 10^{15} \frac{1}{\text{cm}^3}$, b: $9.2 \cdot 10^{15} \frac{1}{\text{cm}^3}$, c: $2.3 \cdot 10^{16} \frac{1}{\text{cm}^3}$ und d: $4.2 \cdot 10^{16} \frac{1}{\text{cm}^3}$.*

Aus deren Steigung kann man die Ratenkonstante der Ladungstransferreaktion direkt ablesen. Sie wurde in diesem Experiment zu

$$k_T = (1.4 \pm 0.2) \cdot 10^{-9} \frac{\text{cm}^3}{\text{s}} \quad (5.3)$$

im Temperaturbereich von etwa 200 bis 300 °C bestimmt. Diese Zahl ist in guter Übereinstimmung sowohl mit den Ratenkonstanten für den nichtresonanten Ladungstransfer zwischen mehrfach geladenen Argonionen und Argonatomen bei niederen Stoßenergien [50], als auch mit der Vorhersage aus dem Modell (siehe Abschnitt 2.1). Der Achsenabschnitt der Geraden in Abbildung 5.12 ist ein Maß für die Summe der Raten aller, von der Cäsiumkonzentration unabhängigen Konkurrenzprozesse und wird bei den gewählten Versuchsbedingungen im wesentlichen durch die später noch genauer untersuchte Excimerbildungskinetik bestimmt.

In Abbildung 5.12 hat man den Eindruck, daß eine Gerade nicht optimal zu den experimentellen Datenpunkten paßt, sondern daß diese für höhere Cäsiumkonzentrationen besser durch eine flacher werdende Kurve wiedergegeben werden könnten.

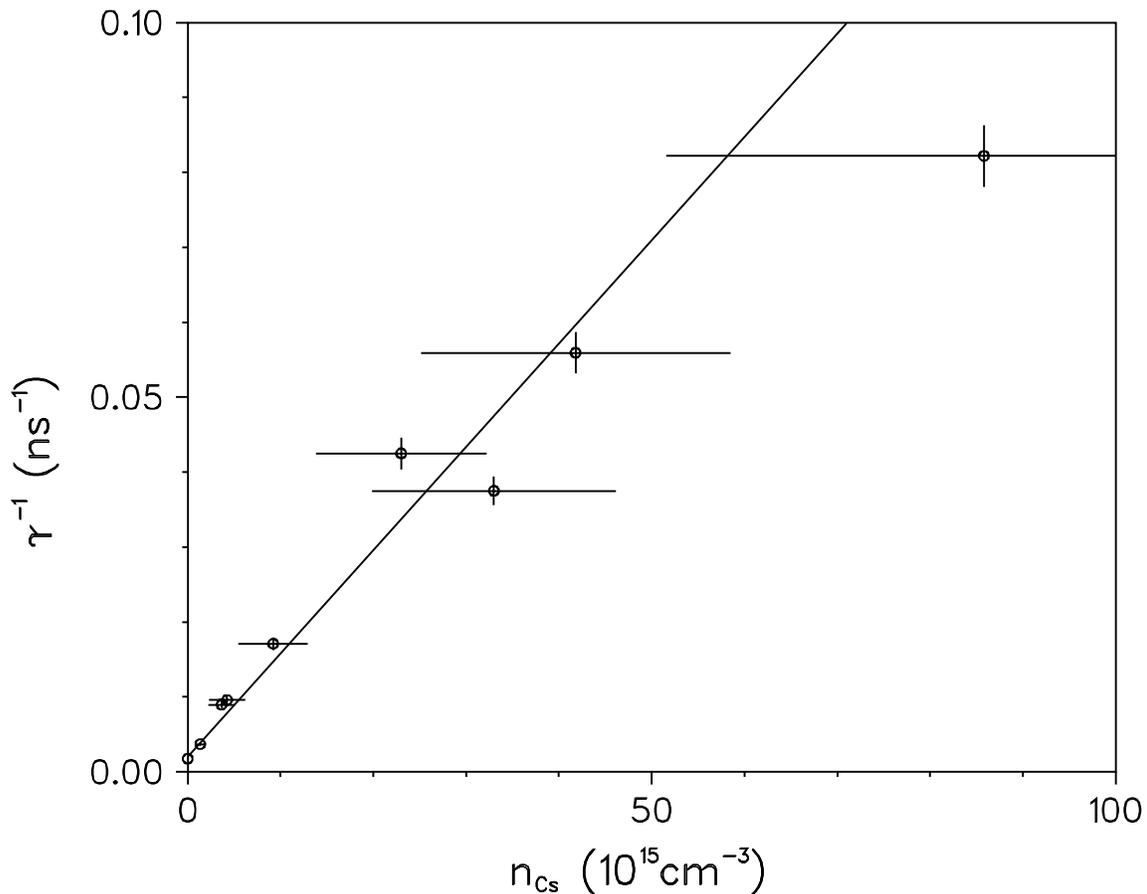


Abbildung 5.12: Der Kehrwert der Lebensdauer auf der Linie 349.15nm ist hier zur Bestimmung der Ratenkonstante über der Cäsiumkonzentration aufgetragen. Die großen Unsicherheiten in den Meßpunkten ergeben sich aus der großen Steigung der Dampfdruckkurve von Cäsium und einer Meßgenauigkeit in der Temperatur von $\pm 10^0\text{C}$.

Neben einer statistischen Schwankung könnte eine mögliche Erklärung auch eine Temperaturabhängigkeit der Ratenkonstante sein, die aufgrund der Methodik des Experiments nicht extrahiert werden konnte.

Die relativ groß erscheinenden Fehlerbalken in Abbildung 5.12 entstanden aus der Steilheit der Dampfdruckkurve von Cäsium (siehe Abbildung 2.4) und einem Temperaturgradienten von $\pm 10^0\text{C}$ innerhalb der Anordnung.

5.2.4 Experimentelle Bestätigung der Ratenkonstante zur Bildungskinetik des zweifach geladenen Argonmolekülions als Konkurrenzprozeß zum Ladungstransfer

Die Ratenkonstante für die Bildung des Ar_2^{2+} Moleküls wurde auf ähnliche Weise bestimmt wie die für den Ladungstransfer. Da die Molekülbildung der einzige, bei den gegebenen Targetparametern vergleichbar starke, Konkurrenzprozeß zum La-

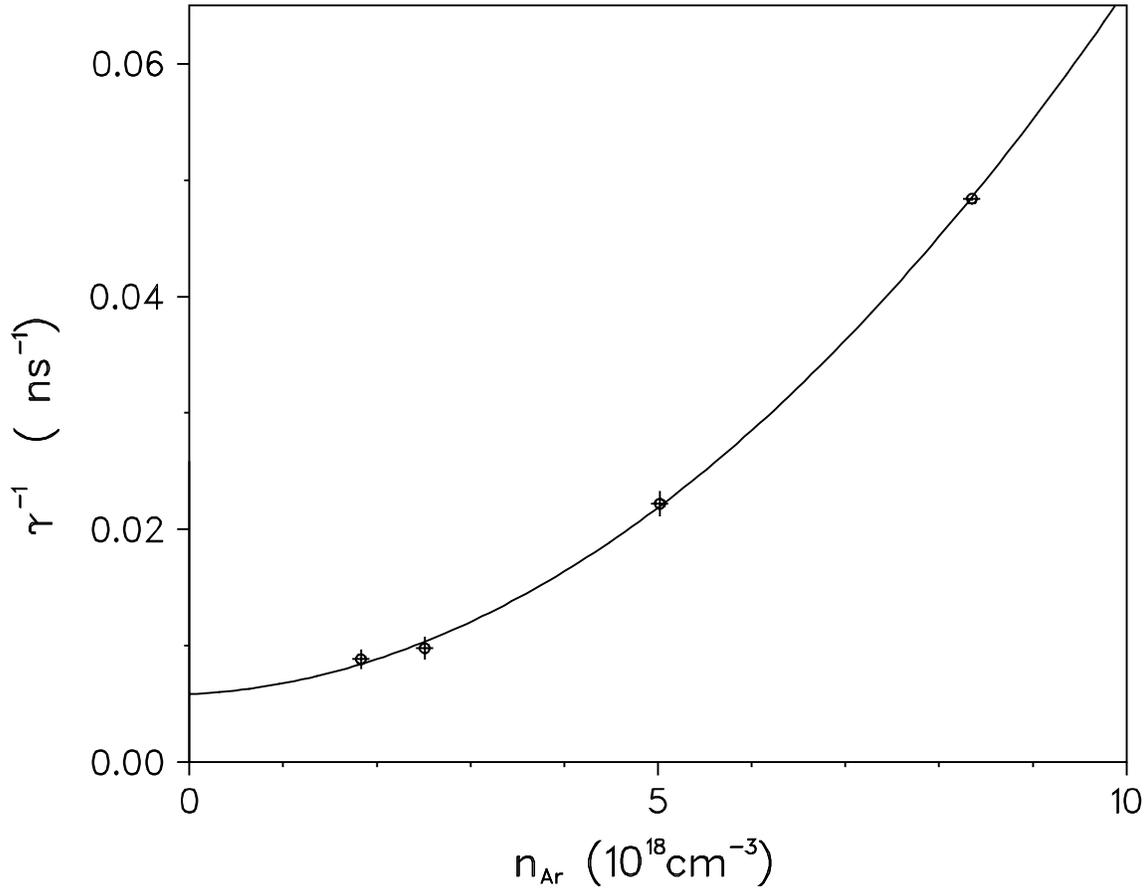


Abbildung 5.13: Die Ergebnisse aus den Zeitspektren auf der Linie 349.15nm sind hier zur Bestimmung der Ratenkonstanten, der argondruckabhängigen Konkurrenzprozesse über der Argonkonzentration aufgetragen. Die Unsicherheiten in den Meßpunkten ergeben sich aus einer Meßungenauigkeit im Druck von $\pm 5 \text{hPa}$ und einer Fehlergrenze von $\pm 10\%$ beim Anpassen der Exponentialfunktionen an die Zeitspektren. Die durchgezogene Linie zeigt eine Parabel die an die Datenpunkte angepaßt wurde.

dungstransfer ist, der durch einen Dreiteilchenstoß induziert wird, läßt er sich auf einfache Art isoliert untersuchen. Dazu wurde bei konstanter Temperatur, d.h. konstanter Cäsiumdichte (von $3.5 \cdot 10^{15} \frac{1}{\text{cm}^3}$), der Argondruck im Experimentiervolumen variiert. Hierbei wurden wiederum Zeitspektren auf der Linie bei 349.15nm aufgezeichnet. Auch in diesem Fall konnten wieder nahezu fehlerlos Exponentialfunktionen an die erhaltenen Kurven angepaßt werden.

Die Bildungskinetik der in Abschnitt 2.5 beschriebenen, argondruckabhängigen Konkurrenzprozesse genügt analog zu den dort gemachten Überlegungen der Differentialgleichung

$$\frac{d[\text{Ar}^{2+}]}{dt} = -k_{ex}[\text{Ar}^{2+}][\text{Ar}]^2 - k_{Ar}[\text{Ar}^{2+}][\text{Ar}] - k_{tr}[\text{Cs}][\text{Ar}^{2+}]. \quad (5.4)$$

Der erste Term berücksichtigt die Bildung der Molekülionen, der zweite den Ladungstransfer zwischen den Argonionen und Argonatomen und der letzte die Abbaurrate der Ar^{2+} durch den Ladungstransfer mit den Cäsiumatomen. Damit ist die beim Ladungstransfer beobachtbare Intensität ähnlich wie in Gleichung 2.23 durch

$$I(t) \sim I_0 \cdot \exp(-(k_{ex}[Ar]^2 + k_{Ar}[Ar] + k_{tr}[Cs])t) \quad (5.5)$$

gegeben. Trägt man nun die Argumente der, an die experimentell gefundenen Daten angepaßten Exponentialfunktionen über der Argondichte wie in Abbildung 5.13, auf, so sollten diese auf einer Parabel liegen, die der Gleichung

$$\frac{1}{\tau} = k_{ex}[Ar]^2 + k_{Ar}[Ar] + k_{tr}[Cs] \quad (5.6)$$

folgt. Durch anpassen einer solchen Parabel an die Datenpunkte erhält man deren Koeffizienten, also die Ratenkonstanten der einzelnen Prozesse.

- Für die Bildung der Ar_2^{2+} wurde ein Wert von $k_{ex} = (5.7 \pm 0.8) \cdot 10^{-31} \frac{cm^6}{s}$ bestimmt. Dieser gilt für eine Gastemperatur von 210^0C und ist in guter Übereinstimmung mit Daten, die von W. Krötz gemessen wurden [35]. Da es sich beim vorliegenden Experiment um ein völlig unabhängiges, indirektes Verfahren zur Bestimmung der Bildungskinetik der zweifach geladenen Argonmolekülionen handelt, ist es ein weiteres Indiz für den, von H. Langhoff [51] postulierten Zusammenhang zwischen dem dritten Excimerkontinuum und den zweifach geladenen Ionen im Argon.
- Für k_{Ar} ergab die Rechnung einen Wert von $3.5 \cdot 10^{-13} \frac{cm^3}{s}$ der zwar sehr gut mit den in der Literatur beschriebenen Werten übereinstimmt [37], aber in diesem Fall nur wenig Aussagekraft hat, da er aufgrund der geringen Zahl der Datenpunkte mit einem großen Fehler behaftet ist.
- Nicht zuletzt bestätigt der Achsenabschnitt der Parabel den in der vorliegenden Arbeit gefundenen Ladungstransfer. Für das Produkt $k_{tr}[Cs]$ lieferte die Rechnung einen Wert von $5.9 \cdot 10^6 \frac{1}{s}$ der zusammen mit der Cäsiumdichte von $3.5 \cdot 10^{15} \frac{1}{cm^3}$ eine Ratenkonstante von $(1.7 \pm 0.5) \cdot 10^{-9} \frac{cm^3}{s}$ dieses Ladungstransfers ergibt.

Damit sind auch diese Daten allesamt in sehr guter Übereinstimmung mit den vorhergesagten Ergebnissen.

Kapitel 6

Ausblicke

6.1 Grundlagen der Laserphysik

Um Lasertätigkeit zu erreichen, muß die optische Verstärkung bei einem Durchgang von Licht durch ein Lasermedium immer größer als die auftretenden Verluste sein. Verluste treten beispielsweise durch Absorption im Lasermedium und die endliche Güte des verwendeten Resonators auf. Die Verstärkung V ist mit:

$$V = \exp \left(\sigma(\lambda) \cdot \left[n_2 - \frac{g_2}{g_1} \cdot n_1 \right] \cdot L \right) \quad (6.1)$$

oder

$$V = \exp(g(\lambda) \cdot L) \quad (6.2)$$

gegeben [52]. Die Größen n_1 bzw. n_2 bezeichnen die Besetzungsdichten der unteren bzw. oberen Niveaus, g_1 und g_2 das statistische Gewicht des oberen und unteren Laserniveaus. L ist die Länge des aktiven Mediums. $g(\lambda)$ wird als Kleinsignalverstärkung bezeichnet und ist die charakteristische Größe eines Lasermediums. Der Wirkungsquerschnitt $\sigma(\lambda)$ für stimulierte Emission kann durch die Gleichung:

$$\sigma(\lambda) = \frac{\lambda^3}{8\pi c} \cdot A_{ik} \cdot \frac{\lambda}{\Delta\lambda} \quad (6.3)$$

berechnet werden, wobei der Einsteinkoeffizient A_{ik} die Übergangsrate des Niveaus i in das Niveau k bezeichnet. Bei diesen Übergängen wird Licht der Wellenlänge λ mit der Linienbreite $\Delta\lambda$ emittiert.

6.2 Nutzung des Ar^{2+} -Cs Ladungstransfers in einem Laser.

Für die Anwendung des gefundenen Transfermechanismus in einem Laser wird man zunächst die stärkste der gefundenen Linien nutzen. Diese ArII Linie bei 349.15nm ist bisher in der Literatur nicht als Laserlinie bekannt und liegt im ultravioletten Wellenlängenbereich. Neu ist außerdem, daß es sich um ein außergewöhnliches Pumpschema für kurzwellige Laser handelt. In Abbildung 6.1 ist nochmals ein schematischer Überblick des Reaktionsmechanismus und seiner Folgeprozesse gegeben.

Grundsätzlich besitzt der ins Auge gefaßte Ladungstransferlaser den Vorzug, daß die natürliche Lebensdauer der verwendeten ArII 4d - 4p Linie mit 0.33ns [41] sehr kurz ist, was zu einem großen Wirkungsquerschnitt für stimulierte Emission führt. Außerdem geht die Linienbreite in Gleichung 6.3 ein. Über den Wert von $\frac{\lambda}{\Delta\lambda}$, der

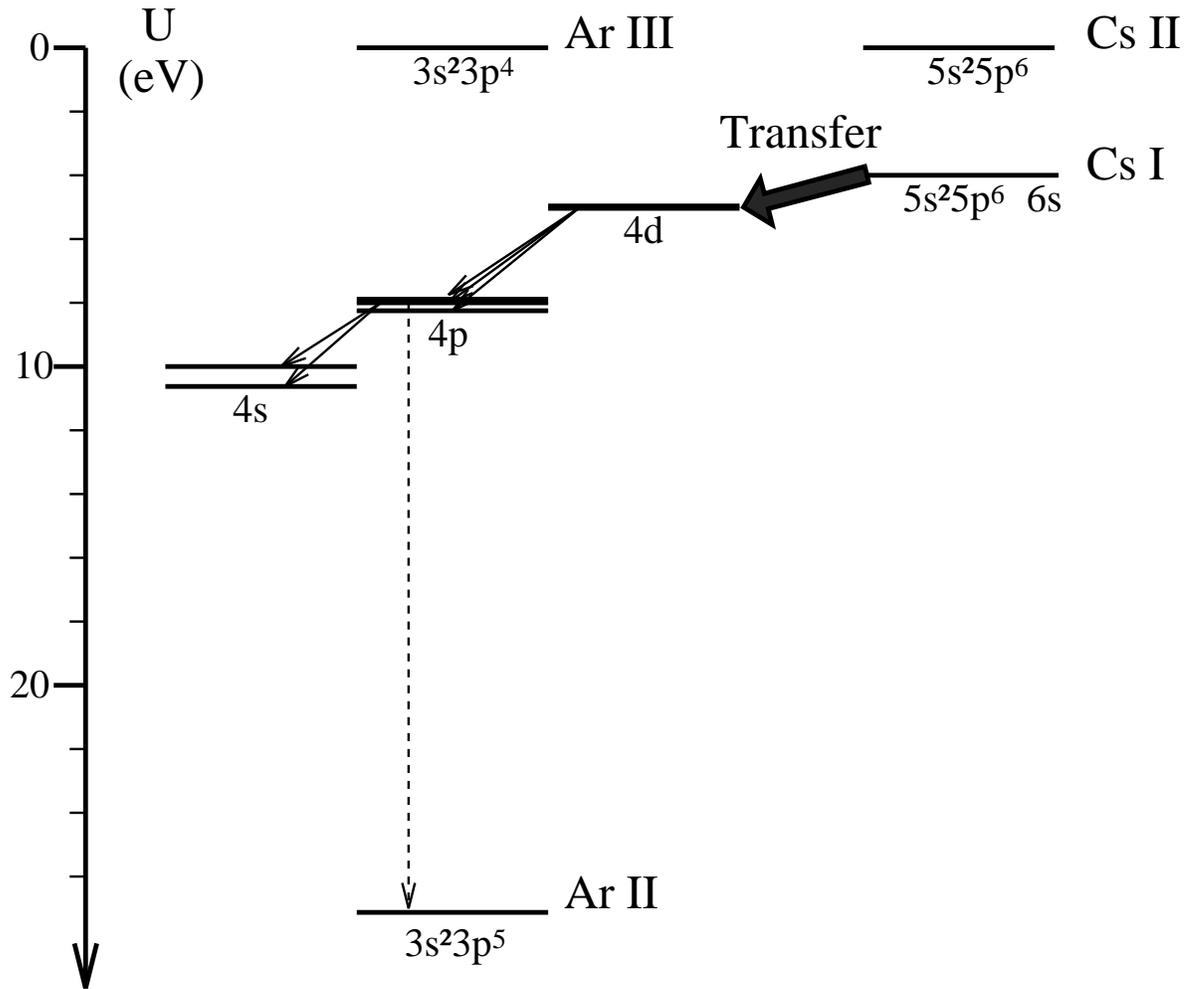


Abbildung 6.1: Niveauschema der gefundenen Transferreaktion und ihrer Folgeprozesse im Überblick. Die Verzweungsverhältnisse für die beiden Entvölkerungsmechanismen des unteren $4p$ Laserniveaus werden im Text diskutiert.

in solchen Fällen meist in der Dopplerverbreiterung begründet ist, kann nur schwer eine Aussage gemacht werden. Die Ionen erhalten durch den Schwerionenstoß kaum Rückstoßenergie [26], hätten also zum Zeitpunkt des Ladungstransferes thermische Energien von etwa 40 meV. Beim Ladungstransfer selbst tritt aber eine Energiedifferenz zwischen E_{A0} und J_B von etwa einem Elektronenvolt auf, über deren Wirkung bisher nur Vermutungen angestellt werden konnten. Anhand von Abbildung 2.1 kann man sich veranschaulichen, daß es sehr wahrscheinlich ist, einen Großteil von diesem Energiebetrag als Rückstoßenergie der Transferpartner wiederzufinden. Es kann aber keine Aussage darüber gemacht werden, ob dieser Energiebeitrag in der Dopplerverbreiterung der Linie wiederzufinden wäre oder ob die Ionen vor der Emission wieder thermalisiert werden. Im schlechtesten Fall würden die Argonionen eine kinetische Energie von 0.6 eV besitzen die zu einem $\frac{\lambda}{\Delta\lambda}$ von ca. $3 \cdot 10^5$ führen würde. Für die folgenden Abschätzungen wollen wir aber, aufgrund der hohen Stoßraten im

Target, von der positiveren Vermutung thermalisierter Rückstoßionen ausgehend, mit einem $\frac{\lambda}{\Delta\lambda}$ von 10^6 rechnen. Dieser Wert ist um etwa eine Größenordnung günstiger als z.B. bei einer Anregung durch eine Bogenentladung. Damit erhält man bei diesem Laser einen Wirkungsquerschnitt für stimulierte Emission von ca. 10^{-11} cm^2 .

Ein entscheidender Vorteil, der diesen Laser erst möglich macht, besteht darin, daß das untere Niveau des betrachteten Überganges im dargestellten Experiment nur sehr schwach besetzt ist. Dies stützt sich auf die in den Abbildungen 5.1 und 5.2 gezeigten Wellenlängenspektren. In beiden Bildern ist der starke $4p \ ^4P_{\frac{5}{2}}^0 - 3d \ ^4D_{\frac{7}{2}}$ Übergang mit einem A_{ik} von $3.2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$, der das untere Laserniveau entvölkern würde, praktisch nicht erkennbar. Eine ähnliche Beobachtung konnte auch bei einer gesonderten Untersuchung des $4p \ ^4P_{\frac{5}{2}}^0 - 4s \ ^4P_{\frac{5}{2}}$ Überganges bei 480.6nm gemacht werden, der ein A_{ik} von $7.9 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ besitzt. Die bei dieser Wellenlänge aufgezeichneten Zeitspektren zeigen grundsätzlich dieselbe Zeitstruktur wie die der Transferlinien, aber auch hier liegen die gemessenen Intensitäten um fast zwei Größenordnungen niedriger als bei der betrachteten Laserlinie. Der Quotient aus der gemessenen Linienintensität und dem Einsteinkoeffizienten ist aber ein direktes Maß für die Besetzungsdichten der angeregten Niveaus. Man kann daher annehmen, daß es für das $4p \ ^4P_{\frac{5}{2}}^0$ Niveau des Argonions einen ähnlich starken Mechanismus der Stoßabregung gibt, wie er von den $4p \ ^2P_j^0$ Niveaus des Argonions her bekannt ist [27].

6.2.1 Abschätzung der optischen Verstärkung für die in diesem Experiment verwendeten Strahl- und Targetparameter

In Abschnitt 2.2 hat man gesehen, daß bei den verwendeten Strahlparametern pro Strahlpuls ca. $n_{ion} = 10^{10} \frac{1}{\text{cm}^3} \text{ Ar}^{2+}$ Ionen erzeugt werden. Um eine komplette Kinetikrechnung zu vermeiden, kann für Zeiten die kurz gegenüber der Zeitkonstanten des Ladungstransfers, aber lang verglichen mit der Dauer des Anregungspulses sind, die Dichte der Ar^{2+} Ionen als konstant angenommen werden. Im Gleichgewicht gilt damit für die Besetzungsdichte n_{oben} im oberen Niveau des Laserüberganges:

$$k_{tr} \cdot n_{ion} \cdot n_{Cs} \cdot \eta = \gamma^{-1} \cdot A_{ik} \cdot n_{oben} \quad (6.4)$$

Dabei bezeichnet n_{Cs} die Dichte der Cäsiumatome im Target, k_{tr} die Ratenkonstante des Ladungstransfers und η das Verzweigungsverhältnis in die einzelnen Niveaus, die vom Transfer bevölkert werden. Die Größe γ berücksichtigt in dieser Gleichung das Verzweigungsverhältnis für strahlende und nichtstrahlende Abregung des $4d^4 D_{\frac{7}{2}}$ Niveaus und beträgt typischerweise nach der Gleichung

$$\gamma = \frac{A_{ik} + k_q}{A_{ik}} \quad (6.5)$$

etwa 0.5 [27]. k_q ist dabei die Ratenkonstante für nichtstrahlende Abregung.

Die Werte sind im einzelnen:

n_{ion}	$=$	$10^{10} \frac{1}{cm^3}$	(siehe Absch.2.2)
k_{tr}	$=$	$1.4 \cdot 10^{-9} \frac{cm^3}{s}$	(siehe Absch.5.2)
n_{Cs}	$=$	$10^{16} \frac{1}{cm^3}$	(siehe Absch.2.4)
η	$=$	0.3	(siehe Absch.5.1.3)
γ	$=$	0.5	(siehe auch Absch.5.1.3)

Daraus berechnet sich ein n_{oben} von $7 \cdot 10^7 \frac{1}{cm^3}$. Bei dieser Cäsiumkonzentration hat die Entvölkerung des Ar^{2+} Grundzustandes durch Ladungstransfer eine Zeitkonstante von ca. 100ns. Diese müßte ausreichen, um einen kurzen Resonator anschwingen zu lassen. Davon ausgehend, daß sich im unteren 4p Niveau des Lasers praktisch keine Besetzung aufbaut, ergibt sich aus den Formeln 6.1 und 6.3 eine Verstärkung von $7 \cdot 10^{-4}$ pro cm. Bei einer, in solchen Experimenten [46] erreichbaren Verstärkungslänge von 20cm erhält man damit eine Verstärkung von 1.4% pro Durchgang. Die Verluste guter Resonatoren hingegen sind bei solchen Wellenlängen im Promillebereich, so daß sich möglicherweise mit diesen noch nicht optimierten Versuchsparametern bereits ein Laser realisieren ließe. Problematisch ist dabei die bei dieser Verstärkung kurze Zeit, die dem Resonator zum Anschwingen zur Verfügung steht. Für 100 Umläufe in einem sehr kurzen 20cm Resonator benötigt das Licht eine Zeit von 66ns. Bei der berechneten Verstärkung von 1.4% erreicht man dann eine Gesamtverstärkung um einen Faktor 10.

6.2.2 Optimierte Betriebsbedingungen

Nun gilt es, sowohl die Strahlparameter als auch das Target im Rahmen der technischen Möglichkeiten auf das Laserexperiment zu optimieren.

6.2.2.1 Verbesserung der Strahlparameter zur Anregung

Die Besetzungsdichte des oberen Laserniveaus ist der wichtigste Parameter für die Verstärkung im Target. In diesem $4d^4D_{7/2}$ Niveau will man möglichst viele Argonionen aufsammeln. Durch dessen kurze Lebensdauer und die in jedem Fall wesentlich größeren Zeitkonstanten der stoßinduzierten Transferreaktion ist eine direkte Akkumulation nicht möglich. Man kann aber versuchen die Vorläuferspezies, also die Ar^{2+} Grundzustandsionen, im aktiven Volumen anzuhäufen. In Abschnitt 5.3 hat man gesehen, daß die Zeitkonstante des Ladungstrfers bei einer Cäsiumdichte von $10^{16} cm^{-3}$ bei ca. 100 ns liegt. Es kann also versucht werden, mit Hilfe eines längeren oder mit mehreren, dicht aufeinanderfolgenden Strahlpulsen eine größere Zahl von Ar^{2+} Teilchen im $3s^23p^4 \ ^2P_{3/2}$ Niveau anzuhäufen bzw. im Falle höherer Cäsiumkonzentrationen während der Anschwingzeit des Resonators nachzuliefern.

Die folgenden Überlegungen sollen in diesem Abschnitt auf die Möglichkeiten, die am Münchner Tandem-van-de-Graaff Beschleuniger zur Verfügung stehen, begrenzt bleiben. Die Energie, die durch den Strahl ins Targetvolumen eingebracht werden kann, ist vor allem durch die Ionenquellen am Tandembeschleuniger begrenzt. Durch erhebliche Verbesserungen der verwendeten Sputterionenquellen in jüngster Zeit [53] sind Schwerionenströme von etwa $100\mu A$ (elektrisch) verfügbar. Am zweckmäßigsten erscheint es, etwa $3\mu s$ lange Strahlpulse mit dem Maximalstrom

ins Target zu schicken. Dabei muß ein kleines Puls zu Pause Verhältnis von etwa 1 zu 1000 eingehalten werden, um die Stripperfolien im Tandembeschleuniger und auch die Strahleintrittsfolie am Experiment nicht zu stark thermisch zu belasten. Mit den Wirkungsquerschnitten aus Abschnitt 2.2 und einer typischen Argondichte von $2 \cdot 10^{18} \frac{1}{\text{cm}^3}$ berechnet man daraus während des Pulses eine Produktionsrate der Ar^{2+} Ionen von $2 \cdot 10^{17} \frac{1}{\text{cm}^3 \text{s}}$. Im Gleichgewicht, das sich nach der typischen Transferzeitkonstanten einstellt, die durch die Cäsiumkonzentration so gesteuert werden kann, daß die auftretenden Konkurrenzprozesse vernachlässigbar werden, sind Transferrate und Produktionsrate näherungsweise identisch. Dies in Gleichung 6.4 eingesetzt,

$$2 \cdot 10^{17} \frac{1}{\text{cm}^3 \text{s}} \cdot \eta = \gamma^{-1} \cdot A_{ik} \cdot n_{oben} \quad (6.6)$$

ergibt eine Besetzungsdichte des oberen Laserniveaus von $n_{oben} = 10^8 \frac{1}{\text{cm}^3}$. Daraus wird mit Gleichung 6.1 bei einer Länge des aktiven Mediums von wiederum 20cm eine Verstärkung von 2% berechnet. Diese ist aber jetzt für den gesamten Zeitbereich von $3\mu\text{s}$ verfügbar. Der Resonator hat also ausreichend Zeit zum Anschwingen, so daß optische Verstärkungen bis zur Sättigung in einem 'quasi Dauerstrichbetrieb' möglich werden.

6.2.2.2 Das optimale Lasertarget

Bei der Optimierung des Targets hat man vor allem zwei Dinge zu bedenken.

- Der wichtigste Konkurrenzprozeß, die Bildung der Ar_2^+ Moleküle in Dreierstößen muß unterdrückt werden. Da der Ladungstransfer ein Zweierstoßprozeß ist, gelingt dies durch Wahl eines möglichst niedrigen Targetdruckes. Bei einem Argondruck von 100hPa und einer Temperatur von 250°C , d.h. einer Cäsiumdichte von ca. $10^{16} \frac{1}{\text{cm}^3}$, sind die Raten für den Ladungstransfer und die Bildung der zweifach geladenen Argonmoleküle vergleichbar. Bei höheren Temperaturen dominiert der Ladungstransferprozeß.

Da der Strahl im Lasermedium gestoppt werden soll, liegt damit bereits die Mindestlänge des Resonators mit ca. 80cm fest.

- Da der Schwerionenstrahl seine Energie an die Argonionen und nicht an den Cäsiumdampf abgeben soll, letzterer aber eine ungefähr doppelt so hohe 'Stoppingpower' als Argon besitzt, sollte das Mischungsverhältnis von $[\text{Ar}]:[\text{Cs}]$ den Betrag von 50:1 nicht unterschreiten. Durch den Cäsiumdampfdruck (siehe Abbildung 2.4) ist folglich auch die maximale Betriebstemperatur auf etwa 300°C festgelegt.

6.2.2.3 Erste Designvorschläge

Die Verluste an den Spiegeln bzw. bei der Auskopplung machen in einem Laserresonator den wesentlichsten Anteil der Dämpfung aus. Resonatoren mit Verlusten von etwa 0.2% sind Stand der Technik und noch gut für das gefundene Lasermedium geeignet.

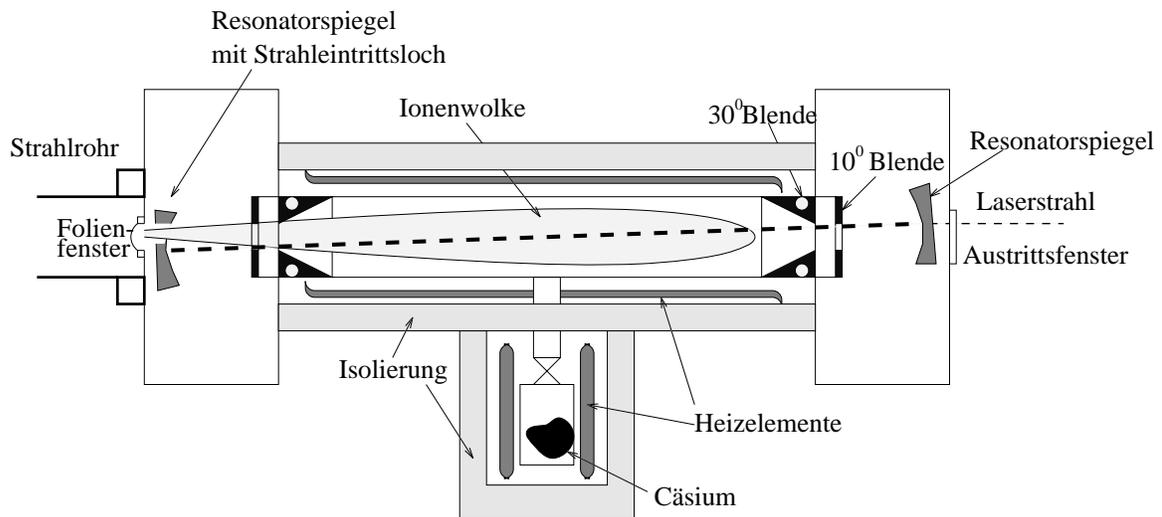


Abbildung 6.2: Schematische Darstellung des vorgeschlagenen Laseraufbaus. In der vom Schwerionenstrahl erzeugten Ionenwolke um die Strahlachse kann die 349.15nm Linie verstärkt werden.

Um nun den schwerionenstrahlgepumpten Argon - Cäsium - Ladungstransferlaser zu verwirklichen, könnte man sich beispielsweise einen Aufbau, wie er in Abbildung 6.2 skizziert ist, vorstellen. Dargestellt ist eine Art 'heatpipe' Struktur.

Dabei tritt der Schwerionenstrahl, nachdem er das Folienfenster passiert hat, durch eine Bohrung im linken Resonatorspiegel in das Laserrohr ein. Der aktive Bereich in dem sich das Lasermedium, also die Mischung aus Argon und Cäsium befindet, kommt zwischen den beiden Resonatorspiegeln zu liegen. Dieser Bereich wird einschließlich eines Cäsiumreservoirs auf eine Temperatur gebracht, die den gewünschten Cäsiumdampfdruck erlaubt.

Die Spiegel selbst werden aber durch kalte Blenden, die sich auf einer Temperatur befindet bei der das Alkalimetall bis auf einen vernachlässigbaren Restdruck auskondensiert, vor der Einwirkung des Cäsiumdampfes geschützt. Durch die Blenden wird damit das Laserrohr bezüglich des Cäsiumpartialdruckes differentiell gepumpt. Temperatur und Aufbau der Blenden müssen dabei so gestaltet werden, daß der wesentliche Teil des kondensierenden Cäsiums flüssig gehalten und in das aktive Volumen zurückgeführt wird.

Dieser Aufbau gestattet nicht, daß Laser- und Schwerionenstrahlachse zusammenfallen. Durch geschicktes Kreuzen der beiden Achsen läßt sich aber trotzdem der größte Teil der Anregung im Target ausnutzen, wobei aus Erfahrungen mit ähnlichen Anordnungen Verstärkungslängen von 20 bis 40cm erreicht werden [54].

6.3 Weiterführende Überlegungen

Anhand der Erfahrungen, die in dem, in dieser Arbeit beschriebenen Experiment gemacht wurden, könnte man sich auch vorstellen, daß noch kurzwelligere Laser auf der Basis von Ladungstransferreaktionen realisiert werden könnten. Zwei Dinge müssen dabei im wesentlichen bedacht werden.

6.3.1 Verwendung höherer Ladungszustände

Generell wird Linienemission mit wesentlich kürzeren Wellenlängen als 300nm, die nicht durch Grundzustandsübergänge erzeugt wird, nur bei höher geladenen Ionen beobachtet. Bei einem Lasermedium für sehr kurze Wellenlängen muß es also gelingen große Dichten noch höherer Ladungszustände im Target zu erreichen. Auch zur Produktion hochgeladener Ionen mit einer Ladung $q^+ \geq 3$ ist der Schwerionenstrahl gut geeignet [55]. Es müssen Projektile verwendet werden, die auch für solche Reaktionen ausreichend hohe Ionisationswirkungsquerschnitte besitzen. Da diese bei kinetischen Energien im $\frac{MeV}{u}$ Bereich hauptsächlich von der Projektilladung abhängen, muß man Schwerionen mit ebenfalls höheren Ladungszuständen verwenden. Dazu sind aber andererseits auch wieder größere Teilchenenergien erforderlich, was wiederum auch höhere Anforderungen an die Beschleuniger stellt. Die Beschleuniger bei der GSI in Darmstadt können solch hochgeladene Projektile in einem weitem Energiebereich zur Verfügung stellen.

6.3.2 Vermeidung von Reabsorbtion im Target

Die Reabsorbtion der Photonen im Target stellt ein generelles Problem bei der Erzeugung von kurzweiliger Linienstrahlung durch Ladungstransfer dar. Auf der einen Seite will man einen Elektronendonator der eine niedrige Ionisierungsenergie besitzt, um möglichst hochangeregte Zustände der Ionen besetzen zu können, auf der anderen Seite liegen bei solchen Elementen die Kanten für optische Absorbtion schon bei relativ großen Wellenlängen.

Die meisten Elemente zeigen aber oberhalb ihrer Absorbtionskanten nochmals einen Abfall im Wirkungsquerschnitt für optische Absorbtion. Dieses Verhalten geht bei einigen sogar so weit, daß sie in bestimmten Wellenlängenbändern, den sogenannten Fenstern, mit Photonenenergien weit oberhalb der Ionisierungsenergien dieser Atome, nahezu transparent sind. Bei Cäsium ist dieses Verhalten leider nicht sehr ausgeprägt. Für Anwendungen bei Wellenlängen unter 318nm ist dieses Element damit nicht geeignet. Die leichteren Alkalimetalle wie beispielsweise Natrium sind hier wesentlich günstiger. Natrium ist um die Wellenlänge 190nm quasi transparent und hat auch unterhalb von etwa 20nm nur noch einen relativ kleinen Wirkungsquerschnitt für optische Absorbtion [56][57].

Zusammenfassen kann man, mit allen in diesem Kapitel gewonnen Informationen, sagen, daß der Ladungstransfer zwischen Argon und Cäsium möglicherweise schon bald in einem schwerionenstrahgepumpten Laser zur Anwendung kommen kann, und daß nichtresonanter, selektiver Ladungstransfer bei der Entwicklung noch

kurzwelligerer Laser einen vielversprechenden Ansatz darstellt, den es sich lohnt noch weiter und genauer zu untersuchen.

7

Anhang: Untersuchung der Emissionen aus festen Argon–Cäsium–Mischungen – ein Vorexperiment

Um erste Hinweise auf die Wechselwirkungen zwischen Argonionen und Cäsiumatomen zu erhalten, wurde untersucht, inwieweit eine Beimengung von Cäsium die Lichtemission aus einem festen Argontarget bei Schwerionenstrahlanregung beeinflußt. Dieses Experiment wurde vorab durchgeführt, da zum einen der im folgenden beschriebene Aufbau eine relativ einfache Handhabung des reaktiven Alkalimetalles erlaubt und zum anderen bereits Erfahrungen mit einer ähnlichen Apparatur zur Untersuchung der Emissionen aus reinen Edelgaskristallen gemacht worden waren [52]. Für dieses Vorexperiment bestand das Target aus Argon-Cäsium-Gemischen, die auf einem Kühlfinger aufgefroren wurden. Als praktikabelste Möglichkeit homogen gemischte Schichten zu erzeugen wurde ein Aufbau gewählt, bei dem über einen konstanten Argonhintergrunddruck eine konstante Aufdampftrate erzielt wird, und die Störatome mit Hilfe einer Atomstrahlapparatur implantiert werden.

Es entstehen so relativ feste polykristalline Schichten, deren Färbung von der Cäsiumkonzentration abhängt. Reines Argon ist in Konsistenz und Farbe vergleichbar mit Firn. Mit zunehmender Cäsiumkonzentration färbt sich das Eis zunächst hellgrün, dann blaugrün bis es schließlich bei sehr hohen Alkalimetalldichten schwarz erscheint und quasi alles sichtbare Licht schluckt. Diese Schichten wurden zum einen mit einem 11keV Elektronenstrahl, und zum anderen mit dem 95MeV Schwefelstrahl (S^{9+}) des Münchner Tandembeschleunigers kontinuierlich angeregt. Dabei wurde die Abhängigkeit der zeitintegrierten spektralen Emission von der Dichte der Cäsiumatome im Argoneis untersucht.

7.1 Aufbau der Vorexperimente

Der experimentelle Aufbau der Vorversuche befand sich in einer Vakuumzelle, die mittels einer Turbomolekularpumpe und einer Drehschiebervorpumpe auf Drücke von $10^{-6} hPa$ evakuiert werden konnte. Dieses Experimentiervolumen war durch eine $1.1 \frac{\mu g}{cm^2}$ dicke Titanfolie vom Strahlrohr des Tandembeschleunigers getrennt.

Als Substrat für die eigentlichen Targets diente eine Kupferspitze an einem von der Seite in die Zelle ragenden zweistufigen Heliumexpansionskühler. Diese Spitze war ein unter 45° abgeschrägter Zylinder der so eingebaut wurde, daß seine Deckfläche aus drei orthogonalen Raumrichtungen unter 45 Grad einsehbar wurde. Diese drei Raumrichtungen wurden für die Tandemstrahlachse, die Elektronenkanone und den Aufdampfatomstrahl benötigt. Damit konnten die Vorexperimente

(mit Tandem- und Elektronenstrahl) ohne Umbau der Apparatur durchgeführt werden.

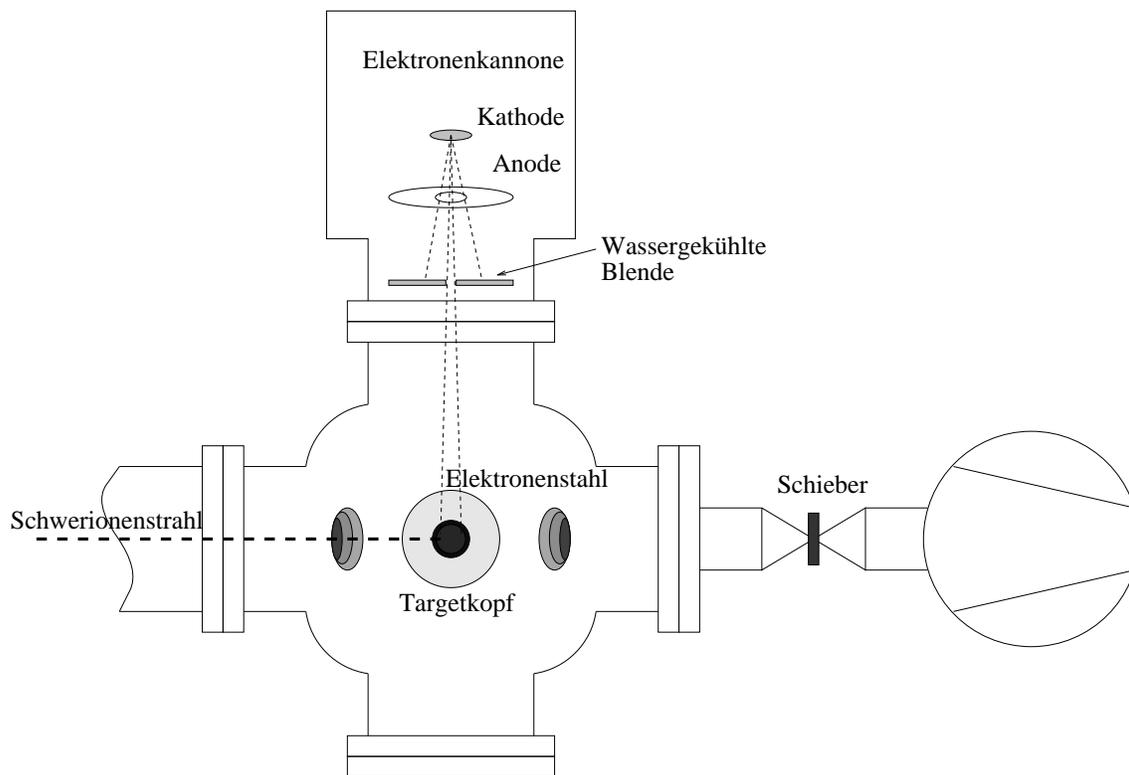


Abbildung 7.1: Schematische Darstellung der Vakuumzelle von der Seite

Die Emissionsspektren sind auch in diesem Experiment mit einem 0.3m Gittermonochromator (McPherson Modell 218) mit Lithiumfluorid (LiF) Eintrittsfenster aufgenommen worden. Die Lichtemission wurde mit einem Photomultiplier detektiert und mit einer Elektronik, die der in Kapitel 4 beschriebenen sehr ähnlich war, verarbeitet und aufgezeichnet. Da alle Messungen in diesem Fall aber mit Gleichstromanregung durchgeführt wurden, konnten nur zeitintegrierte Wellenlängenspektren aufgenommen werden. Um Intensitätsänderungen des Strahls während der Messung zu berücksichtigen, war es nötig, ein Normierungssignal zu erzeugen. Zu diesem Zweck war eine Silizium-PIN-Diode (Siemens, BPW34) eingebaut, die das vom Target emittierte Licht wellenlängenintegriert registrierte. Da die Diode im vakuumultravioletten Wellenlängenbereich (VUV) nicht sensitiv ist, wurde auf ihre Oberfläche eine dünne Schicht Natriumsalicylat aufgebracht, die das hauptsächlich emittierte VUV-Licht in sichtbares umwandelt.

7.2 Das Kryotarget

Um möglichst homogene und saubere Targetschichten auf die Kupferspitze des Kaltkopfes aufbringen zu können, mußte man diesen Vorgang möglichst langsam und

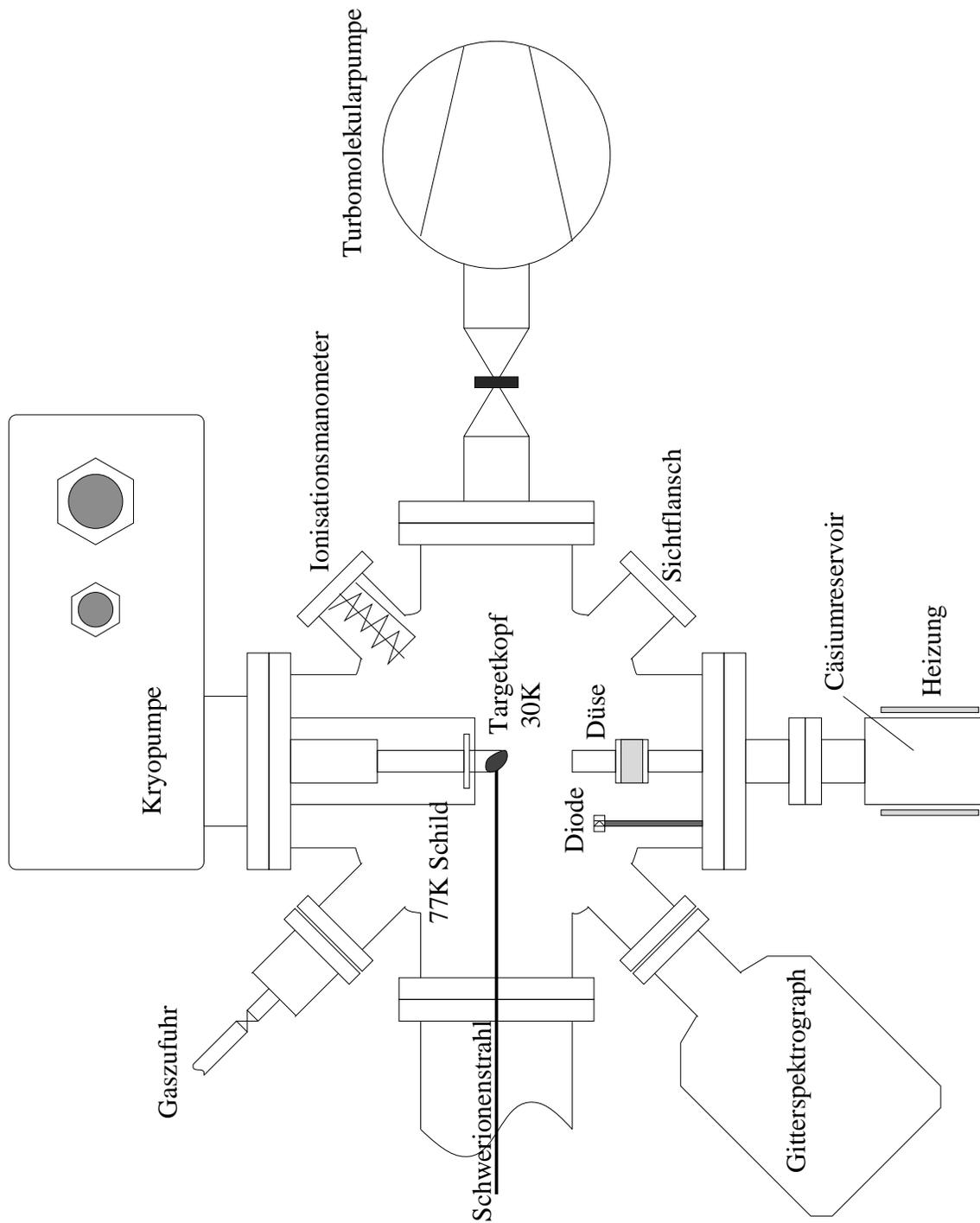


Abbildung 7.2: Schematische Darstellung der Vakuumzelle von oben.

kontrolliert ablaufen lassen. Dabei ging man folgendermaßen vor:

Zunächst erzeugte man im Experimentiervolumen ein Vakuum von $10^{-6} hPa$. Dann schaltete man den Expansionskühler ein und wartete bis dieser die Arbeitstemperatur von ca. 30 K erreicht hat. Das wurde in dieser Anordnung mittels eines Pt100 Thermofühlers geprüft. Daraufhin konnte der eigentliche Aufdampfvorgang beginnen. Bei jetzt geschlossenem Schieber zur Turbomolekularpumpe öffnete man das Nadelventil zur Gasversorgung (Argon Qualität 6.0) so weit, bis sich in der Zelle ein Hintergrundsdruck von $2 Pa$ konstant einstellte. Damit war bei konstant gehaltener Targettemperatur auch ein konstantes Aufdampfen gewährleistet. Gleichzeitig wurde das Kugelventil der Atomstrahlapparatur geöffnet, so daß diese in wohldefinierter Form gleichmäßig die Cäsiumatome unter die auffrierenden Edelgasatome mischte.

7.2.1 Atomstrahlapparatur

Die Methode, das Cäsium mittels eines Atomstrahlofens auf das Target aufzubringen hat eine Vielzahl von Vorzügen.

1. Es besteht kaum Gefahr die Vakuumzelle stärker mit Cäsium zu verschmutzen.
2. Man umgeht damit viele Probleme im Umgang mit dem sehr reaktiven und gefährlichen Alkalimetall.
3. Es können sehr homogene Cäsiumraten aufgebracht werden.
4. Die Cäsiumkonzentration kann in einem sehr weiten Bereich problemlos über die Reservoirtemperatur geregelt werden.

Da mit diesem Vorversuch qualitative Messungen gemacht werden sollten, wurde auf eine exakte Vermessung des Atomstrahles verzichtet und das Mischungsverhältnis in den Targets mit Hilfe einer Modellrechnung abgeschätzt.

7.2.2 Abschätzung der Cäsiumkonzentration in den Kryotargets

Die Aufdampftrate der Argonatome konnte auf sehr einfache Art bestimmt werden. Man führte das Gas aus einem Vorratsbehälter mit bekanntem Volumen zu, maß die Druckdifferenz nach dem Aufdampfvorgang und die Dauer desselben. Dabei konnte aus den Gasgesetzen die Zahl der aufgedampften Argonatome pro Zeiteinheit ermittelt werden. Um den Strahl sicher im Target zu stoppen, wurden Targets einer Mindestdicke von $100 \mu m$ aufgedampft, was bei unserem Vorratsvolumen einer Druckdifferenz von $150 hPa$ entsprach.

Die Rate der aufgedampften Cäsiumatome wird am einfachsten nach den grundlegenden Berechnungen für den idealen Atomstrahl [58] abgeschätzt. Die Bedingungen eines idealen Atomstrahles verlangen im wesentlichen, daß die mittlere freie Weglänge der Atome im Ofen größer als die Dimensionen der Düsenöffnung ist.

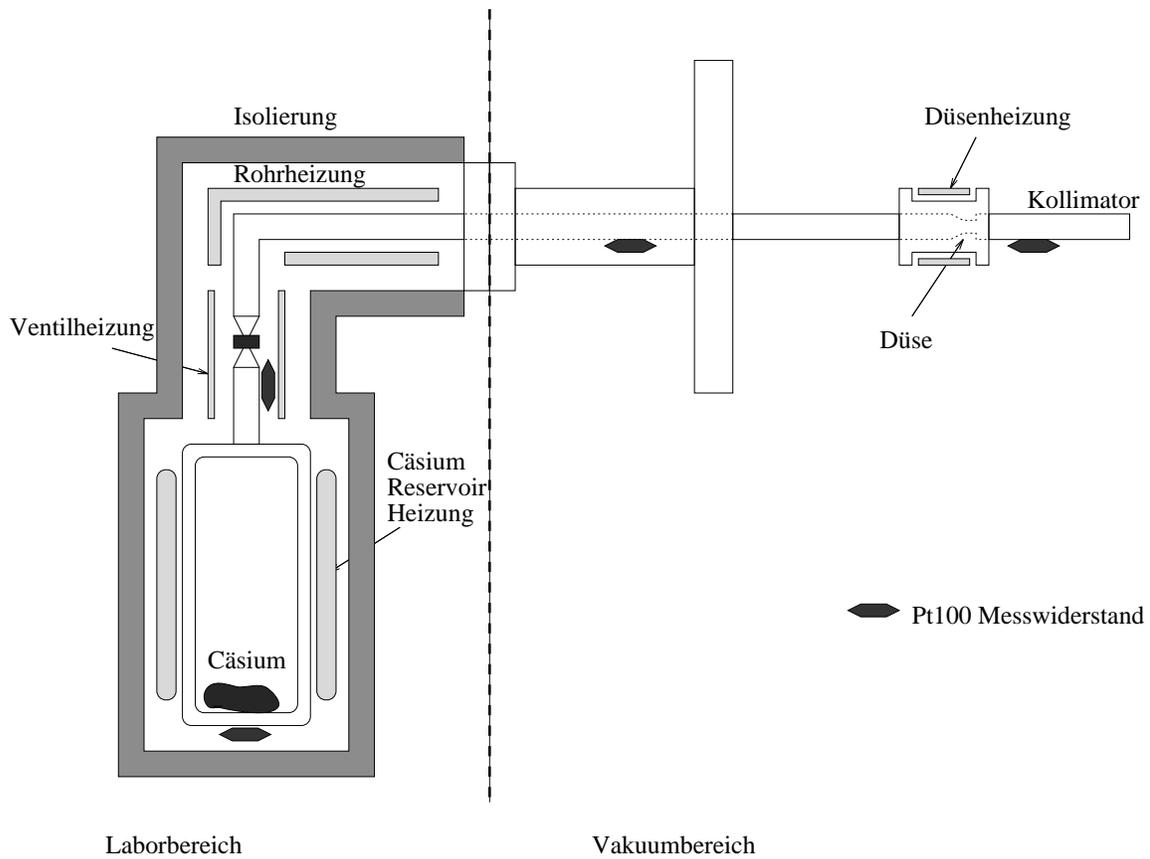


Abbildung 7.3: Schematische Darstellung der Atomstrahlapparatur.

Bei den verwendeten Dampfdrücken und einer Düsenöffnung von 2mm Durchmesser ist dies gut erfüllt, so daß sich der resultierende Gesamtteilchenstrom durch die Düsenöffnung zu

$$\frac{dN}{dt} = \frac{p \cdot A}{(2\pi k_B T)^{\frac{1}{2}}} \tag{7.1}$$

ergibt. Dort steht das Produkt aus Cäsiumdampfdruck p und Düsenquerschnittsfläche A im Zähler und die absolute Temperatur T sowie die Boltzmannkonstante k_B im Nenner. Vom Gesamtstrom werden die zwei weiter unten beschriebenen Anteile auf die Targetfläche aufgebracht, wohingegen der Rest auf den anderen kalten Flächen des Expansionskühlers aufgesammelt wird.

Das Strahlprofil genügt bei einer idealen, d.h. unendlich dünnen Öffnung des Atomstrahlrofens der Lambertverteilung. Damit ist der, von der Düse direkt auf das Target treffende Strahlstromanteil gegeben durch

$$\frac{dN_d}{dt} = \int_0^{2\pi} \int_0^{\theta} \text{const} \cdot \sin \theta' \cos \theta' d\theta' d\varphi \tag{7.2}$$

wobei sich die Konstante aus der Normierung

$$\frac{dN}{dt} = \int_0^{2\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} const \cdot \sin \theta' \cos \theta' d\theta' d\varphi \quad (7.3)$$

zu

$$const = \frac{1}{\pi} \cdot \frac{dN}{dt} \quad (7.4)$$

ergibt. Bei bekanntem Öffnungswinkel von $2\theta = 7.2^\circ$ erhält man für den direkt aufs Target treffenden Strahlstromanteil:

$$\frac{dN_d}{dt} = \frac{dN}{dt} \cdot [\sin^2 \theta']_0^\theta = \frac{dN}{dt} \cdot 3.9 \cdot 10^{-3} \quad (7.5)$$

Der zweite Anteil des aufgebrauchten Cäsiumflusses entsteht durch das Auffrieren von Cäsiumatomen aus dem Hintergrunddampfdruck. Da Cäsium auch bei Zimmertemperatur noch einen Dampfdruck von einigen $10^{-6} hPa$ hat [34], werden alle eingebrachten Alkalimetallatome an den kalten Flächen des Kühlfingers ausfrieren [59]. Um nun diesen Anteil zu gewinnen, hat man einfach den gesamten Cäsiumstrom mit einem Flächenfaktor F , der das Verhältnis von Targetfläche zu gesamder Kühlfläche angibt, zu multiplizieren. Somit erhält man für diesen Kondensationbeitrag einen Wert von

$$\frac{dN_k}{dt} = \frac{dN}{dt} \cdot a \cdot F. \quad (7.6)$$

Die Konstante a stellt einen Formfaktor für die Düse nach [58] dar und hat in unserem Fall den Wert 0.54. F wurde zu $6 \cdot 10^{-3}$ ermittelt. Damit ist

$$\frac{dN_k}{dt} = \frac{dN}{dt} \cdot 3.2 \cdot 10^{-3} \quad (7.7)$$

Mit Hilfe dieser Abschätzungen, die unbenommen sehr grob sind, konnten die Größenordnungen und die tendenziellen Änderungen in den Cäsiumkonzentrationen der Targets aus den Meßgrößen Ofentemperatur und Bedampfungsdauer bestimmt werden.

7.3 Die Emissionen aus den festen Argon-Cäsium-Targets

Bei Anregung von festen Edelgasen mit einem Schwerionenstrahl bilden sich in Kristalliten sogenannte 'quasimolekulare, selbstlokalisierte' Excitonen [52], die den Edelgasmolekülen im Gas entsprechen (Excimere). Analog zu den neutralen und zweifach geladenen Excimeren treten bei festen Edelgasen zwei breite Emissionsmaxima die ebenfalls als zweites und drittes Kontinuum bezeichnet werden, auf. Festes Argon beobachtet man das zweite Kontinuum, bei 128nm. Das dritte Kontinuum,

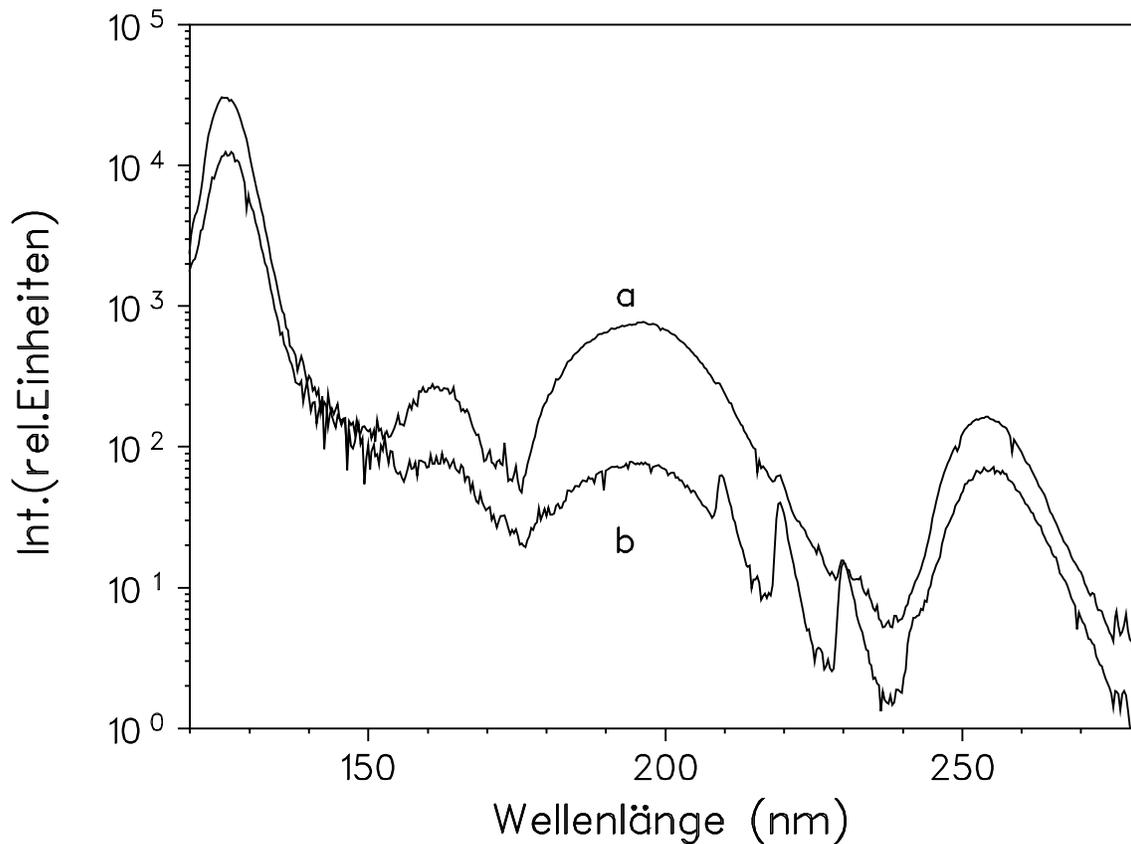


Abbildung 7.4: *Wellenlängenspektrum der Emissionen aus reinem, festem Argon (Kurve a) verglichen mit denen aus einer festen Argon-Cäsium-Mischung (Kurve b). Das zweite Kontinuum wird durch die Zugabe des Cäsiums etwa um einen Faktor zwei, das dritte Kontinuum dagegen um einen Faktor 12 geschwächt. Die drei schmalen Maxima zwischen 205 und 235nm konnten als Stickstoffbanden identifiziert werden.*

das der Emission der zweifach geladenen Argonmoleküle im Gas entspricht, liegt in einem etwa 20nm breiten Bereich um die Wellenlänge 200nm. Die obere Kurve in Abbildung 7.4 zeigt das Emissionsspektrum von reinem Argoneis bei Schwerionenstrahlanregung. Beide Kontinua sind gut erkennbar. Das etwas kleinere Maximum bei 163nm wird als linker Umkehrpunkt des Ar_2 bezeichnet [35]. Das vierte Maximum in diesen Wellenlängenspektren dagegen ist ein Artefakt, das durch den Gittermonochromator erzeugt wird und die zweite Ordnung des zweiten Kontinuums darstellt. Man erkennt, daß dieses Maximum genau bei der doppelten Wellenlänge des zweiten Kontinuums, also bei 256nm zu liegen kommt.

Die untere Kurve in Abbildung 7.4 zeigt zum Vergleich ein Emissionsspektrum eines Argon - Cäsiumtargets im Mischungsverhältnis 100/1. Grundsätzlich sind hier vergleichbare Strukturen wie im reinen Argon beobachtbar. Die drei Spitzen die in Kurve b zwischen 205 und 235nm sind auf die Stickstoffverunreinigungen im Target zurückzuführen. Diese bekannten Stickstoffbanden werden schon bei sehr kleinen

Verunreinigungen emittiert und lassen sich bei dieser Art von Experimenten praktisch nicht vermeiden.

Auffällig ist aber, daß das zweite Kontinuum nur etwa um einen Faktor zwei, das dritte Kontinuum dagegen um einen Faktor zwölf durch die Zugabe des Alkalimetalles in der auftretenden Intensität geschwächt wird. Man erinnert sich, daß dieses dritte Kontinuum im Zusammenhang mit den zweifach geladenen Argonionen steht, wohingegen das zweite Kontinuum seinen Ursprung in den einfach geladenen Argonionen hat. Aus diesem Zusammenhang kann aber geschlossen werden, daß die Cäsiumatome in einer dichten Argonumgebung wesentlich stärker mit den zweifach geladenen als mit den einfach geladenen Argonionen wechselwirken, genauso wie es das Modell vom Ladungstransfer erwarten ließ. Diese Erkenntnis ermutigte zum zweiten Schritt, dem Bau des im Hauptteil dieser Arbeit beschriebenen Argongas – Cäsiumdampf Mischungsexperimentes mit dem dann die durch den Ladungstransfer induzierten Linienübergänge sichtbar gemacht werden konnten.

Abbildungsverzeichnis

2.1	Potentialverlauf bei einer Annäherung von Atom und Ion mit Kreuzung und vermiedener Kreuzung.	4
2.2	Potentialverlauf bei einer Annäherung von Atom und Ion in einem eindimensionalen Coulombmodell.	5
2.3	Wirkungsquerschnitte für Mehrfachionisation	8
2.4	Dampfdruckkurve von Cäsium.	11
3.1	Schematische Darstellung des Experimentieraufbaus.	18
3.2	Aufbau der Hochtemperaturapparatur.	20
3.3	Metall - Glas Anschmelzungen vor und nach dem Gebrauch	21
3.4	Aufbau des Folienhalters im Querschnitt	22
3.5	Querschnitt durch das Cäsiumreservoir	23
4.1	Elektronik zur Aufnahme der Wellenlängenspektren	27
4.2	Elektronik zur Aufnahme der Zeitspektren	28
5.1	Wellenlängenspektren Argon und Argon-Cäsium Mischung im Überblick	30
5.2	Differenzspektrum aus Argon und Argon-Cäsium Mischung im Überblick	31
5.3	Differenzwellenlängenspektren Argon und Argon-Cäsium Mischung im Bereich 340 - 390nm	32
5.4	Niveauschema aller vom Ladungstransfer bevölkerten Linien	35
5.5	Niveauschema der vom Ladungstransfer aus angeregten Cäsiumniveaus bevölkerten ArII Linien	36
5.6	Detail: Wellenlängenbereich 349.0 – 349.3nm	38
5.7	Zeitfenster in den Wellenlängenspektren von Argon und der Argon-Cäsium Mischung. (Bereich: 345-385nm)	39
5.8	Zeitfenster in den Wellenlängenspektren von Argon und der Argon-Cäsium Mischung. (Bereich: 440 480nm)	40
5.9	Zeitspektrum bei $\lambda = (349.12 \pm 0.1)$ nm für reines Argon und eine Argon Cäsium Mischung im Vergleich.	43
5.10	Zeitspektrum bei $\lambda = (349.1 \pm 0.1)$ nm für unterschiedliche Cäsiumkonzentrationen im Target.	44
5.11	Zeitintegrierte Emission bei $\lambda = (349.12 \pm 0.1)$ nm für unterschiedliche Cäsiumkonzentrationen im Target.	45
5.12	Steigung der Zeitspektren in Abhängigkeit von der Cäsiumkonzentration	46
5.13	Steigung der Zeitspektren in Abhängigkeit von der Argonkonzentration bei konstanter Cäsiumkonzentration.	47

6.1	Niveauschema der gefundenen Transferreaktion und seiner Folgeprozesse	50
6.2	Schematische Darstellung des vorgeschlagenen Laseraufbaus.	54
7.1	Schematische Darstellung der Vakuumzelle von der Seite	58
7.2	Schematische Darstellung der Vakuumzelle von oben.	59
7.3	Schematische Darstellung der Atomstrahlapparatur.	61
7.4	Wellenlängenspektrum der Emissionen aus reinem, festem Argon verglichen mit denen aus einer festen Argon–Cäsium Mischung.	63

Literaturverzeichnis

- [1] (G. J. Tallents, ed.). *X-ray Lasers 1990*, volume 116 of *Institute of Physics Conference Series*, University of York, 1990. Institute of Physics, IOP Publishing Ltd.
- [2] (E. E. Fill, ed.). *X-ray Lasers 1992*, volume 125 of *Institute of Physics Conference Series*, Schliersee, Germany, 1992. Institute of Physics, IOP Publishing Ltd.
- [3] M. D. Rosen, P. L. Hagelstein, D. L. Matthews, E. M. Campbell, A. U. Hazi, B. L. Whitten, G. Charatis, E. Busch, C. L. Shepard, P. D. Rockett. Exploding-Foil Technique for Achieving a Soft X-Ray Laser. *Phys. Rev. Lett.* **54** (1985) 106–109.
- [4] D. L. Matthews, P. L. Hagelstein, M. D. Rosen, M. J. Eckard, N. M. Ceglio, A. U. Hazi, H. Medeck, B. J. MacGowan, J. E. Trebes, B. L. Whitten, E. M. Campbell, C. W. Hatcher, A. M. Hawryluk, R. L. Kauffman, L. D. Pleasance, G. Rambach, J. H. Scofield, G. Stone, T. A. Weaver. Demonstration of a Soft X-Ray Amplifier. *Phys. Rev. Lett.* **54** (1985) 110–113.
- [5] A.L. Robinson. Soft X-ray Laser at Lawrence Livermore Lab. *Science* **226** (1984) 821.
- [6] G.Schmahl. X-ray microscopy experiments. In: *X-ray Lasers 1990* (G. J. Tallents, ed.), volume 116 of *Inst. Phys. Conf. Ser.*, p. 271–277. Institute of Physics, IOP Publishing Ltd, 1990.
- [7] D. Matthews et.al. Collisional excitation X-ray lasers. In: *X-ray Lasers 1990* (G. J. Tallents, ed.), volume 116 of *Inst. Phys. Conf. Ser.*, p. 205–215. Institute of Physics, IOP Publishing Ltd, 1990.
- [8] A. V. Vinogradov, I. I. Sobel'man. *Sov. Phys. JETP* **36** (1973) 1115.
- [9] L. P. Presnyakov, V. P. Shevel'ko. Possibility of producing inverted population in atomic beams by charge exchange of protons with atoms. *JETP Lett.* **14** (1971) 203.
- [10] Raymond C. Elton. *X-RAY LASERS*. (Academic press INC., Naval Research Laboratory, Washington, D.C., 1990).
- [11] R. H. Dixon, J. F. Seely, R. C. Elton. Intensity Inversion in the Balmer Spectrum of C^{5+} . *Phys. Rev. Lett.* **40** (1978) 122–125.
- [12] J. R. Crespo Lopez-Urrutia, E. E. Fill, R. Bruch. D. Schneider. Laser-plasma ion beams—experiments towards charge transfer X-ray lasers. In: *X-ray Lasers*

- 1992 (E. E. Fill, ed.), volume 125 of *Inst. Phys. Conf. Ser.*, p. 407–410. Institute of Physics, IOP Publishing Ltd, 1992.
- [13] R. Tkach, H. Mahr, C. L. Tang, P. L. Hartman. Observation of Significant Optical Gain in Inverted Atomic Hydrogen. *Phys. Rev. Lett.* **45** (1980) 542–543.
- [14] R. H. Dixon, R. C. Elton. Resonance Charge Transfer and Population Inversion Following C^{5+} and C^{6+} Interactions with Carbon Atoms in a Laser-Generated Plasma. *Phys. Rev. Lett.* **38** (1977) 1072–1075.
- [15] C. Reese, M. Elbel. Occupation of fine structure levels in electron capture of Ar^{2+} ions from various alkali atoms. *J. Phys. B* **23** (1990) 3869–3880.
- [16] William B. Maier II. Electron transfer in collisions of doubly charged rare gas ions and rare gas atoms for primary ion energies below 100eV. *Journal of Chem. Phys.* **60** (1974) 3588–3598.
- [17] K. E. Maher, J. J. Leventhal. Energy Transfer in Electron–Exchange Reactions at Low Kinetic Energies. *Phys. Rev. Lett.* **27** (1971) 1253–1256.
- [18] D. E. Murnick, A. Ulrich. Heavy Ion Beam Pumped Lasers. *Nucl. Inst. and Meth.* **B9** (1985) 757–761.
- [19] M. Gryzinski. Classical Theory of Atomic Collisions. I. Theory of Inelastic Collisions. *Phys. Rev.* **138** (1965) 336.
- [20] M. Barat, W. Lichten. Extension of the Electron-Promotion Model to Asymmetric Atomic Collisions. *Phys. Rev. A* **6** (1972) 211.
- [21] N. F. Mott, H. S. W. Massey. *The Theory of Atomic Collisions*. International Series of Monographs on Physics, Page 351–357. (Oxford University Press, third editionth edition, 1965).
- [22] N. F. Mott, H. S. W. Massey. *The Theory of Atomic Collisions*. International Series of Monographs on Physics. (Oxford University Press, third editionth edition, 1965).
- [23] B. A. Huber. *Umladung von langsamen, mehrfach geladenen Ionen in Neutralgasen*. Forschungsberichte des Landes Nordrhein-Westfalen. (Westdeutscher Verlag, 1983).
- [24] H. F. Beyer and R. Mann. Recoil Ion Spectroscopy with Heavy Ions. *Progress in Atomic Spectroscopy C* (1984) 397.
- [25] R. E. Olson, A. Salop. Electron transfer between multicharged ions and neutral species. *Phys. Rev. A* **14** (1976) 579–585.

- [26] J. Ullrich, M. Horbatsch, V. Dangendorff, S. Kelbch, H. Schmitt-Böcking. Scattering-angle-dependent multiple ionisation cross section in high-energy heavy-ion-atom collisions. *J.Phys. B* **21** (1988) 611–624.
- [27] Jochen Wieser. Private Mitteilung. March 1993.
- [28] C. L. Cocke. Production of highly charged low-velocity recoil ions by heavy-ion bombardment of rare-gas targets. *Phys.Rev.A* **20** (1979) 749.
- [29] A. R. Striganov, N. S. Sventitskii. *Tables of Spectral Lines of Neutral and ionized Atoms*. (IFI/Plenum New York - Washington, 1968).
- [30] A. Ulrich, H. Bohn, P. Kienle, G. J. Perlow. Heavy Ion Beam Pumped He-Ar Laser. *Appl. Phys. Lett.* **42** (1983) 782.
- [31] H. Bethe. Zur Theorie des Durchganges schneller Korpuskularstrahlen durch Materie. *Ann. d. Phys.* **5** (1930) 325.
- [32] H. D. Betz. Charge States and C-Chang. Cr. Sect. of fast Heavy Ions Penetr. thr. Gas and Solid Mediaid. *Rev. Mod. Phys.* **44** (1972) 465.
- [33] H. D. Betz. *Appl. At. Coll. Phys.* **4** (1983) 1.
- [34] M.v.Ardenne. *Tabellen der angewandten Physik*, volume Bd.2. (VEB, Deutscher Verlag der Wissenschaften Berlin, 1973).
- [35] W. Krötz. *Zeitaufgelöste spektroskopie dichter Edelgase bei Anregung mit Schwerionenstrahlen*. Dissertation, TU München, Juli 1990.
- [36] W. Krötz, A. Ulrich, B. Busch, G. Ribitzki, J. Wieser. Third excimer continuum of argon excited by heavy-ion beam. *Phys. Rev. A* **43** (1991) 6089.
- [37] F. Howorka. Thermal rate constant for $Ar^{2+} + Ar \rightarrow 2Ar^+$. *J. Chem. Phys.* **67** (1977) 2919–2920.
- [38] R. Johnsen, M. A. Biondi. Measurements of radiative charge-transfer reactions of doubly and singly charged rare-gas ions with rare-gas atoms at thermal energies. *Phys. Rev. A* **18** (1978) 996.
- [39] G. Ribitzki. *Untersuchung der Anregung von Edelgasen mit Schwerionenstrahlen*. Dissertation, TU München, November 1992.
- [40] H. Massey, E. Burhop, H. Gilbody. *Electronic and Ionic Impact Phenomena, Volume IV: Recombination and fast collisions of heavy Ions*, volume IV. (Oxford University Press, 1974).
- [41] W. L. Wiese, M. W. Smith, B. M. Miles. *Atomic transition probabilities*, volume II. (National Bureau of Standards, Washington, D.C., 1969).
- [42] Frank Siegling. *Untersuchung der Verbreiterung von Cs-Spektrallinien durch Edelgase*. Dissertation, Universität Kiel, 1982.

- [43] J. W. Hammer, K. Petkau, T. Griegel, H. Langhoff, M. Mantel. New possible laser media in the UV and XUV in high current heavy ion beam induced plasmas. In: *Physics of Nuclear Induced Plasmas and Problems of Nuclear Pumped Lasers.*, p. 2–8, Obninsk, Russia(GUS), May 1992.
- [44] K. Petkau, J. W. Hammer, G. Herre, M. Mantel, H. Langhoff. Vacuum ultraviolet emission spectra of the helium and neon alkali ions in the range between 60–80nm. *J. Chem. Phys.* **94** (1991) 7769.
- [45] J. Fiedler, L. Frey, F. Steigerwald, H. Langhoff, T. Griegel, K. Petkau, W. Hammer. VUV–transitions in ionic rare-gas alkali molecules. *Z. Phys. D* **11** (1989) 141–145.
- [46] A. Ulrich. *Aufbau einer Apparatur für einen mit Schwerionenstrahl gepumpten Laser.* Diplomarbeit, TU München, 1980.
- [47] L. C. Northcliffe, R. F. Schilling. Range and Stopping Power for Heavy Ions. *Nuc. Dat. Tabl.* **7** (1970).
- [48] J. Wieser. *To be published.* Dissertation, TU München, 1993.
- [49] A. Ulrich, J. Wieser, B. Busch, R. Gernhäuser, W. Krötz, G. RibitzRibitzki,. Ion beam pumping of an ion laser line in a cold dens gas target. In: *X-ray Lasers 1992*, volume 125 of *Inst. Phys. Conf. Ser.*, p. 419–422. Institute of Physics, IOP Publishing Ltd, 1992.
- [50] S. D. Kravis et al. Improved electron capture rate coefficient measurements for Ar^{3+} to Ar^{5+} on Ar and new measurements for Ar^{6+} on Ar at low energies. In: *Sixteenth International Conference on Physics of Electronic and Atomic Collisions* (A. Dalgarno, R. S. Freund, M. S. Lubell, T. B. Lucatorto, ed.), 16, p. 579, New York, 1989.
- [51] H. Langhoff. *Opt. Comm.* **68** (1988) 31.
- [52] Bernhard Busch. *Untersuchung der VUV-Emission fester Edelgase bei Anregung mit Schwerionenstrahlen.* Dissertation, TU München, September 1987.
- [53] A. Brunnhuber. *Entwicklung einer gepulsten Hochstromquelle zur Untersuchung schwerionenstrahl gepumpter Laser.* Diplomarbeit, TU München/ E17, Sept. 1992.
- [54] A. Ulrich. *Mit Schwerionenstrahl gepumpte Gaslaser.* Dissertation, TU München, 1983.
- [55] A. S. Schlachter et.al. Ionization of rare-gas targets by collisions of fast highly charged projectiles. *Phys. Rev. A* **23** (1981) 2331.
- [56] G. V. Marr, D. M. Creek. The photoionisation absorption continua for alkali metal vapours. *Proc. Roy. Soc. A* **304** (1968) 233–244.

- [57] G. V. Marr, D. M. Creek. The absorbtion oscillator strengths in alkali metal vapours. *Proc. Roy. Soc. A* **304** (1968) 245–254.
- [58] A.Estermann. Molecular Beam Technique. *Rev.Mod.Phys* **18** (1946) 300.
- [59] P. Maier-Komor. private Mitteilung. 1993.

Ein Wort zum Schluß

An dieser Stelle will ich all denen danken, die in irgendeiner Form zum Gelingen meiner Diplomarbeit beigetragen haben.

Herrn Prof. Dr. H. J. Körner möchte ich vor allem für sein Interesse an den Ergebnissen meiner Experimente danken. Ihm und Herrn Prof. Dr. P. Kienle danke ich auch für die freundliche Aufnahme am Institut E12.

Herzlicher Dank gilt vor allem Herrn Dr. A. Ulrich, dessen außergewöhnlich großes Engagement bei der Betreuung der Arbeit diesen Erfolg erst möglich machte. Dabei profitierte ich nicht nur von seinem umfangreichen experimentellen Erfahrungsschatz, sondern konnte auch in den zahlreichen Diskussionen mit ihm, sehr viel über Physik und konkretes wissenschaftliches Arbeiten lernen.

Besonders bedanken möchte ich mich auch bei allen anderen Mitgliedern der Lasergruppe, die mich vom ersten Tage an mit größter Liebenswürdigkeit bei sich aufgenommen haben. Herr B. Busch, Herr W. Krötz, Herr R. Prem, Herr G. Ribitzki, Herr M. Salvermoser und vor allem Herr J. Wieser standen mir über ein Jahr hinweg bei der Vorbereitung, Durchführung und Auswertung der oft mehrtägigen Experimente mit Rat und Tat zur Seite.

Herr W. Czech und Herr H. Falkner unterstützten mich bei der Konstruktion einer Vielzahl von Bauelementen der 'ArCHE', die mit großer Präzision in der E12-Werkstatt, sowie in der Zentralwerkstatt des Physikdepartments gefertigt wurden.

Die Herstellung und Bedampfung der Titaneintrittsfolien war bei den Mitarbeitern des Targetlabors, Herrn P. Maier-Komor, Frau K. Nacke, und Herrn W. Heimkes, die mir auch wertvolle Tips bei der Cäsiumhandhabung gegeben haben, in den besten Händen.

Bedanken möchte ich mich auch bei der Rechnergruppe des Beschleunigerlabors, die mir bei jedem 'das geht nicht' aus der Patsche halfen. Vor allem Herr B. Stanzel verstand es durch Installation von außergewöhnlich interessanter Software das Arbeitsumfeld wesentlich zu verbessern.

Ebenso bin ich allen anderen Mitarbeitern des Beschleunigerlaboratoriums zu großem Dank verpflichtet. Ihr Einsatz brachte meist schnelle Hilfe bei allen Unwägbarkeiten während der Strahlzeiten. Besonders Herrn W. Hagen, von dem ich vieles über den Umgang mit Cäsium gelernt habe und Herrn G. Meier der für mich die notwendigen Umbauten am Starkstromnetz in Halle I vorgenommen hat, will ich

hier erwähnen. Eine Große Hilfe für jeden Experimentator sind auch die Mitarbeiter der Beschleunigerwerkstatt, durch Ihre schnellen und unbürokratischen Hilfen, die deutlich über das selbstverständliche Maß hinausgingen.

An dieser Stelle möchte ich aber auch einmal den Dank an meine Frau aussprechen, die mir die ganze Zeit über den Rücken von Problemen aller Art freigehalten hat und es mir so ermöglichte, meine ganze Konzentration auf diesen Abschluß des Studiums der Physik zu richten.

Roman Gernhäuser