

MASTER

Voorwaarden voor en constructie van lasers voor laser geïnduceerde fluorescentie

Beulens, J.J.

Award date:
1987

[Link to publication](#)

Disclaimer

This document contains a student thesis (bachelor's or master's), as authored by a student at Eindhoven University of Technology. Student theses are made available in the TU/e repository upon obtaining the required degree. The grade received is not published on the document as presented in the repository. The required complexity or quality of research of student theses may vary by program, and the required minimum study period may vary in duration.

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain

Technische Universteit Eindhoven
Faculteit der Technische Natuurkunde
Vakgroep Deeltjesfysica
Onderwerpgroep Atoom- en Plasmafysica

Voorwaarden voor en constructie van lasers voor Laser geInduceerde Fluorescentie

J.J. Beulens

November 1987

VDF/NT 87-24

*To dye or not to dye
or
Luctor et Emergo*

Verslag van het afstudeerwerk van J.J. Beulens.

Afstudeerhoogleraar Prof. Dr. Ir. D.C. Schram

Afstudeerbegeleider Dr. J.A.M. van der Mullen

Samenvatting

Dit afstudeerwerk verricht in de groep atoom en plasmafysica bestaat uit een theoretisch en een experimenteel deel.

Het theoretisch deel bestaat uit het formuleren van eisen waaraan een laser moet voldoen om er laser geïnduceerde fluorescentie experimenten mee te verrichten. Het experimenteel deel bestaat uit de constructie van een aantal lasers.

Wat de theorie betreft zijn twee modellen opgesteld die een vergelijkbaar resultaat opleveren: voor een geïsoleerd pompsysteem is het minimale laser vermogen zodanig dat het pompproces waarschijnlijker is dan het spontane vervalproces, onafhankelijk van de overgangswaarschijnlijkheden in dit systeem. Wanneer men de uitbreiding maakt naar een niet geïsoleerd systeem dan moet het (kantel) vermogen opgeschaald worden met de verhouding van de totale ontvolkingsfrequentie en de spontane verval frequentie, behorend bij de desbetreffende pompovergang. Deze eis blijkt een goede leidraad te zijn om een laserselectie te kunnen maken.

Voorts zijn ook de tijdstructuur van de fluorescentieprocessen bestudeerd. Het blijkt zinvol te zijn onderscheid te maken tussen twee soorten laserpulsduren. De korte laserpuls, dat wil zeggen korter of vergelijkbaar met de levensduur van het bovenniveau en de lange laserpuls die veel langer is dan de levensduur van het bovenniveau.

Er zijn twee type stikstoflasers gebouwd voor het genereren van korte pulsen. Deze zijn beide van het "capacity transfer" type, waarbij de eerste gebouwd is met discrete condensatoren en de tweede met een discrete laadcondensator met een cilindrische plaatcapaciteit. De eerste laser behaalde een piekvermogen van ongeveer 160 kWatt ($\approx 15\%$ reproduceerbaarheid) bij een pulsduur van 11 ± 1 nsec. De tweede laser leverde een vermogen van 10 kWatt bij een pulsduur van 3.0 ± 0.1 nsec (reproduceerbaarheidsmarge van 8%). Met deze laser is een repetitiefrequentie behaald van 280 Hz.

Voor lange puls experimenten is een flitslamp gepompte kleurstoflaser verbeterd en uitgerust met een coaxiale flitsbuis als pompbron. Deze leverde een vermogen van 25 kWatt bij een pulsduur van (0.4 ± 0.05) μ sec en een bandbreedte van 0.024 ± 0.003 nm, hetgeen een verbetering betekent van een factor 12 in de spectrale intensiteit.

Inhoudsopgave

Samenvatting

0.	Inhoudsopgave	- 1-
1.	Inleiding	- 2-
2.	Aan de laser te stellen eisen	- 4-
2.1	Detailed balancing	- 4-
2.2	Interactie tussen straling en atoom	- 6-
2.3	Rabi-methode	- 9-
2.4	Vermogenseisen	-14-
2.5	Fluorescentiesignaal	-19-
3.	Lasersystemen	-23-
3.1	Inversiemechanismen	-23-
3.2	Lasertechnieken	-25-
4.	Stikstoflasers	-31-
4.1	Theorie stikstoflasers	-31-
4.1.1	Botsings-stralings model	-31-
4.1.2	Gepulste gasontlading	-35-
4.1.3	Formule van Townsend en de Paschenwet	-38-
4.1.4	Electrisch excitatiesysteem	-40-
4.1.5	Electro-optisch systeem	-44-
4.1.6	Diffusie en recombinatie	-45-
5.	Resultaten stikstoflasers	-47-
5.1	Blumlein laser	-47-
5.2	Capacity transfer lasers	-49-
5.2.1	Discrete condensatoren	-49-
5.2.2	Metingen aan de discrete C-C laser	-50-
5.2.3	Partieel discrete C-C laser	-52-
5.2.4	Metingen aan de partieel discrete C-C laser	-54-
5.2.5	Uiteindelijk laserontwerp	-55-
5.2.6	Metingen aan uiteindelijk laserontwerp	-56-
6.	Flitslamp gepompte dye lasers	-58-
6.1	Colineaire dye laser	-59-
6.2	Metingen aan de colineaire dye laser	-60-
6.3	Coaxiale laser	-64-
6.4	Metingen aan de coaxiale laser	-66-
7.	Resumé	-68-
	Referenties	-70-
	Dankwoord	-74-

1. Inleiding

In de groep atoom- en plasmafysica wordt zowel theoretisch als experimenteel onderzoek gedaan aan plasma's. Experimenteel kunnen belangrijke plasmaparameters zoals de electronentemperatuur (T_e), de electronendichtheid (n_e), de neutralen- en de metastabielen-dichtheden worden bepaald. Theoretisch worden deze parameters aan elkaar gekoppeld middels een zogenoemd botsings-stralingsmodel (BS-model). Een dergelijk model beschrijft de bezettingen van niveaus die door botsings- en stralingsprocessen bevolkt en ontvolkt worden. Ook wordt door middel van BS-modellen een verband gelegd tussen ionisatie- en recombinatieprocessen enerzijds en transportverschijnselen anderzijds. Hoog aangeslagen toestanden vormen een schakel in het ionisatie/recombinatie verkeer tussen grondtoestand en het continuüm. Deze bestudering van het transport in de excitatieruimte is zeer zinvol omdat het samenhangt met transport in het plasma. Dit transport in de excitatieruimte kan worden bestudeerd door de excitatiestroom te verstoren middels het pompen van een overgang en dan kijken naar de relaxatie (verval). Is de verstoring kort ten opzichte van excitatie-levensduren dan geven verval-tijdmetingen informatie over excitatiemechanismen. Als de verstoring lang is ten opzichte van de excitatie-levensduren dan zal men gebruik moeten maken van BS-modellen en de electronendichtheid moeten variëren.

Experimentele technieken om bovenstaande plasmaparameters te bepalen stoelen voornamelijk op de electromagnetische straling (vooral zichtbaar licht) dat een plasma uitzendt of absorbeert. Zo kan bijvoorbeeld uit lijnintensiteiten en lijnvormen van uitgezonden straling de electronen -dichtheid en -temperatuur bepaald worden.

Een techniek waarbij gebruik gemaakt wordt van een kleine kortstondige (nanoseconden of microseconden) verstoring in het plasma is Laser geInduceerde Fluorescentie (LIF). Hierbij worden laserpulsen in de orde van 1 nsec (vervaltijd-LIF) of van 1 μ sec gebruikt. Met behulp van deze techniek kan men electronendichtheden, (de)-excitatie-snelheden, en de bezettingen van excitatieniveaus bepalen (BUR79, SIJ84, STE82, WIL84, HIM83).

Het afstudeerwerk waar dit rapport verslag van doet, is toegespitst op het formuleren van een aantal eisen waaraan een lasersysteem dient te voldoen om LIF-experimenten mee uit te kunnen voeren. Tevens zijn er

stikstoflasers geconstrueerd ten behoeve van korte puls LIF metingen.

Ook is een bestaande flitslamp gepompte kleurstoflaser, waar in het verleden lange puls experimenten mee gedaan zijn, sterk verbeterd.

In hoofdstuk 2 zullen een statistische en een dynamische behandeling van het laserpompproces met elkaar worden vergeleken. Uit deze studie volgen enkele eisen waaraan een "LIF-laser" moet voldoen.

Hoofdstuk 3 geeft een algemeen overzicht van recente ontwikkelingen op het gebied van gepulste lasers. Hierna kan een selectie gemaakt worden omtrent de bruikbaarheid van lasers voor LIF-experimenten, aan de hand van de in hoofdstuk 2 aangereikte bruikbaarheidscriteria.

In hoofdstuk 4 wordt een theoretisch model opgezet voor stikstoflasers. Hieruit kunnen nuttige tips voor de constructie van stikstoflasers bepaald worden.

In hoofdstuk 5 wordt de realisatie behandeld van enkele stikstoflasers, bestemd voor korte puls LIF metingen, met bijbehorende metingen.

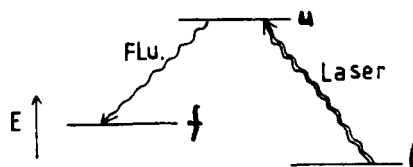
Voor de lange puls LIF-experimenten is een versleten colineaire flitslamp gepompte kleurstoflaser weer operationeel gemaakt en later omgebouwd tot een coaxiale-flitslamp gepompte kleurstoflaser. Dit is beschreven in hoofdstuk 6.

Als laatste wordt in hoofdstuk 7 een resumé gegeven van het onderzoek, waaraan enkele conclusies en aanbevelingen zijn verbonden.

2. Aan de laser te stellen eisen

Bij de beschrijving van Laser geïnduceerde Fluorescentie experimenten (LIF-experimenten) gaat men uit van een geïsoleerd systeem met drie toestanden (fig.2.1). Door absorptie van laserlicht wordt het lage niveau l (=lower) overgevoerd in niveau u (=upper), en omgekeerd zal gestimuleerde emissie er toe leiden dat u in l overgaat.

Fig.2.1 Niveauschema voor Laser geïnduceerde Fluorescentie.



Het fluorescentieproces in het deelsysteem {u,f} is gekoppeld aan het pompproces in systeem {l,u}. Het doel van LIF-experimenten is inzicht te krijgen in de botsingsfrequenties voor aangeslagen niveaus. Daartoe zal gemeten moeten worden hoe de storing, die door de laser wordt aangebracht in bezetting van het bovenniveau u, zich ontwikkelt in de tijd en voortzet naar andere niveaus. Dit stelt drie eisen aan de laser, en wel met betrekking tot a: het piekvermogen b: de tijdsstructuur van de puls en c: de repetitiefrequentie.

a: Het vermogen van de laser moet zodanig zijn dat absorptie en gestimuleerde emissie dominant zijn over alle andere processen die atomen in het bovenniveau ondervinden.

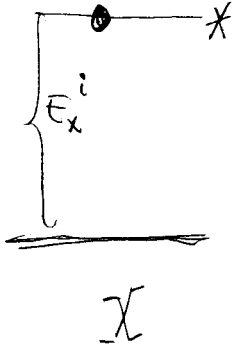
b: De laserpuls moet een zodanige tijdsstructuur hebben dat de relaxatie van de laserverstoring goed te meten is. Dit impliceert dat de laser op tijd "weg" of voldoende blokvormig moet zijn.

c: Om dit signaal te kunnen meten moet het voldoende boven de ruis uitgetild worden. Dit betekent dat de repetitiefrequentie hoog genoeg moet zijn.

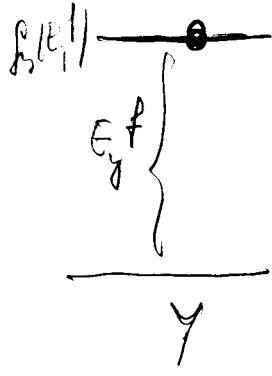
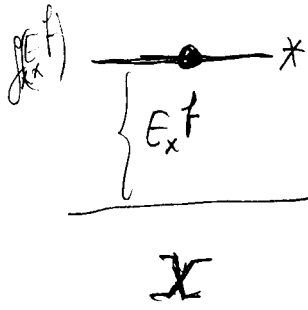
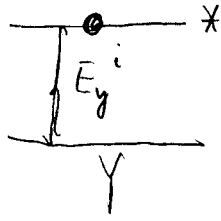
In de nu volgende paragrafen worden deze eisen uitgewerkt, aan de hand waarvan dan een geschikt lasersysteem kan worden gekozen.

2.1 Detailed balancing

Zoals gezegd is het de opzet van een LIF-experiment om met behulp van een laser een evenwichtssituatie te verstoren om vervolgens te

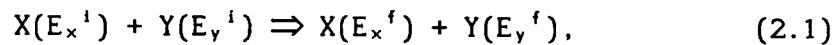


+



kijken op welke wijze dat evenwicht zich herstelt en voortplant. De mate waarin de laser verstoring optreedt kan men het best begrijpen door eerst de evenwichtssituatie te bestuderen. Hier gebeurt dat door gebruik te maken van het principe van "Detailed balancing"^(OST70). De resultaten van deze statistische studie zullen worden vergeleken met de dynamische aanpak in paragraaf 2.3.

In een volume V worden dan twee deeltjes X en Y beschouwd, met de volgende heengaande reactie (van links naar rechts):



waarin i staat voor de beginsituatie (initial) en f voor de eindsituatie (final). Het aantal deeltjes in volume V wordt weergegeven als $N_x(E_x^i)$ en $N_y(E_y^i)$. In de eindsituatie is het aantal quantumtoestanden gelijk aan $G_x(E_x^f)$ en $G_y(E_y^f)$. Voor de elementaire kans van het heengaande proces geldt de volgende uitdrukking:

$$\langle E_x^i, E_y^i | E_x^f, E_y^f \rangle. \quad (2.2)$$

Als aangenomen wordt dat het aantal processen per tijd in het volumetje V evenredig is met het aantal deeltjes en het aantal quantumtoestanden aan het eind dan zal het aantal processen van links naar rechts gegeven worden door:

$$N_x(E_x^i) N_y(E_y^i) G_x(E_x^f) G_y(E_y^f) \langle E_x^i, E_y^i | E_x^f, E_y^f \rangle. \quad (2.3a)$$

Bij reactie 2.1 hoort ook een teruggaand proces. Het aantal teruggaande processen verkrijgt men door verwisseling van de indices i en f . In het geval dat de matrices gerelateerd aan de elementaire kans voor het heen en teruggaande proces gelijk zijn, is er sprake van microscopische reversibiliteit. Het principe van detailed balancing gaat er van uit dat in thermodynamisch evenwicht (TE) het aantal reacties van links naar rechts (per tijdseenheid) gelijk is aan het aantal reacties van rechts naar links. Dit resulteert in het volgende:

$$N_x(E_x^i) N_y(E_y^i) G_x(E_x^f) G_y(E_y^f) = N_x(E_x^f) N_y(E_y^f) G_x(E_x^i) G_y(E_y^i); \quad (2.3)$$

hier zijn de elementaire overgangswaarschijnlijkheden tegen elkaar weggedeeld, hetgeen mag onder aanname van microscopische reversibiliteit. Na introductie van het aantal deeltjes per quantummode $\hat{\eta}$ volgens

$$\hat{\eta} = N(E)/G(E), \quad (2.4)$$

kan vergelijking 2.3 eenvoudig als volgt worden omschreven:

$$\hat{\eta}_x(E_x^i) \hat{\eta}_y(E_y^i) = \hat{\eta}_x(E_x^f) \hat{\eta}_y(E_y^f). \quad (2.5)$$

Dit resultaat dat gebaseerd is op de aanwezigheid van microscopische reversibiliteit kan worden gebruikt voor de afleiding van de verdelingswetten van Maxwell, Boltzmann en Saha, dat wil zeggen alle klassieke statistische wetten. Het kan zonder meer worden gebruikt voor reacties waar meerdere deeltjes bij betrokken zijn. Wanneer $\hat{\eta}$ de waarde 1 nadert kunnen afwijkingen optreden. *(juist!)*

2.2 Interactie tussen straling en atoom

Beschouw nu het eerder genoemde deelsysteem $\{u, l\}$ als een geïsoleerd systeem. Dit betekent dat voor de reactievergelijking voor spontane emissie en absorptie geldt:

$$A_u \leftrightarrow A_l + h\nu, \quad (2.6)$$

waarin $A_{u(l)}$ een deeltje A in toestand u (l) weergeeft en $h\nu$ een lichtquant voorstelt.

In een zwak stralingsveld wordt dan door detailed balancing geëist dat

$$\underbrace{V n(u) g(l) G_{h\nu}^{\text{emissie}}}_{\text{emissie}} \{E_u, E_l\} = \underbrace{V n(l) g(u) N_{h\nu}^{\text{absorptie}}}_{\text{absorptie}} \{E_l, E_u\}. \quad (2.7)$$

waarin $n(u)$ en $n(l)$ respectievelijk de dichtheden van toestand u en l zijn, en de termen tussen accolades de elementaire overgangskansen zijn,

*$\int h\nu$ en $N_{h\nu}$
metsjord je de*

-6-

*aantal fotonen
hier niet aantal
toegankelijk quantumtoestanden
maar*

respectievelijk van u naar l en van l naar u.

Wanneer echter een sterk stralingsveld aangelegd wordt en het aantal fotonen per quantummode l benadert of overschrijdt dan zal de klassieke aanpak niet meer opgaan. Men kan dit als volgt interpreteren; het aantal heengaande processen wordt versterkt door gestimuleerde emissie (fig. 2.2),

$$A_u + h\nu \rightarrow A_l + h\nu + h\nu, \quad (2.8)$$

waarin de twee fotonen aan de rechterzijde van de vergelijking coherent zijn. Door vergelijking 2.7 als volgt uit te schrijven kan men de resultaten van de quantumstatistiek begrijpen:

$$V n(u) g(l) C_{h\nu} \left(1 + \frac{N_{h\nu}}{C_{h\nu}}\right) \{E_u, E_l\} = V n(l) g(u) N_{h\nu} \{E_l, E_u\}. \quad (2.9)$$

Hieruit volgt dan dat het aantal heengaande processen wordt vermeerderd ten opzichte van het spontane aantal met een factor $1 + \hat{\eta}_{h\nu}$ wanneer men stelt dat $\hat{\eta}_{h\nu} = N_{h\nu} / C_{h\nu}$.

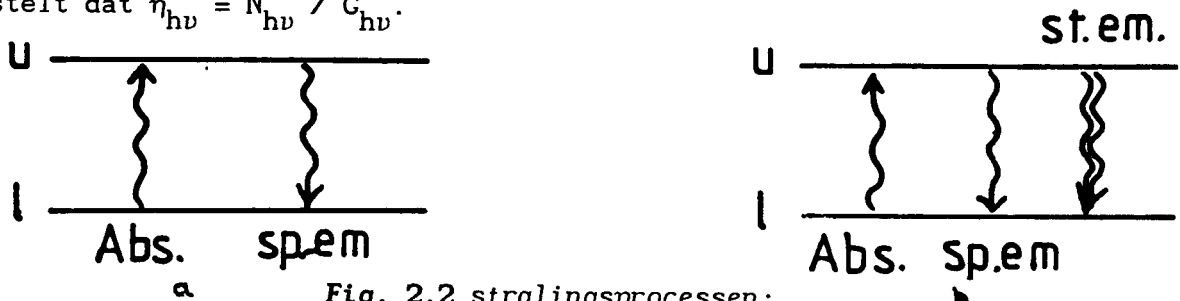


Fig. 2.2 stralingsprocessen:
a zwak stralingsveld en
b sterk stralingsveld

Wanneer men aanneemt dat $\eta(u) = n(u)/g(u)$ en $\eta(l) = n(l)/g(l)$ zich verhouden volgens de Boltzman factor $\exp(-h\nu/kT)$ dan rolt $\hat{\eta}_{h\nu}$ uit deze vergelijking.

$$\hat{\eta}_{h\nu} = (\exp(h\nu/kT) - 1)^{-1}, \quad (2.10)$$

waarin men het T afhankelijke deel van de Planck functie terugvindt.

Keert men nu terug naar vergelijking 2.9, dan vindt men:

$$\eta_u (1 + \hat{\eta}_{h\nu}) = \eta_l \hat{\eta}_{h\nu}, \quad (2.11)$$

waarbij wordt geeist dat gestimuleerde emissie dominant is over spontane emissie. Dit zal gebeuren als de tweede term in het linkerlid domineert over de eerste, i.e. $\hat{\eta}_{h\nu} > 1$. Dus is $\hat{\eta}_{h\nu} = 1$ een kantelpunt. Voor een sterk stralingsveld, dus wanneer $\hat{\eta}_{h\nu} \gg 1$ volgt uit vergelijking 2.11 dat $\eta_u = \eta_l$, dus dat de bezettingen van de toestanden u en l (per statistisch gewichtaan elkaar gelijk zijn (per statistisch gewicht)).

Aan deze dominantie voorwaarde $\hat{\eta} > 1$ kan een intensiteit verbonden worden. Bij het kantelpunt is $\hat{\eta}=1$ en dan is de fotonenverdeling gelijk aan de verdeling van de quantumtoestanden. Deze laatste kan worden afgeleid uit de dichtheid in de faseruimte. Deze wordt gegeven door $G_\Gamma=2/h^3$, waarin de factor 2 het aantal polarisaties is. In een faseruimtevolume $d\Gamma = d^3r d^3p$ is dan het aantal quantumtoestanden:

$$dG_\Gamma = 2 \frac{d\Gamma}{h^3}. \quad (2.12)$$

Vanuit de faseruimte naar de energieruimte $\{E,V\}$ wordt $G_{E \nu}$ dan als volgt:

$$G_{E \nu} = G_\Gamma 4\pi p^2 \frac{dp}{dE} = 8\pi \nu^2 c^{-3} h^{-1}. \quad (2.13)$$

De fotonverdelingsfunctie voor $\hat{\eta}_{h\nu}=1$ correspondeert dus met:

$$N_{E \nu}^* = 8\pi \nu^2 c^{-3} h^{-1}. \quad (2.14)$$

De energiedichtheid per eenheid van volume en frequentie, ρ_ν , luidt dan:

$$\rho_\nu^* = N_{E \nu}^* h\nu \frac{dE}{d\nu} = 8\pi h \nu^3 c^{-3}. \quad (2.15)$$

Hiermee kan de spectrale intensiteit (=energie per eenheid van tijd,

oppervlak, frequentieinterval en ruimtehoek) bepaald worden met de relatie $I_\nu = \frac{\rho_\nu c}{4\pi}$, hetgeen leidt tot:

$$I_\nu^* = 2h \nu^3 c^{-2}. \quad (2.16)$$

De voorwaarde voor LIF-experimenten wordt dan simpelweg: $I_\nu > 2h \nu^3 c^{-2}$, hetgeen onafhankelijk is van de overgangswaarschijnlijkheden in het geïsoleerd systeem. Voor het kritische vermogen van de laser geldt dan:

$$P_c = I_\nu 4\pi \Delta\nu O, \quad (2.17)$$

waarin O het oppervlak van de laserbundel is. Numeriek levert dit bijvoorbeeld voor een laser met een bandbreedte van 1 \AA ($\Delta\nu = 10^{11} \text{ s}^{-1}$) bij een golflengte van 600 nm en een bundeloppervlak van 1 cm^2 , een kritisch vermogen op van 250 Watt.

Men dient zich te realiseren dat dit kritische vermogen gerelateerd is aan het kantelpunt waarvoor het aantal geïnduceerde processen gelijk is aan bijbehorende spontane vervalprocessen. Wordt het bovenniveau nog op een andere wijze ontvolkt met een totale vervalrequentie γ_ν dan zal het vermogen verhoogd moeten worden en wel tot:

$$P = P_c \gamma_\nu / A(u, l), \quad (2.17b)$$

waarin $A(u, l)$ de overgangswaarschijnlijkheden is voor het spontane verval van u naar l .

2.3 Rabi-methode

Men kan de resultaten verkregen met de statistische oplossing voor het twee niveau systeem toetsen aan een dynamische oplossing. Een dynamische beschouwing zou wel eens belangrijk kunnen zijn, omdat bij de statistische beschouwing uitgegaan is van een aantal, voor de praktijk niet reële, aannamen. Zo werd de laserpuls als een continue bron beschouwd. De inschakelverschijnselen van de laserpuls kunnen wel eens belangrijk blijken te zijn. Verder vertoont het spectrum van een laserpuls een aantal spikes die op een regelmatige afstand, afhankelijk van de trilhoute, van elkaar voorkomen. Tussen deze spikes is nauwelijks

laserenergie aanwezig, terwijl toch een homogeen verbrede overgang gepompt dient te worden. Bovengenoemde tekortkomingen van de statistische beschouwing kunnen worden ondervangen door een dynamische beschrijving met behulp van de Rabi-methode. Deze dynamische beschrijving laat zien dat tussen de laserspykes toch wordt gepompt, tengevolge van de zogenoemde vermogensverbreding. Mits de intensiteit van de laserbundel groot genoeg is kan een overgang toch homogeen heen en weer gepompt worden.

In de dynamische aanpak beschouwt men de atomen aanvankelijk in een toestand, waarbij het onderniveau bevolkt is en het bovenniveau niet is bevolkt, om vervolgens de tijdsafhankelijkheid van de bezettingen in het (niet ontaarde) twee niveau systeem, onder invloed van een bijpassende laserbundel te onderzoeken. Hiertoe moet de tijdsafhankelijke Schrödingervergelijking worden opgelost. Hierin wordt de laserbundel voorgesteld door een wisselend lineair gepolariseerd elektrisch veld (SAR74):

$$\underline{E}(t) = \underline{e}_z E_0 \cos vt = E_0 \left[\frac{e^{ivt} + e^{-ivt}}{2} \right] \underline{e}_z, \quad (2.18)$$

waarin de cirkelfrequentie ν iets verschillend mag zijn van $\nu_0 = \Delta E/\hbar$. Het elektrisch veld wordt verdisconteerd in een storingsterm van de Hamiltoniaan, $H^{(1)} = -eE \cdot r$. De Schrödingervergelijking wordt dan:

$$- \frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial t} |\psi, t\rangle = (H^{(0)} + H^{(1)}) |\psi, t\rangle, \quad (2.19)$$

waarin $H^{(0)}$ de ongestoorde Hamiltoniaan is voor de vergelijking $H\psi = E\psi$, en waarin ψ de golf functie is voor de begintoestand. Als oplossing wordt voorgesteld:

$$|\psi, t\rangle = c_1(t) |J_1 m_1, t\rangle + c_0(t) |J_0 m_0, t\rangle \quad (2.20)$$

waarin J en m respectievelijk het totale impulsmoment quantumgetal en het magnetisch quantumgetal is, met als randvoorwaarde $c_1(t=0) = 1$ en $c_0(t=0) = 0$. Dit betekent niets anders dan dat op tijdstip $t=0$ het systeem zich in toestand 1 ($|J_1 m_1\rangle$) bevindt. Vergelijking 2.20 wordt in verkorte notatie:

$$|\psi, t\rangle = c_1(t) |1, t\rangle + c_u(t) |u, t\rangle. \quad (2.21)$$

Invullen van deze vergelijking in de Schrödingervergelijking (vgl. 2.19) levert dan:

$$-\frac{\hbar}{i} [\dot{c}_1(t) |1, t\rangle + \dot{c}_u(t) |u, t\rangle] = c_1(t) H^{(1)} |1, t\rangle + c_u(t) H^{(1)} |u, t\rangle. \quad (2.22)$$

Hierin is gebruik gemaakt van het feit dat $|1, t\rangle$ en $|u, t\rangle$ oplossingen zijn van de ongestoorde Schrödingervergelijking. Vermenigvuldiging van 2.22 met $\langle 1, t|$ en $\langle u, t|$ levert dan het volgende stelsel vergelijkingen op voor $c_1(t)$ en $c_u(t)$:

$$\begin{aligned} -\frac{\hbar}{i} \dot{c}_1(t) &= c_u(t) \langle 1, t| H^{(1)} |u, t\rangle, \\ -\frac{\hbar}{i} \dot{c}_u(t) &= c_1(t) \langle u, t| H^{(1)} |1, t\rangle. \end{aligned} \quad (2.23)$$

Verondersteld is dat het atoom geen stationair dipoolmoment bezit ($\langle j| H |j\rangle = 0$). De vergelijkingen 2.23 worden met het stralingsveld E uit 2.18 gelijk aan:

$$\begin{aligned} \dot{c}_1(t) &= -\left[\frac{i}{2\hbar} \right] \langle 1|z|u\rangle e E_0 \left[e^{-i(\nu_0 + \nu)t} + e^{-i(\nu_0 - \nu)t} \right], \\ \dot{c}_u(t) &= -\left[\frac{i}{2\hbar} \right] \langle u|z|1\rangle e E_0 \left[e^{i(\nu_0 - \nu)t} + e^{i(\nu_0 + \nu)t} \right]. \end{aligned} \quad (2.24)$$

Omdat de termen met $\nu_0 + \nu \gg \nu_0 - \nu$ zeer snel oscilleren zal alleen straling geabsorbeert worden door de termen $\nu_0 - \nu$. Met de herschrijving $R_{u1} = \langle 1|z|u\rangle e E_0 / \hbar$, (ook voor verwisseling van 1 en u) worden de vergelijkingen in 2.24:

$$\begin{aligned} \dot{c}_1(t) &= + \frac{i}{2} R_{1u} e^{-i(\nu_0 - \nu)t} c_u(t) - \frac{1}{2} \gamma_1 c_1(t), \\ \dot{c}_u(t) &= + \frac{i}{2} R_{u1} e^{+i(\nu_0 - \nu)t} c_1(t) - \frac{1}{2} \gamma_u c_u(t). \end{aligned} \quad (2.25)$$

R $\frac{P \cdot t_0}{\hbar}$

-11-

$$\frac{R}{2} = \frac{P t_0}{\hbar}$$

In deze vergelijkingen zijn de semi-empirische factoren $-\frac{1}{2} \gamma_1 c_1(t)$ en $-\frac{1}{2} \gamma_u c_u(t)$ toegevoegd, omdat behalve de lasergeïnduceerde processen de niveaus u en l ook ontvolkt worden door spontaan verval of electronbotsingen. Deze processen zijn toegevoegd middels een correctiefactor aan de rechterzijde van resp. 2.25a en 2.25b. Dit kan als volgt worden in gezien: Zonder laser zou gelden dat $d(|c_1|^2)/dt = -\gamma_1 |c_1|^2$, hetgeen het juiste exponentiele verval vertoont. Dus de sommatie voor de situatie met laser en zonder laser levert vergelijking 2.25 op. Als oplossing wordt voorgesteld $c_1(t) = \exp(i\beta t)$ met β een (complexe) frequentie. Hiermee volgt voor $c_u(t)$ (met $|R_{1u}| = |R_{u1}| = R$) de volgende uitdrukking:

$$|c_u(t)|^2 = \left[\frac{R^2}{\Omega_R \Omega_R^*} \right] \exp(-\gamma_{u1} t) \sin(\frac{1}{2} \Omega_R t) \sin(\frac{1}{2} \Omega_R^* t), \quad (2.26)$$

met $\gamma_{u1} = \frac{1}{2} (\gamma_1 + \gamma_u)$, en Ω_R de complexe "Rabi-flopping" frequentie is:

$$\Omega_R = \{ [v_0 - v - \frac{1}{2} i (\gamma_u - \gamma_1)]^2 + R^2 \}^{\frac{1}{2}}. \quad (2.27)$$

De formule 2.26 kan als volgt worden geïnterpreteerd (zie figuur 2.3). Atomen die zich aanvankelijk in de lagere toestand l bevinden zullen door het laserlicht periodiek omhoog en omlaag getild worden. Deze periodieke beweging is gerelateerd aan absorptie en gestimuleerde emissie in de statistische beschouwing (zie ook het proefschrift van Kroon die deze oscillaties heeft waargenomen in een botsingsloos systeem^(KROON85)). Maar naast de harmonische beweging is er ook een verval hetgeen door de exponent tot uitdrukking wordt gebracht. Dit verval correspondeert met de ontvolkingsprocessen, en dus het niet geïsoleerd zijn van het twee-niveau systeem. De mate waarin de atomen het bovenniveau zullen bereiken wordt daarnaast nog bepaald door de voorfactor $R^2/\Omega \Omega^*$ en deze factor geeft de invloed van het laservermogen aan, want bij een hoger vermogen zal R stijgen en de eis dat de voorfactor groot genoeg is zal aldus een ondergrens voor het vermogen leveren. Om dit kwantitatief te kunnen begrijpen, en een vergelijking te kunnen maken met de resultaten van de statistische benadering, moet

gebruik gemaakt worden van de relaties tussen het laservermogen, de grootte van R en de overgangswaarschijnlijkheid A .

Als aangenomen wordt dat de laser in de bandbreedte $\Delta\nu$ een ξ tal cavity modes heeft, dan is de relatie tussen het laservermogen en de E_0 waarde in een mode gegeven door:

$$P = \frac{1}{2} \epsilon_0 c E_0^2 O \xi, \quad (2.28)$$

waarbij O staat voor de oppervlakte van de laserbundel, ϵ_0 de diëlectrische constante en c de lichtsnelheid is. Vervolgens wordt gebruik gemaakt van de formule $R = d E_0/\hbar$ en het verband tussen de overgangswaarschijnlijkheid A en de dipoolsterkte d ^(MULLER 6).

$$d^2 = A \epsilon_0 e^{-2} c^3 \hbar \nu^{-3} / 16 \pi^3. \quad (2.29)$$

Dan levert dit voor het laservermogen

$$P = \frac{P_c}{4} \frac{R}{\Delta\nu/\xi} \frac{R}{A}, \quad (2.30)$$

waarin P_c het vermogen is uit vergelijking 2.17. Vervolgens wordt gebruik makend van (2.27) de voorfactor in (2.26) omgewerkt tot

$$\frac{R^2}{\Omega \Omega^*} = \left[\left[\frac{(\nu-\nu_0)^2}{R^2} - \frac{1}{4} \frac{(\gamma_0-\gamma_1)^2}{R^2} + 1 \right] + \frac{(\nu-\nu_0)^2 (\gamma_0-\gamma_1)^2}{R^4} \right]^{-1/2}. \quad (2.31)$$

Hierin is te zien dat de eis van een maximale amplitude impliceert dat

$$R^2 > (\nu-\nu_0) (\gamma_0-\gamma_1). \quad (2.32)$$

Eisend dat op een verstemming ter grootte van de spykeafstand $\Delta\nu/\xi$ de atomen ook voldoende opgetild worden komt men tot het kantelpunt:

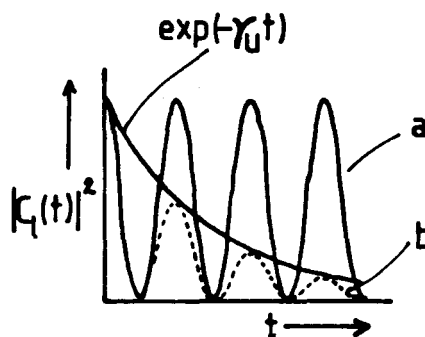
$$R^2 = \frac{\Delta\nu}{\xi} |\gamma_0-\gamma_1|. \quad (2.33)$$

hetgeen met vergelijking 2.30 betekent dat

$$P = P_c/4 (\gamma_0-\gamma_1)/A. \quad (2.34)$$

Omdat in dit geval $\gamma_0 \gg \gamma_1$ blijkt dat het dynamische model tot een vergelijkbare eis komt als de statistische benadering.

Fig. 2.3 Rabi-oscillaties in het geexciteerde systeem



De conclusie die uit bovenstaand betoog getrokken mag worden is dat de snelheid waarmee het atoom van toestand 1 naar u overgevoerd wordt door het laserveld, afhankelijk is van het vermogen van de laser (dit hangt samen met $E_0 \sim R$), de verstemming ten opzichte van ν_0 en de processen naar andere niveaus. De eis dat de geïnduceerde verandering van 1 naar u effectief genoeg verloopt geeft een eis voor het vermogen die goed vergelijkbaar is met de eis volgend uit de statistische benadering (verg. 2.17b).

2.4 Vermogenseisen

Uitgaande van het in de vorige paragrafen berekende verzadigingsvermogen en de tijdsafhankelijke respons van het atoomsysteem op een aangelegd veld, kunnen een aantal eisen worden opgesteld met betrekking tot het lasersysteem waarmee gepulste LIF-metingen gedaan kunnen worden. De eerste drie eisen vloeien voort uit de statistische beschrijving van het kritische vermogen, terwijl eis 4 betrekking heeft op de meetprocedure.

Het is zinvol om de lasers wat betreft de pulsduur in twee klassen onder te verdelen. In de eerste plaats is er de korte puls waarvan de duur korter is dan het verval van het bovenniveau. Ten tweede is er het lange pulsregime waar geldt dat de pulsduur veel langer is dan de levensduur van het bovenniveau ($\tau \gg 1/\gamma_0$). De pulsduur is dan veel langer dan de exponentiële afval in de maximale amplitude in de Rabi-oscillaties (verg. 2.26 en zie ook paragraaf 2.5).

Bovendien kan worden opgemerkt dat bij de korte puls experimenten

gekeken wordt naar het verval van de verstoring en dan zullen de eisen voor het vermogen niet zo streng zijn als bij de lange puls methode. Bij de lange puls is er het probleem dat de tijdstructuur moeilijk te meten is door de jitter in de startpuls. Derhalve moet de invloed van de laserpuls geminimaliseerd worden, en dat gebeurt als $P \gg P_c$.

Eis 1: Dominantie

Deze eis houdt in dat de processen die door de laser veroorzaakt worden dominant zijn over alle andere processen. De balans zoals die in vergelijking 2.1 is weergegeven voor de toestanden u en l geldt alleen voor spontane emissie en bijbehorende gestimuleerde emissie (fig. 2.4a). Als er ook nog andere de-excitatie processen optreden zoals botsings de-excitatie door elektronen en verval naar andere toestanden. (fig.2.4)

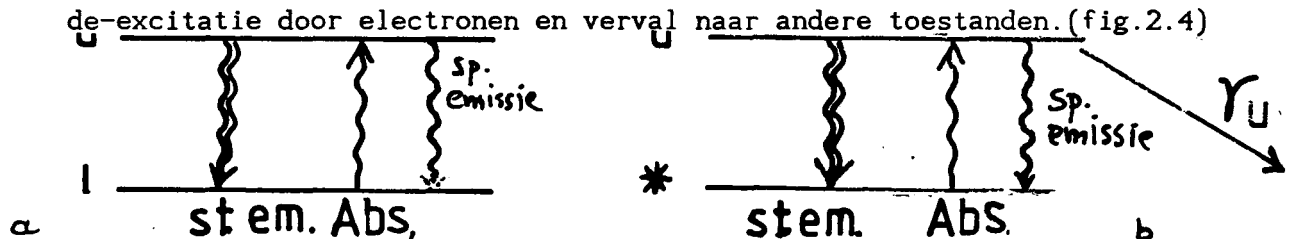


Fig. 2.4 Excitatieprocessen in tweenniveau systeem
 a zonder verval naar derden
 b met verval γ_u (=totale de-excitatie rate)

dan zal het eerder uitgerekende kritische vermogen daartoe als volgt worden gecorrigeerd:

$$P = P_c (\gamma_u/A) \tag{2.35}$$

Hierin is $\gamma_u = n_e K_u + A$ de totale vervalrequentie, met K_u de netto electronen de-excitatie "rate-konstante", van het bovenniveau. Hierin is echter aangenomen dat $\gamma_u \gg \gamma_l$. Deze factor ($= \gamma_u/A$) kan in de praktijk een factor 100 bedragen. Dit houdt in dat het vermogen uit voorbeeld 1 in paragraaf 2.2 gelijk wordt aan $P = 25$ kWatt.

Eis 2: Stijgtijd klein

Wanneer de stijgtijd langer is dan de vervaltijd dient het piekvermogen vergroot te worden zodanig dat de tijdsduur tussen het begin van de laserpuls en de tijd waarop de verzadigingsintensiteit optreedt kleiner is dan de vervaltijd van het bovenniveau. Als wordt aangenomen dat de intensiteit van de laserpuls lineair van de tijd afhangt dan betekent dit een extra correctie met een factor $\tau_s \cdot \gamma_u$ volgens:

$$P = P_c (\gamma_u/A) (\tau_s \gamma_u) \quad (2.36)$$

waarin τ_s de stijgtijd van de laserpuls is.

Eis 3: Vervaltijd klein

De vervaltijd van de laserpuls dient ook kleiner te zijn dan de vervaltijd van het bovenniveau, indien men de relaxatie van de verstoring wil kunnen meten.

Eis 4: Repetitiefrequentie hoog

Het meetproces stelt nog een vierde eis aan het lasersysteem; deze heeft betrekking op de repetitiefrequentie. Deze eis wordt aan de hand van een detectievoorbeeld duidelijk gemaakt. Bij onderstaand voorbeeld wordt er vanuit gegaan dat de tijdstructuur van het relaxatieproces volgend op de laserverstoring wordt gemeten.

Uitgaande van een bezetting $n(u)$ van het fluorescentiebovenniveau van typisch 10^{12} m^{-3} en een overgangswaarschijnlijkheid $A_u = 10^6 \text{ s}^{-1}$, zullen uit het detectievolume $V (\approx 10 \text{ mm}^3)$ alleen fotonen in de ruimtehoekfractie $\Delta\Omega/4\pi (\approx 10^{-4})$ ingevangen worden, waarvan b.v. een fractie $\chi = 0.1$ werkelijk wordt gedetecteerd. Dit leidt tot de volgende vergelijking voor het aantal per seconde getelde fotonen:

$$V n(u) A_u \chi \Delta\Omega / 4\pi = 10^5 \text{ s}^{-1}, \quad (2.37)$$

hetgeen 10^{-4} fotonen per nanoseconde betekent, of na N schoten $10^{-4} N$ per nanoseconde, met een spreiding van $10^{-2} \sqrt{N}$. Wanneer men aanneemt dat het laserpompproces de bezetting van het bovenniveau een factor x verhoogt, ($x N 10^{-4}$ fotonen per nanoseconde), dan zal om de verhoogde bezetting met een nauwkeurigheid beter dan 10 % te kunnen meten moeten gelden dat:

$$x N > 10^6. \quad (2.38)$$

Voor een verstoringfactor $x = 10$ moeten dan meer dan 100000 laserschoten worden gelost. Bij een herhalingsfrequentie van 100 Hz (een maximum voor stikstoflasers) komt dit neer op een meettijd van ongeveer 15 minuten.

Het meetproces stelt dus dat naast eisen voor vermogen en pulsduur

ook de repetitiefrequentie van groot belang is.

De metingen kunnen worden opgesplitst in twee categoriën, de gedifferentieerde vervaltijdmetingen (korte laserpuls) en de globale tijdstructuur metingen (lange laserpuls). Deze opsplitsing hangt samen met de eerder gegeven opsplitsing in laserpulsduur. Dit betekent voor vervaltijd metingen (korte-puls LIF) een pulsduur korter dan 1 nanoseconde en een vermogen van 200 kWatt. Voor lange-puls-LIF komen daarbij de eisen dat de stijg- en vervaltijden van de puls kleiner zijn dan 1 nsec. Dit blijkt in de praktijk nagenoeg onmogelijk te zijn, waardoor de lange puls experimenten enkel een globale weergave van de tijdstructuur opleveren.

Eisen als functie van de positie van het bovenniveau

Aan de laserpuls worden eigenlijk maar twee eisen gesteld. Ten eerste moeten de stijg- en vervaltijd van de laserpuls niet groter zijn dan de levensduur van het bovenniveau en ten tweede moet het vermogen groot genoeg zijn (dominantie eis). Om te bekijken hoe deze eisen afhangen van de overgang in het atomaire energieschema wordt gebruik gemaakt van waterstof schalingswetten. Deze schalingswetten geven slechts een eerste indicatie van de eisen. Voor een bepaalde specifieke overgang in een ander atoom dan waterstof kan de situatie uiteraard anders zijn.

Allereerst wordt de pulsdureis onderzocht. Aangezien de opzet van het fluorescentieexperiment is botsingsexcitaties te bestuderen, wordt aangenomen dat het bovenniveau botsingsgedomineerd is. Gebruik makend van formule 5.73 in ^(MUL86) blijkt dat voor een bovenniveau met hoofdquantumgetal p geldt dat de botsingsfrequentie gelijk is aan:

$$n_e k(p) = 2 \cdot 10^{-14} n_e p^4 \quad (2.39)$$

Hierin is p het effectief hoofdquantumgetal ($p=Z\sqrt{R_y/E_p}$), waarin E_p de energie van toestand p , R_y de Rydbergenergie en Z het atoomnummer is, en n_e de electronendichtheid. De electronentemperatuur, die overigens maar weinig invloed heeft, is gelijk genomen aan $T_e = 1$ eV. Voor een waarde $p=9$ en $n_e=10^{19} \text{ m}^{-3}$ geldt dus een botsingslevensduur van 0.8 ns.

Wil men het excitatiemechanisme met een gegeven pulsduur bestuderen dan kan men een ontlading zoeken met een geschikte n_e -waarde zodanig dat aan de vervaleisen is voldaan.

Voor een onderzoek naar het vermogen dient gerealiseerd te worden dat meestal hoog aangeslagen niveaus gepompt worden vanuit niveaus met hoofdquantumgetal $p=2$. Dit zijn de eerste aangeslagen niveaus bij edelgassen of de grondtoestand van alkali's. Deze niveaus zijn geschikt omdat de bezettingen vaak hoog zijn. Omdat de pomptovergang optisch toegestaan is wordt er gepompt naar een niveau waarvan het baanimpulsquantumgetal laag zal zijn (selectieregels). Dit zijn de zogenaamde elliptische banen, waarin het electron eens per omloop door de "core" langs de kern duikt (de "core" is de verzameling van overige electronen). In deze periheliumpassage is de overgangskans het grootst. En aangezien dit eens per omloop gebeurt kan men begrijpen dat de overgangswaarschijnlijkheid met het reciproke van de klassieke omlooptijd schaalt, hetgeen resulteert in:

$$A(p,2) \sim p^{-3}. \quad (2.40)$$

Het feit dat de klassieke omlooptijd met p^{-3} schaalt kan men als volgt inzien. De omlooptijd van een ellips is hetzelfde als die van een cirkelbaan met dezelfde energie en hiervoor geldt: $T_p = 2\pi R_p / v_p$.

Aangezien $R_p \sim p^2$ en $v_p \sim \sqrt{E_p} \sim p^{-1}$ resulteert dit in $T_p \sim p^3$.

Gebruik makend van $A(3,2) \simeq 4.5 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ voor waterstof ^(MUL86) kan gesteld worden dat:

$$A(p,2) \simeq 1.2 \cdot 10^9 p^{-3}. \quad (2.41)$$

Voor de totale ontvolkingsfrequentie zal gelden $\gamma(p) = n_e k(p) + A(p)$ dus gebruik makend van vergelijking 2.41 zal het kritisch vermogen voor de overgang moeten zijn

$$P^* \frac{\gamma(p)}{A(p,2)} = P^* (1.7 \cdot 10^{-23} n_e p^7 + 1). \quad (2.42)$$

Zo zal men voor de overgang van $p=2$ naar $p=9$ en een plasma met $n_e = 10^{19} \text{ m}^{-3}$ moeten beschikken over een vermogen van $10^3 P^* \simeq 200 \text{ kW}$, bij een laserbundeldiameter van 1 cm^2 en een bandbreedte van 0.1 nm .

2.5. Fluorescentiesignaal

Voor het fluorescentiesignaal uit het systeem in figuur 2.1 zal wanneer de laserpuls korter is dan de vervaltijd van het bovenniveau de relaxatietijd van het fluorescentiebovenniveau gelijk zijn aan deze vervaltijd (fig. 2.5).

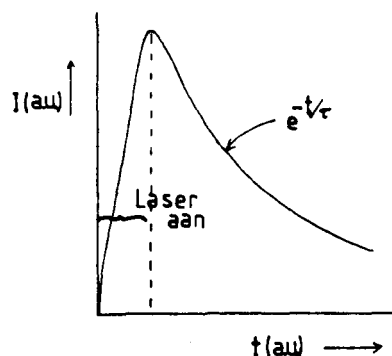


Fig. 2.5 Korte puls LIF-signaal

In wiskundige vorm betekent dit voor de vervaltijd τ :

$$\tau = 1 / (\sum A + \sum n_e \langle \sigma v \rangle) \quad (2.43)$$

Door nu de tijdstructuur van het vervalproces te meten kan men informatie verkrijgen over de botsingsfrequentie $\sum n_e \langle \sigma v \rangle$.

Om het fluorescentiesignaal bij lange puls LIF te bepalen, is een botsings-stralingsmodel (BSM-model) noodzakelijk. Een dergelijk model beschrijft de bezetting van een atomaire toestand in relatie met de botsings- en stralingsprocessen. In dit rapport wordt uitgegaan van het BSM-model beschreven door Sterenborg, Willems en van der Mullen (STE82, WIL84, MUL86).

In dit model wordt het excitatiesysteem beschouwd zoals in figuur 2.6 is weergegeven, waarin de groepsindeling zuiver op basis van de energie is gemaakt. Dit model is gebaseerd op een ion-excitatiesysteem met betrekking tot het LIF-experiment in het Ar^+ -systeem (WIL84).

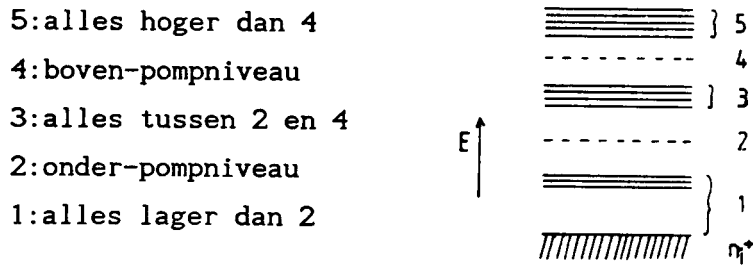


Fig. 2.6 Groepsindeling voor relevante niveaus in het LIF-proces

Uitgaande van de balansvergelijking voor de bezetting van een toestand p

$$\frac{\partial n(p)}{\partial t} + \nabla \cdot (n(p) \underline{w}_p) = \frac{\partial n(p)}{\partial t} \quad \text{bots.-stral.} \quad (2.44)$$

waarin \underline{w} de gerichte snelheid van de deeltjes p is, kan voor de niveaus 2 en 4 uit figuur 2.6 geschreven worden:

$$\frac{\partial N_2}{\partial t} = n_e \sum_{i \neq 2} N_i k_{i2} - n_e N_2 \sum_{i \neq 2} k_{2i} + \sum_{i > 2} N_i A_{i2} - N_2 A_{21} + I(t) (N_4 B_{42} - N_2 B_{24}) \quad (2.45)$$

$$\frac{\partial N_4}{\partial t} = n_e \sum_{i \neq 4} N_i k_{i4} - n_e N_4 \sum_{i \neq 4} k_{4i} + N_5 A_{54} - N_4 \sum_{i < 4} A_{4i} + I(t) (N_4 B_{42} - N_2 B_{24})$$

Hierin is de transportterm uit vergelijking 2.44 verwaarloosd omdat deze traag is ten opzichte van de botsings- stralingsprocessen en de laserpulsduur ($\sim 1 \mu\text{sec.}$). De N_i in vergelijking 2.45 geeft de bezetting van het i-de niveau weer, n_e is de electronendichtheid, k_{ij} de botsings-reactiewaarschijnlijkheid van i naar j. B_{24} en B_{42} zijn de Einsteincoëfficiënten voor respectievelijk absorptie en gestimuleerde emissie. De intensiteit van de laser is $I(t)$ en wordt verondersteld onafhankelijk te zijn van de verstemming ν , en de bandbreedte van de laser is groter dan het (Doppler) profiel van de "uit te branden" lijn. Ook wordt verondersteld dat de bezettingen van de overige niveaus (5,3 en 1) nauwelijks veranderen tengevolge van de laserstraling. Wanneer verder aangenomen wordt dat niveau 2 metastabiel is (zoals in het experiment) en dus dat $A_{21}=0$, en de intensiteit van de laserpuls

blokvormig is in de tijd, wordt met behulp van Laplacetransformaties het stelsel vergelijkingen in 2.45 opgelost. Hieruit volgt een tijdsafhankelijk verband voor de bezetting van niveau 4 zoals in figuur 2.7 (zie Willems).

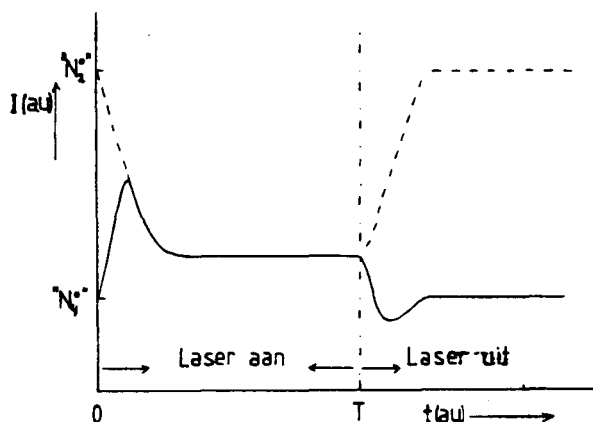


Fig. 2.7 Lange puls LIF-signaal (immers signaal $\sim N_4^0$) hierin is τ de vervaltijd uit 2.37 en N_4^0 en N_2^0 de stationaire bezettingen van de niveaus is zonder laserinstraling. Gestippeld is N_2 .

Voor enkele tijdstippen uit deze kromme zijn met Laplacetransformaties analytische vergelijkingen gevonden voor de bezetting van niveau 4. Op $t=0$ komt de laserpuls, met een intensiteit veel groter dan de kritische intensiteit, waardoor de bezettingen van de gekoppelde niveaus (per statistisch gewicht, $\eta_2=\eta_4$) aan elkaar gelijk worden (zie paragraaf 2.2). Het maximum in het fluorescentiesignaal is dan evenredig met het totaal aantal te verdelen deeltjes ($N_2^0 + N_4^0$) te vermenigvuldigen met de verhouding van het statistisch gewicht van niveau 4 en de som van de statistische gewichten van niveau 2 en 4. Dit levert de volgende vergelijking op:

$$N_4 \text{ piek} = g_4(N_2^0 + N_4^0)/(g_2+g_4). \quad (2.46)$$

Het echte verval van de piek in figuur 2.7 naar de plateauwaarde is niet meetbaar met een laser met een stijgtijd van 100 nsec. Wel blijft de plateauwaarde over die analytisch kan worden bepaald. Ook hier geldt dat de bezettingen aan elkaar gelijk zijn, maar nu zodanig dat de

gezamenlijke productie en destructie gelijk zijn.

$$N_4 \text{ plateau} = N_4^0 + \frac{(N_2^0 - (g_2/g_4) N_4^0) / n_e \sum_{i=1}^{35} k_{2i}}{\{n_e \sum_{i=1}^{35} k_{4i} + A_{43} + A_{41}\} + g_2/g_4 n_e \sum_{i=1}^{35} k_{2i}} \quad (2.47)$$

Uit de vergelijkingen 2.46 en 2.47 is af te lezen dat de piekwaarde en de plateauwaarde onafhankelijk zijn van de intensiteit van de laser. Daarbij is wel aangenomen dat deze veel groter is dan de kritische intensiteit.

In figuur 2.8b wordt een voorbeeld gegeven van een meting met een gepulste dye laser aan het Ar⁺-systeem uit figuur 2.8a (MUL86).

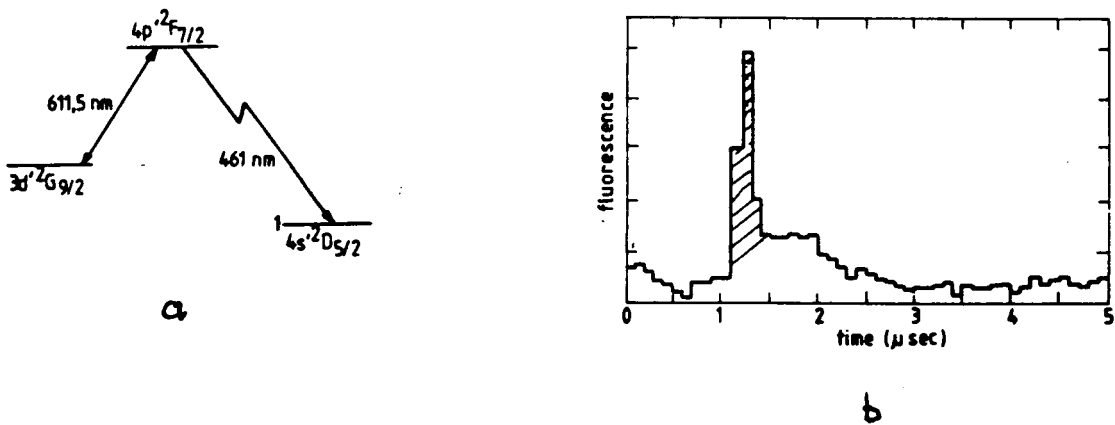


FIG 2.8 Lange puls LIF-experiment met een gepulste dye laser. a: relevante niveaus uit het Ar⁺-ion-systeem. b: Fluorescentiesignaal a.f.v de tijd.

Alleen uit de piek/plateau en piek/achtergrond waarden als functie van n_e is iets te leren over ratecoëfficiënten en de bezetting van het metastabiele onderniveau. Uit het experiment wordt ook duidelijk dat een laser geschikt is als aan de eerste drie eisen is voldaan. Men moet dan wel de waarde van n_e kunnen variëren.

3. Lasersystemen

In dit hoofdstuk zullen enkele lasersystemen met bijbehorende technieken, waarmee eventueel fluorescentie experimenten bedreven kunnen worden, worden besproken. Dit wordt vooral gedaan aan de hand van recente voorbeelden uit de literatuur.

Alvorens enkele systemen en prestaties in tabelvorm de revue te laten passeren, worden enkele technieken en begrippen zoals inversiemechanismen, Q-switching, mode-locking, cavity-dumping, synchroon pompen en injection-locking (seeding) beknopt besproken. Hierdoor ontstaat een duidelijker beeld omtrent de complexiteit en mogelijkheden van de systemen.

3.1 Inversiemechanismen

Algemeen moet in een laser inversie gecreëerd worden tussen de dichtheden van de twee laserniveaus. Dit betekent dat de bezetting van het bovenniveau groter moet zijn dan die van het onderniveau.

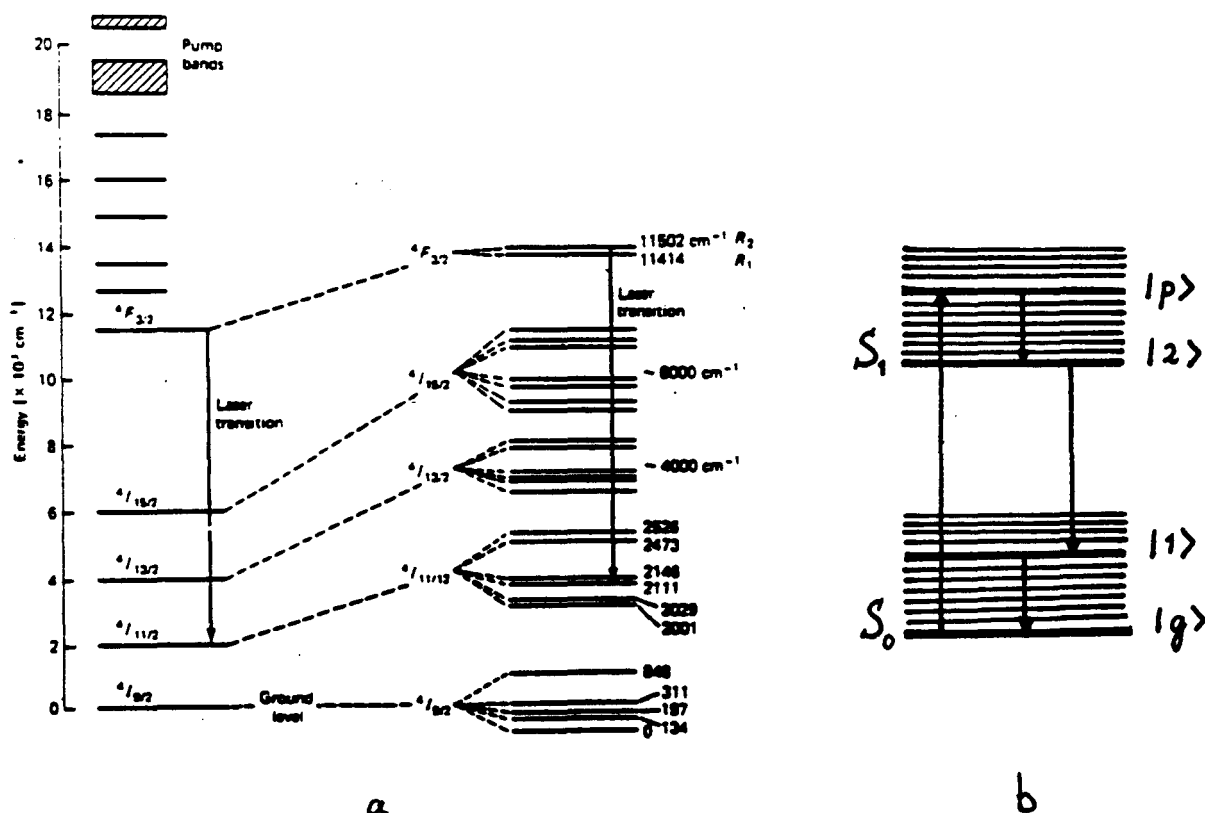


FIG 3.1 Inversie door absorptie van licht
a: Nd:YAG laser, b: Dye laser.

In de praktijk kan dit op verschillende manieren worden bereikt. Het kan onder meer door absorptie van licht (meestal breedbandig), zoals bijvoorbeeld bij kleurstoflasers (=dye lasers) of vaste stof lasers (Robijn, Nd:YAG, zie fig.3.1). Een andere methode is met een gasontlading, hetzij door elektronenbotsingen, hetzij door excitatie-overdracht tussen verschillende deeltjes of toestanden, het laserbovenniveau inverteren (bijv. He-Ne-lasers, Ar⁺-lasers, N₂-lasers, XeCl (excimeer)-lasers, CO en CO₂-lasers, zie fig. 3.2).

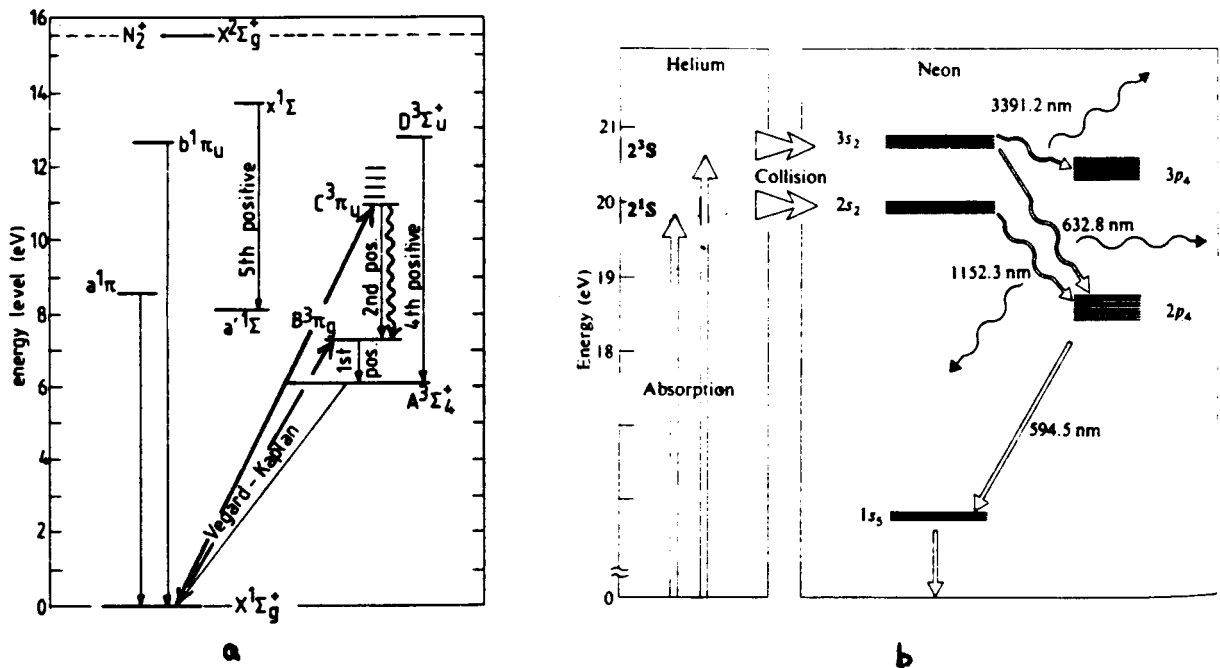


FIG 3.2 a: Inversie door elektronenbotsingen in N₂-laser.
 b: Inversie door excitatieoverdracht in He-Ne laser.

Deze lijst heeft niet de pretentie volledig te zijn, zo worden halfgeleiderlasers, vrije-electronen lasers, recombinatie lasers en Cu-damp lasers buiten deze behandeling gehouden. Deze vallen namelijk door hun inversiemechanismen, omvang en toepassingsgebied (golflengte!) buiten de context van dit rapport.

3.2 Lasertechnieken

Q-switching

Wanneer het bovenste laserniveau een lange levensduur heeft ten opzichte van de gewenste laserpulsduur kan met behulp van een pompbron energie in het medium worden opgeslagen, zolang de lasertrilkholte "niet past" (zie verder) bij de polarisatie van het laserlicht; dit betekent dat de kwaliteitsfactor Q van de resonator laag is. Kortom, er treedt geen versterking op en dus geen laserwerking. Wanneer plotseling de trilholte "passend" wordt gemaakt kan nagenoeg alle energie in enkele trilholte-rondgangen uitgestoten worden. Inversiemedia die zich bij uitstek lenen voor Q-switching zijn "glazen" staven of YAG (Yttrium Aluminum Garnet) staven gedoteerd met enkele procenten Neodimium (Nd^{3+}) ionen of zogeheten Robijn staven (Al_2O_3) gedoteerd met ongeveer 0.05 gewichtsprocenten Cr_2O_3 . De bovenste laserniveaus van de actieve componenten, Nd^{3+} - of Cr^{3+} -ionen, zijn langlevend (in de orde van 200 μsec) en kunnen alleen door roosterrelaxatie (fononen) of spontane emissie (onwaarschijnlijk) vervallen naar de grondtoestand (fig. 3.1).

Q-switching wordt in de praktijk meestal met behulp van een KD^*P kristal gedaan. Deze wordt gebruikt als electro-optische schakelaar. Een voorbeeld van de lasercavity is weergegeven in figuur 3.3.

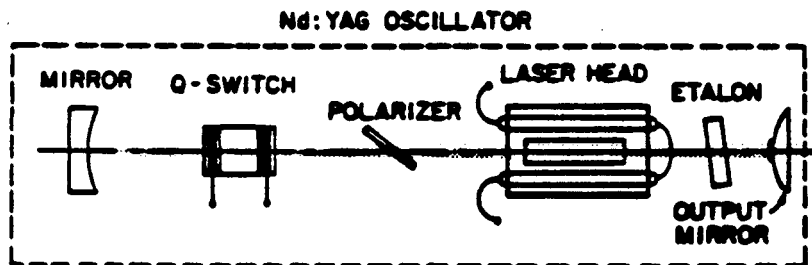
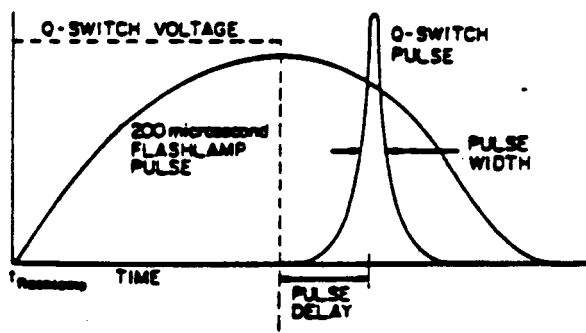


FIG.3.3 Trilholte van een Nd:YAG laser.

Onder normale omstandigheden is de kwaliteitsfactor van de resonator laag. Het licht dat door de polarisator passeert, wordt een kwart golflengte in fase gedraait. Vervolgens wordt het gereflecteert en passeert wederom het kristal. Dit betekent in totaal een faseverdraaiing

van 90° en kan het de polarisator niet passeren. Door de kwartgolflengte spanning van het kristal snel kort te sluiten treedt er geen faseverdraaiing op. De kwaliteitsfactor van de trilholte is optimaal en gestimuleerde emissie kan plaatsvinden. Voor bijvoorbeeld een Nd:YAG laser ziet het tijdsplaatje er dan uit als in figuur 3.4.

FIG.3.4 Tijdstructuur van een Nd:YAG laserpuls.



Bovenstaande kan ook worden verkregen door als Q-switch een verzadigbare kleurstof te nemen (DEW86.TSA086). Omdat deze oplossingen in het algemeen een hersteltijd hebben die korter is dan de trilholte-rondgang tijd ontstaat in feite een trein "mode-locked" pulsjes.

Mode-locking

Mode-locking betekent in feite niets anders dan dat in een continue laser (of in een laser met relatief lange puls) korte pulsjes worden gemaakt. Dit wordt mogelijk gemaakt door een acousto-optische Q-switch (≈ 82 MHz) of een verzadigbare vloeistof (S1B84.ART72.G1R73). De longitudinale modes in dergelijke lasers lopen nu alle in fase, opgelegd door de "mode-locker" (=kleurstof of acousto-optisch kristal). Op deze manier kunnen pulsduren in de orde van 6 picoseconden worden gegenereerd voor gepulste dye lasers (S1B83a.b.84) en zo'n 30 picoseconden voor Nd:YAG lasers (SZC87.DEW86). Voor een theoretische beschrijving van het mode locking proces wordt verwezen naar Sargent (SAR74) of Siegmann (S1E86).

"Cavity dumpen"

Bij "cavity dumpen" wordt een trilholte (=cavity) gebruikt waarbij de eindspiegels 100 % reflecterend zijn. Tevens wordt een acousto-optische cavity dumper intercavity geplaatst welke de opgebouwde laserenergie in zeer korte tijd de cavity uit "buigt". Het gevolg is dat er minder energie verloren gaat.

Synchroon pompen

Synchroon pompen is de lengte van de cavity van de pompbron (b.v. Ar-ion laser of 'n continue Nd:YAG laser) en die van de dye laser aan elkaar gelijk maken. Ook moet de afstand tussen de twee lasers een geheel aantal malen de pulsafstand bedragen. De "mode-locked" pulsjes zullen nu in beide lasers synchroon lopen. In tabel 3.1 wordt een vergelijking getoond van de prestaties van lasers waarin bovenstaande technieken zijn toegepast. Zie bijvoorbeeld ook Marason ^(MAR82).

	ML Ar ⁺	SP	SPCD	QMLY/SPCD
pulsduur	< 200 ps	< 2.5 ps	< 20 ps	60 ps
gem. vermogen	1.8 W	60 mW	25 mW	4.5 mW
Piekvermogen	100 W	300 W	1.5 kW	100 kW
Energie/puls	20 nJ	0.7 nJ	30 nJ	5 μ J
rep. freq.	82 MHz	82 MHz	800 kHz	900 Hz

Tabel 3.1 Richtprestaties voor lasers met bepaalde technieken:
ML = mode locken; SP = synchroon pompen; Q = Q-switchen
en Y staat voor YAG laser.

Injection-locking of seeding

Injection-locking of -seeding wordt sinds kort vooral toegepast in gepulste lasersystemen. In dit geval moet men eigenlijk spreken van

injection seeding in plaats van locking omdat de lock-in tijd in de orde van microseconden is (zie b.v. ook Siegmann)^(SIE86). Deze techniek houdt in dat een continue laserbundel exact met dezelfde polarisatie als de gepulste laser en een zeer smalle bandbreedte (t.o.v. die van de gepulste laser zonder injection seeding) in de gepulste laser wordt geschoten (fig 3.5). Nu zal de laserpuls niet vanuit "ruis" worden opgebouwd maar vanuit de aangeboden continue bundel. Hierbij is een vermogen van de continue laser in de orde van 20 mWatt voldoende (TUR75).

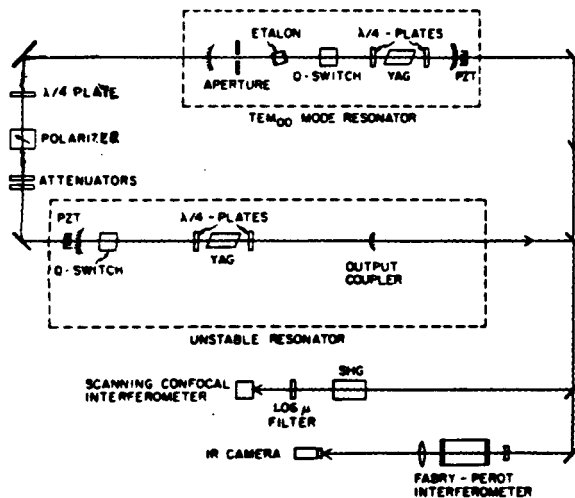


FIG.3.5 Lasersysteem met c.w. injection-seeding

Dit heeft tot gevolg dat de bandbreedte van de gepulste laser smaller wordt met behoud van energie. Een bijkomend voordeel is dat uitlijnen en afstemmen (dye laser) van de gepulste laser aanzienlijk vereenvoudigd wordt. Injection locking wordt veel toegepast in Nd:YAG lasers^(PAR84), CO₂ lasers^(BERN83, BERB86) en flitslamp gepompte dye lasers^(TUR75, OKA79).

Het belangrijkste probleem bij deze techniek is het ontkoppelen van de continue en de gepulste lasers, zodanig dat geen energie teruggekoppeld wordt in de c.w. (continuous wave) laser. Dit wordt vaak opgelost door een Faraday rotator met polarisator tussen te voegen. Dit is vooralsnog de enige methode (fig. 3.6) waarbij de heen en terugweg voor het licht niet dezelfde beginsituatie oplevert, die bovendien golflengte instelbaar is.

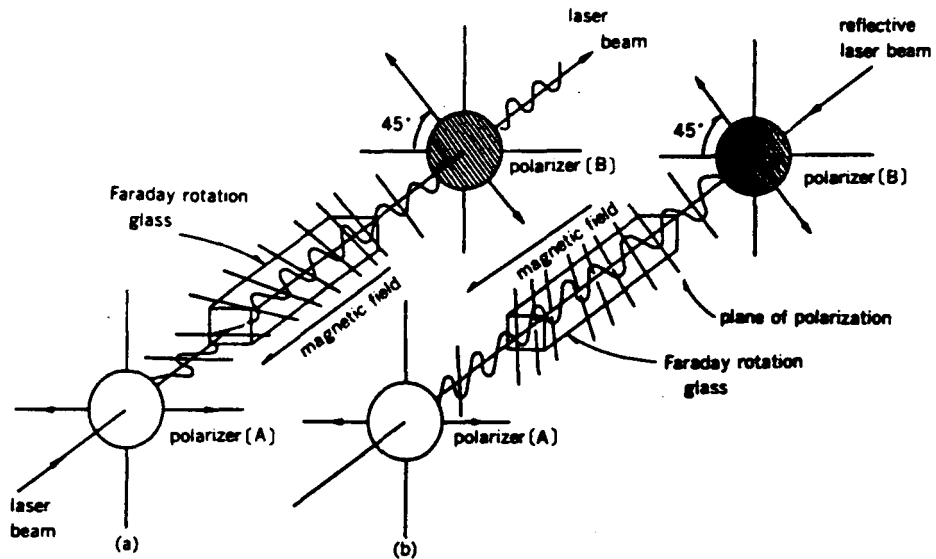


FIG 3.6 Faraday optische isolator.

Om een indruk te krijgen van de piekvermogens van eerder genoemde lasers wordt in onderstaande tabel enig vergelijkingsmateriaal aangereikt.

	YAG-gepulst	Excimeer KrF	N ₂ -laser	Fl. Lamp Dye
pulsduur	9 ns	12 ns	53 ps	150 ns
golflengte	1064 nm	249 nm	337.1 nm	300-700 nm
Vermogen	80 MW	21 MW	6 MW	2 MW
En./puls	0.7 J	250 mJ	0.3 mJ	300 mJ
rep. freq.	20 Hz	50 Hz	100 Hz	20 Hz

Tabel 3.2 Lasertabel

Omdat de stikstoflasers een gunstige laserpulsduur kunnen opleveren voor LIF-experimenten (< 1 ns, zoals uit hoofdstuk 2 volgt), is gekozen om een stikstoflaser te bouwen naar een voorbeeld van Oliveira Dos Santos ⁰¹¹⁸⁶, ook omdat dit een relatief eenvoudige en goedkope oplossing is. Deze stikstoflaser zal een dye laser gaan pompen om de gewenste golflengte te produceren.

Voor lange-puls LIF metingen zal een bestaande flitslamp gepompte

dye laser aangepast worden met een coaxiale flitsbuis (Phase-R DL 10Y).
In dit rapport zal verder dan ook aandacht worden besteed aan
stikstoflasers en gepulste dye-lasers.

4. Stikstoflasers

Stikstoflasers worden vaak gebruikt als lichtbron voor fotografie, kleurstof-laser excitatie en fluorescentie experimenten. Uit de literatuur blijkt dat de laatste vier à vijf jaar een hernieuwde belangstelling is ontstaan voor de stikstoflaser. Dit vooral doordat met nieuwe vormen van excitatiesystemen efficiëntere (tot b.v. 3% ⁽⁰¹¹⁸⁶⁾) lasers met kortere pulsduren en hogere vermogens (b.v. 6 MWatt bij 53 psec ⁽⁰¹¹⁸⁵⁾) kunnen worden gemaakt.

In dit hoofdstuk zal eerst een stuk theorie worden behandeld van het excitatiesysteem in stikstof, waarna dit gekoppeld wordt aan de ontladingsfysica met bijbehorend elektrisch excitatiesysteem. Daarna zullen de resultaten van de gerealiseerde lasersystemen worden gepresenteerd.

4.1. Theorie stikstoflasers

4.1.1. Botsings-stralingsmodel

Om meer inzicht te krijgen in het inversiemechanisme van een stikstoflaser wordt een eevoudig botsings-stralingsmodel opgesteld. In figuur 4.1 staan de niveaus weergegeven die van belang zijn voor de laserwerking, namelijk de $B^3\Pi_g$ en de $C^3\Pi_u$ toestanden en de grondtoestand $X^1\Sigma_g^+$ van het N_2 -molecuul.

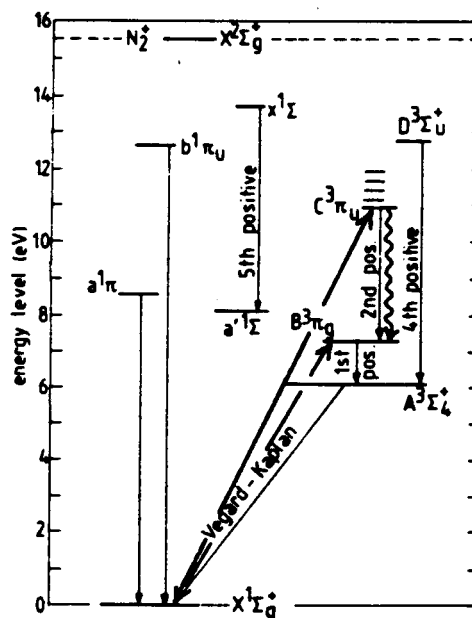


Fig. 4.1 Energie niveausysteem van stikstof

Deze elektronische toestanden zijn opgesplitst in verschillende vibratie- en rotatieniveaus. Hiertussen is laserwerking mogelijk bij drie verschillende golflengtes, waarvan de 337.1 nm lijn de sterkste is (zie tabel 4.1).

Tabel 4.1 2nd positieve laserovergangen in stikstof.
v is het vibratiequantumgetal en *I_{rel}* is de intensiteit t.o.v. de overgang van 0 naar 0.

$C^3\Pi_u$	$v = 0$	$v = 0$	$v = 1$
$B^3\Pi_g$	$v = 0$	$v = 1$	$v = 0$
$\lambda(\text{nm})$	337.1	357.7	315.9
I_{rel}	1	0.1	0.01

De bezettingen van de niveaus $C^3\Pi_u$, $B^3\Pi_g$ en $X^1\Sigma_g^+$ hierna benoemd met 3, 2, en 1 (of naar de eerste letter C, B, X) worden in een ontlading bepaald door elektronenexcitatie en de-excitatie, neutralen de-excitatie en door spontaan en gestimuleerd verval.

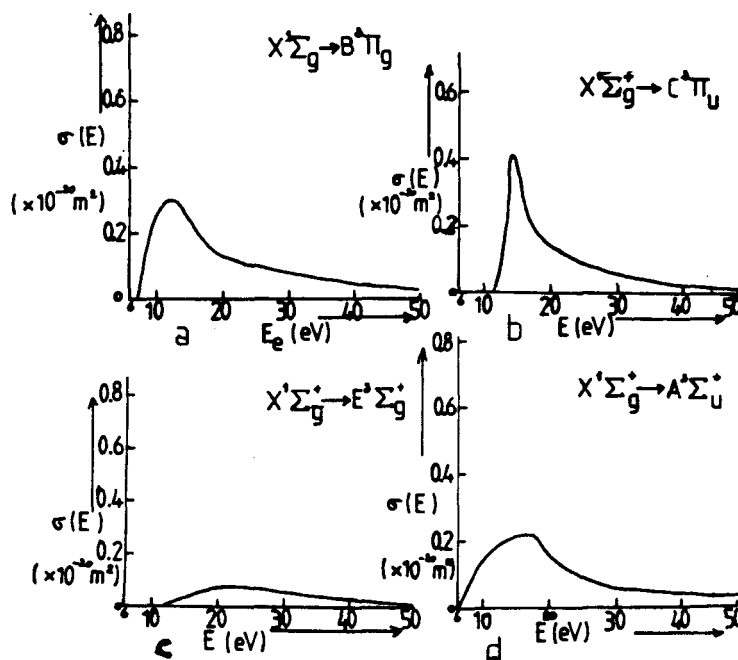


Fig. 4.2 Botsingsdoorsnedes voor elektronische excitatie door elektronenbotsingen als functie van de elektronenenergie *E*.

- a $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow C^3\Pi_u$
- b $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow B^3\Pi_g$
- c $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow A^3\Pi_u$

Alvorens een model op te stellen wordt getracht een beeld te geven

van de processen die in het stikstoflasersysteem van belang zijn. Hiertoe dienen enkele afschattingen gemaakt te worden omtrent de grootte van de ont- en bevolkingsprocessen. De botsingsdoorsnedes voor elektronische excitatie van de grondtoestand naar de toestanden $C^3\Pi_u$, $B^3\Pi_g$ en $A^3\Pi_u$ zijn geschetst in figuur 4.2 ^(CR184).

Als men de botsingsdoorsnedes als functie van de energie van de drie eerste overgangen met elkaar vergelijkt ziet men dat de botsingsdoorsnede van de X-C overgang de grootste maximale waarde heeft, en dat deze sterk gepiekt is bij de drempelenergie. Daar staat tegenover dat de drempelenergie vrij groot is, maar bij voldoende hoge T_e waarde zal dit nadeel niet meer belangrijk zijn. Men kan aantonen dat voor $T_e > 3$ eV de overgang X-C een ratecoëfficiënt heeft die groter is dan die van beide andere overgangen.

Alle niveaus hoger dan C zullen niet of nauwelijks invloed hebben op de bezettingen van B en C omdat de botsingsdoorsnedes laag zijn (zie fig. 4.2 voor de overgang $X^1\Sigma_g^+$ naar $E^3\Sigma_g^+$) en bovendien zijn de drempelenergieën groot.

Optisch verval in het excitatiesysteem van het stikstof molecuul is alleen van belang voor de stralende overgangen van C naar B ($\tau = 35 - 41$ nsec voor $\nu = 0,1,2$ "2nd positive") en voor de "4th positive" band van D naar B ($\tau = 14$ nsec). De "1st positive" band (overgangen van B naar A) is voor $\nu = 0-12$ langlevend ($\tau = 5$ μ sec), terwijl de vervaltijd van A naar de grondtoestand 1 à 2 seconden bedraagt.

Ook de-excitatie van de niveaus door botsingen met neutrale grondtoestand deeltjes is van belang. Hierbij geldt echter dat de neutralentemperatuur T_0 veel lager is dan de electronentemperatuur ($T_0 \approx 0.03$ eV). Dit betekent dat geen excitatie (omhoog) door de neutrale deeltjes zal plaatsvinden. Uit resultaten van Hasegawa, geldig voor een inductief gekoppeld plasma met $T_0 = 0.4$ eV kan worden bepaald dat alleen de de-excitatie van C naar B ($k \approx 4.7 \cdot 10^{-11}$ cm³/s bij $T_0 = 0.4$ eV) belangrijk is en groter is dan die van B naar A ($k \approx 7.5 \cdot 10^{-12}$ cm³/s) ^(HAS87). Het is te verwachten dat dit ook geldt voor de lagere gastemperatuur in de stikstoflaser.

Het botsings-stralingsmodel kan nu worden opgesteld, waarbij vereenvoudigingen zijn gemaakt op basis van de bovengenoemde veronderstellingen en afschattingen. Het simpele model gaat dus uit van het 1-2-3 systeem waarbij alleen de produktie van 3 door excitatie

vanuit 1 van belang is ($T_e > 3 \text{ eV}$) en 2 via 3 bevolkt wordt. Andere niveaus doen niet mee. De tijdsafhankelijkheden van 2 en 3 zien er nu als volgt uit.

$$\frac{d n_3}{d t} = n_e n_1 \langle \sigma v \rangle_{13} + n_e n_2 \langle \sigma v \rangle_{23} - n_e n_3 \langle \sigma v \rangle_{32} - n_1 n_3 \langle \sigma v \rangle_g +$$

$$- [n_3 - (g_3/g_2)n_2] \rho(\nu) B_{32} - n_3 A_{32}.$$

$$\frac{d n_2}{d t} = n_e n_3 \langle \sigma v \rangle_{32} - n_e n_2 \langle \sigma v \rangle_{23} + n_1 n_3 \langle \sigma v \rangle_g +$$

$$+ [n_3 - (g_3/g_2)n_2] \rho(\nu) B_{32} + n_3 A_{32}.$$

(4.4)

Hierin zijn n_1 , n_2 en n_3 de bezettingen van respectievelijk de niveaus 1, 2 en 3, zoals die hierboven zijn gedefinieerd, n_e is de electronendichtheid, $\langle \sigma v \rangle_{ij}$ de electronen- (de) excitatiecoëfficiënten en A_{ij} , B_{ij} de Einsteincoëfficiënten voor spontane- en gestimuleerde emissie en absorptie. De stralingsdichtheid wordt weergegeven door $\rho(\nu)$ en de g_i zijn de statistische gewichten van de toestanden i . De transporttermen, ionisatie- en recombinatietermen zijn verwaarloosbaar op de laser tijdschaal en de tijdschaal corresponderend met de electronen (de)excitatie.

Wanneer vergelijkingen 4.4 worden beschouwd voor een kleine t , zodanig dat nog geen laserwerking optreedt ($\rho(\nu)=0$), dan kunnen de differentiaalvergelijkingen worden opgelost door de vergelijkingen op te tellen en dan te integreren (aangenomen wordt dat $dn_e/dt=0$ is):

$$n_3 + n_2 = n_e n_1 \langle \sigma v \rangle_{13} t. \quad (4.5)$$

Deze vergelijking kan worden ingevuld in vergelijking 4.4a en dit levert na integreren (en de vereenvoudiging $\exp -t = 1-t+t^2/2$) n_3 en dus met vergelijking 4.5 ook n_2 :

$$n_3 = n_e n_1 \langle \sigma v \rangle_{13} t - \frac{1}{2} n_e n_1 \langle \sigma v \rangle_{13} (n_e \langle \sigma v \rangle_{32} + A_{32} + n_1 \langle \sigma v \rangle_g) t^2,$$

$$n_2 = \frac{1}{2} n_e n_1 \langle \sigma v \rangle_{13} (n_e \langle \sigma v \rangle_{32} + A_{32} + n_1 \langle \sigma v \rangle_g) t^2. \quad (4.6)$$

Omdat voor laserwerking inversie noodzakelijk is ($n_3 > n_2$), kan uit

vergelijking 4.6 de conclusie getrokken worden dat inversie optreedt zolang t voldoet aan:

$$t < 1/(n_e \langle \sigma v \rangle_{32} + A_{32} + n_1 \langle \sigma v \rangle_g), \quad (4.7)$$

hetgeen oplevert dat de inversieduur maximaal gelijk is aan de spontane emissielevensduur van het $C^3\Pi_u$ ($\tau_0 = 1/A_{32} = 36$ nsec). Anders geschreven levert dit voor de levensduur τ :

$$\tau < \tau_0 / [1 + \tau_0(n_e \langle \sigma v \rangle_{32} + n_1 \langle \sigma v \rangle_g)], \quad (4.8)$$

waarmee volgt dat bij een druk van 100 torr de maximale inversieduur zo'n 18 nsec bedraagt (met de electronendichtheid gelijk aan nul). De electronen de-excitatie van het $C^3\Pi_u$ niveau wordt belangrijker dan die van spontane emissie wanneer met $\langle \sigma v \rangle_{32} = 6.2 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ voor de electronendichtheid n_e geldt ^(HAS87):

$$n_e > A_{32} / \langle \sigma v \rangle_{32} \approx 4 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}. \quad (4.9)$$

Als conclusie kan worden getrokken dat voor inversie in het N_2 -molecuul een hoge electronentemperatuur nodig is, en de pulsduur wordt beperkt door de dichtheden van de N_2 -moleculen en de electronendichtheid.

4.1.2. Gepulste gasontlading

Alvorens een koppeling te kunnen maken tussen de deeltjesbalans, de laserwerking en het elektrisch circuit, wordt eerst de gepulste gasontlading besproken. Als benadering wordt uitgegaan van de fysica van een Townsend ontlading. De stationaire Townsend ontlading wordt gekarakteriseerd door het ontbreken van ruimtelading van enige omvang, zodat het veld alleen bepaald wordt door de aangelegde spanning. Men kan zich de vraag stellen of het gerechtvaardigd is uit te gaan van een dergelijke ontlading in een gepulste gasontladingslaser zoals de stikstoflaser, omdat de electronendichtheden in de ontlading van de stikstoflaser veel hoger zijn dan in een stationaire Townsend ontlading, waarin naast de electronendichtheid ook de stroomsterkte laag is (fig. 4.3). Door de korte tijdschaal van de ontlading in de laser kunnen zich, door de traagheid van de ionen, geen aanzienlijke hoeveelheden ionen

ophopen voor de kathode, waardoor ook deze ontleding wordt gekarakteriseerd door het ontbreken van ruimtelading. Zeker het begin van de ontleding kan men met behulp van de vergelijkingen voor een Townsend ontleding bestuderen.

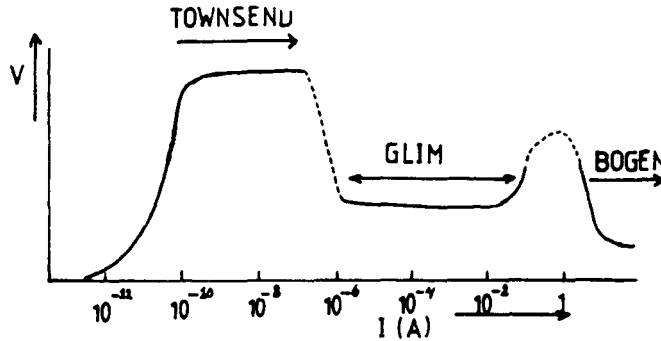


Fig 4.3 V-I karakteristiek voor een ontleding

De electronen in een stikstofontleding zijn nagenoeg in fase met het wisselende elektrische veld, omdat de relaxatietijd kort is ten opzichte van de excitatieprocessen en de laserpulsduur, immers de Langevinrelaxatietijd bedraagt $\tau = m_e v_d / eE \approx 10$ ps, waarin E het elektrische veld, m_e de electron rustmassa, v_d de driftsnelheid van de electronen en e de elementaire lading is.

Uitgaande van een ontleding tussen twee vlakke evenwijdige platen kan een uitdrukking worden gevonden voor de electronendichtheid.

Het aantal ionisaties per tijdseenheid en per volumeeenheid door de electronen met een snelheid tussen v_e en $v_e + dv_e$ is gegeven door

$$n_e(v_e) v_e \sigma_i(v_e) n_1 dv_e \tag{4.10}$$

waarin $n_e(v_e)dv_e$ de dichtheid van de betreffende electronen is, n_1 de neutralendichtheid en $\sigma_i(v_e)$ de ionisatiedoorsnede. Het totale aantal ionisaties per volume per tijdseenheid is dan:

$$n_1 \int_0^\infty n_e(v_e) v_e \sigma_i(v_e) dv_e \equiv n_1 n_e k^{ion} \tag{4.11}$$

met

$$k^{ion} \equiv \frac{\int_0^\infty n_e(v_e) v_e \sigma_i(v_e) dv_e}{\int_0^\infty n_e(v_e) dv_e} \tag{4.11a}$$

Wanneer het electronengas met een driftsnelheid v_d in het veld beweegt dan zal het aantal ionisaties per eenheid van afgelegde weg per electron gelijk zijn aan

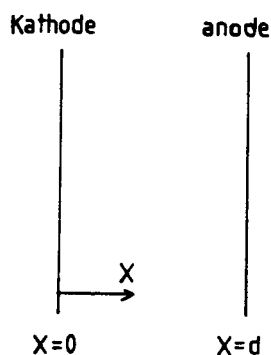
$$\frac{n_1 k^{ion}}{v_d} = \alpha. \quad (4.12)$$

De grootheid α heet ook wel de primaire Townsend coëfficiënt. Dus na een weglengte Δx is de electronendichtheid toegenomen met:

$$\Delta n_e = \alpha n_e(x) \Delta x, \quad (4.13)$$

waarin x de richting is loodrecht op de platen (fig. 4.4).

Fig. 4.4 Ontlading tussen twee vlakke platen met op $x=0$ de kathode en op $x=d$ de anode



De diffusie van de electronen is hierin verwaarloosd. Uit vergelijking 4.13 ontstaat dan de volgende uitdrukking:

$$\frac{d n_e}{dx} = \alpha n_e. \quad (4.14)$$

Met $dx/dt = v_d$ wordt dit:

$$\frac{d n_e}{dt} = \alpha v_d n_e. \quad (4.15)$$

De geleidbaarheid van het plasma is dan op elk tijdstip t :

$$\sigma = \frac{e n_e(t) v_d(t)}{E(t)}, \quad (4.16)$$

en dus voor de weerstand van de ontlading:

$$R_g(t) = \frac{d}{s W \sigma} . \quad (4.17)$$

Hierin is d de afstand tussen de electrodes, s de dikte van de ontlading en W de lengte van de electrodes. Het elektrisch veld tussen de electrodes is dan:

$$E = 1/d \left(I R_g(t) + \epsilon L \frac{dI}{dt} \right), \quad (4.18)$$

waarin ϵ de verhouding is tussen de afstand tussen de electrodes en de omtrek van de stroomlus in de buis.

4.1.3. Formule van Townsend en de Paschenwet

De manier waarop een Townsendontlading in stand wordt gehouden kan worden afgeleid uit de produktie van electronen uit de electrodes (fig 4.4).

Uitgaande van de deeltjesbalans in vergelijking 4.13 voor de electronen kan voor de electronendichtheid worden geschreven:

$$n_e = n_e(0) e^{\alpha x}, \quad (4.19)$$

met $n_e(0)$ de electronendichtheid aan de kathode, en x de positie ten opzichte van de kathode. De electronenstroomdichtheid wordt dan:

$$j_e(x) = j_e(0) e^{\alpha x}. \quad (4.20)$$

Uit vergelijking 4.19 volgt dat elk electron dat van de kathode vertrekt aanleiding geeft tot de creatie van $(e^{\alpha d} - 1)$ ion-electron paren. De meeste ionen zullen naar de kathode gaan. Bij botsing tegen de kathode kan een secundair electron ontstaan. Maar ook kunnen ionen en electronen recombineren. Het foton en/of metastabiel die daarbij ontstaat kan ook de kathode treffen en bijdragen tot de secundaire stroom. Omdat de creatie van secundaire electronen aldus evenredig is met het aantal ion-electron paren dat door de primaire electronen is gecreëerd kan men

laten zien dat voor de secundaire electronenstroombichtheid bij de kathode geldt:

$$j^s(0)/j^p(0) = \Gamma (e^{\alpha d} - 1). \quad (4.21)$$

Hierin is Γ de secundaire Townsend coëfficiënt. Het zal duidelijk zijn dat er doorslag zal optreden als $\Gamma(\exp(\alpha d) - 1) \geq 1$. De ontlading is dan zelfstandig. Uit het grensgeval:

$$\Gamma (e^{\alpha d} - 1) = 1, \quad (4.22)$$

kan men een relatie afleiden voor de doorslagspanning V en het produkt van gasdruk (of dichtheid) en de plaaafstand. Daarbij wordt gebruik gemaakt van de empirische relatie:

$$\alpha = C N f(E/N), \quad (4.23)$$

waarin C een empirische gasafhankelijke parameter is, en N de gasdichtheid. De term $f(E/N)$ is een functie die alleen afhangt van E en N . Gebruik makend van $\exp(\alpha d) \gg 1$ vindt men dat $\alpha d = \ln(1/\Gamma)$ en dus dat

$$C N d f(V/Nd) = \ln(1/\Gamma). \quad (4.24)$$

Hierbij is gebruik gemaakt van de relatie $V=Ed$. Bovenstaande vergelijking laat zien dat de doorslagspanning slechts afhankelijk is van het produkt van dichtheid en electrode afstand. Dit is de zogenaamde Paschenwet. Wanneer met behulp van vergelijking 4.24 de doorslagspanning tegen het produkt van de gasdichtheid en de plaaafstand uitzet dan zal er een minimum ontstaan (fig.4.5).

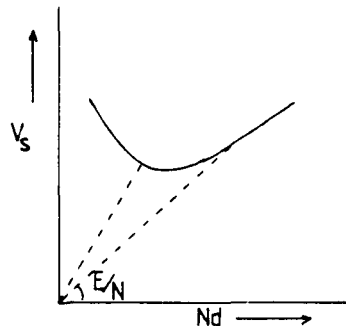


Fig. 4.5 Paschenkromme

De Paschenwet is een schaalwet die zeer handig is om de ontsteking van het begin van de ontlading in stikstoflasers te karakteriseren. Wanneer bijvoorbeeld de electrode afstand een factor ζ groter gemaakt wordt zal

de druk p een zelfde factor verkleind moeten worden om een gelijke doorslagspanning te krijgen. Dat betekent ook dat de effectieve veldsterkte, ofwel de energie die een electron wint tussen twee botsingen in, hetzelfde is gebleven. Ook zijn de driftsnelheid en de Townsendcoëfficiënt gedeeld door de druk functies van het effectieve veld E/p . Voor stikstof zijn deze in het gebied $20 < E/p < 150$ V/cm torr gegeven door ^(FIT76):

$$v_d = 2.9 \cdot 10^5 (E/p) \quad [\text{cm/s}] \quad (4.26)$$

$$\alpha/p = 1.4 \cdot 10^{-8} (E/p)^{3.7} \quad [\text{torr}^{-1} \text{cm}^{-1}] \quad (4.27)$$

De laatste vergelijking is een andere schrijfwijze voor vergelijking 4.23, de eerder gegeven empirische benadering. De electronentemperatuur T_e is met kennis van ionisatiedoorsnedes als volgt te beschrijven:

$$kT_e = 0.11 (E/p)^{0.8} \quad [\text{eV}] \quad (4.28)$$

4.1.4. Elektrisch excitatiesysteem

Een elektrisch excitatiesysteem bestaat in het algemeen uit een vonkbrug (spark-gap), een laadcapaciteit en een ontladingsbuis. Er zijn twee circuits die zeer frequent gebruikt worden voor stikstoflaserexcitatie, namelijk het zogenoemde Blumlein circuit en het "Capacity-transfer" of C-C systeem (fig. 4.6).

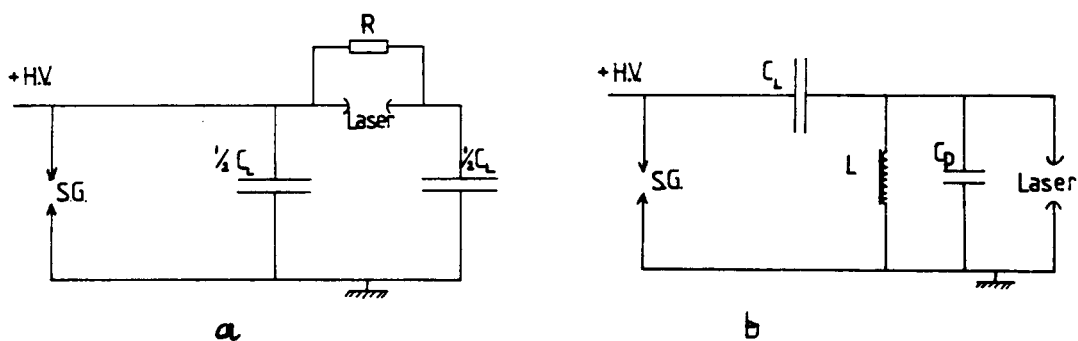


Fig. 4.6 a Blumlein circuit
 b Capacity-transfer (C-C) systeem

Het klassieke Blumleincircuit is meestal opgebouwd uit twee vlakke

condensatoren in de vorm van transmissielijnen. Deze condensatoren worden opgeladen tot een spanning V_0 en ontladen op het moment dat de vonkbrug wordt geschakeld. Zo lang geen doorslag optreedt in het laserkanaal, kan worden afgeleid dat de spanning over de laserelectroden V_L als volgt is:

$$V_L = V_0 \left[1 - e^{-t/\tau} \left[\left(\frac{R_s}{2 \omega_1 L_s} \right) \sin \omega_1 t + \cos \omega_1 t \right] \right], \quad (4.29)$$

waarin R_s en L_s de weerstand respectievelijk de zelfinductie zijn van de vonkbrug, $\tau = 2 L_s/R_s$ is de dempingstijdconstante en $\omega_1 = (\omega_0^2 - (1/\tau)^2)^{1/2}$, met $\omega_0 = \sqrt{1/L_s C_L}$ de oscillatiefrequentie. De laadspanning wordt weergegeven door V_0 . De vergelijking kan worden doorzien wanneer bedacht wordt dat gedurende de ontlading van de vonkbrug de spanning op de rechterelectrode (fig.4.6) gelijk blijft aan V_0 . Dan kan de spanning op de andere electrode bepaald worden uit de onderstaande differentiaalvergelijking die de oscillatie in de linkertak van het Blumleincircuit beschrijft:

$$L_s \frac{dI_s}{dt} + R_s I_s = V_0 - \frac{1}{C_L} \int_0^t I_s dt'. \quad (4.29b)$$

In het ideale geval dat de weerstand van de vonkbrug gelijk aan nul is ($R_s = 0$ en dus $\omega_1 = \omega_0$) kan de spanning over de electrodes oplopen tot $2V_0$, mits de ontkoppelweerstand R tussen de laadcapaciteiten C_L groot genoeg is, en dus op het moment van schakelen als oneindige weerstand beschouwd mag worden. De oscillatiefrequentie wordt voornamelijk bepaald door de inductie van de linkerhelft van het circuit (fig. 4.6) en de grootte van C_L . Het voordeel van een Blumlein circuit opgebouwd met transmissielijnen (b.v. dubbelzijdige printplaten) is een hoge oscillatiefrequentie en de dubbele laadspanning over de electrodes.

Voor het C-C-circuit is een soortgelijke vergelijking als 4.29 af te leiden. Dit heeft als resultaat:

$$V_L = V_0 \left[\frac{C_L}{C_L + C_p} \right] \left\{ 1 - \cos \sqrt{(C_L+C_p)/LC_L C_p} t \right\}. \quad (4.30)$$

Deze oplossing is vrij eenvoudig als volgt te interpreteren. De

laadcapaciteit wordt na te zijn opgeladen, ontladen via de piekcondensator en de vonkbrug (zie fig. 4.6). Na schakelen zijn deze in serie geschakeld waardoor de oscillatiefrequentie bepaald wordt door de kleinste condensator. Het opzweepen van de spanning tot tweemaal de laadspanning, wanneer de verhouding C_L/C_p groot genoeg is, kan men begrijpen doordat de hoeveelheid lading uit de grote condensator zich aanvankelijk wil ophopen in de kleine, doordat het circuit een, weliswaar kleine, inductie heeft. Serafetinides beweert echter dat een verhouding $C_L/C_p=0.38$ optimaal is ^(SER87) (Zijn publikatie uit 1986 waar hij naar refereert is nog niet uitgekomen).

Het ontladen over het laserkanaal wordt dan volgens Fitzsimmons beschreven door de volgende differentiaalvergelijking ^(FIT76):

$$L \frac{di}{dt} + i(R_g + Z_0) = V_{eff}, \quad (4.31)$$

$$\text{met } V_{eff} = V_0 (1 - e^{-t/\tau} \cos \omega t) - \frac{1}{C_L} \int_0^t i dt', \quad (4.32)$$

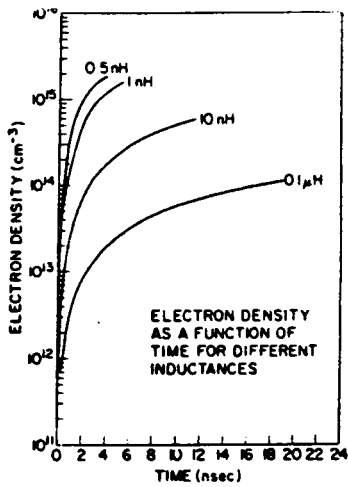
waarin nu L de totale inductie van de laserbuis is, R_g de eerder in dit hoofdstuk genoemde tijdafhankelijke plasmaweerstand, Z_0 de karakteristieke impedantie van de transmissielijn en V_{eff} de open circuit spanning verminderd met een term die de ontlading van de rechterhelft van het Blumleincircuit beschrijft (fig. 4.6). Voor het C-C systeem ontstaat eenzelfde soort vergelijking.

Ali echter lost niet eerst de open circuit vergelijking op maar start met de volgende differentiaalvergelijking ^(ALI67):

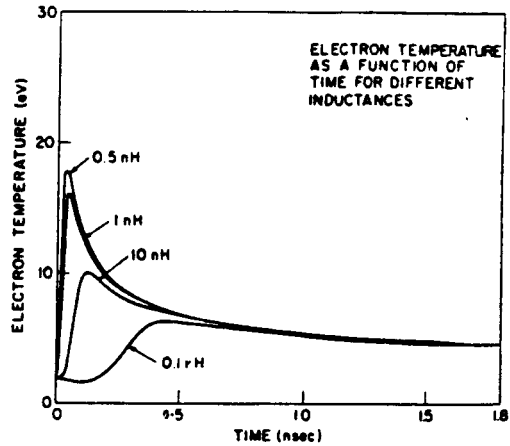
$$L \frac{di}{dt} + (R_g + R_e) i = V_0 - \frac{1}{C_L} \int_0^t i dt', \quad (4.33)$$

waarin nu L de totale inductie is van het ontladcircuit en R_e een vaste circuitweerstand is.

Door substitutie van de in paragraaf 4.1.2 gegeven tijdafhankelijke laserweerstand heeft Ali enkele resultaten behaald die zijn weergegeven in de figuren 4.7 en 4.8 ^(ALI69). Hieruit zijn enkele nuttige ontwerptips te bepalen. Wel moeten de absolute waarden niet alle stringent worden genomen omdat deze gelden voor de laserconfiguratie van Ali.



a



b

Fig. 4.7 a Electronendichtheid a.f.v. de circuitinductie en de tijd en b electronentemperatuur a.f.v. de inductie en de tijd.

Uit figuur 4.7a is bijvoorbeeld af te lezen dat de electronendichtheid sneller groeit naarmate de inductie van het electrisch ontladcircuit afneemt. Dit betekent dan dat de electronen-deexcitatie bij een inductie van 1 nH al na 2 nsec de overhand krijgt ten opzichte van spontane emissie en dus zal dan een einde komen aan de laserwerking. Dit tijdstip kan natuurlijk door andere electrodevormen te kiezen vervroegd of verlaat worden. Figuur 4.7b geeft de electronentemperatuur weer in de ontlading waaruit blijkt dat bij zeer lage inducties ionisatie sterk toeneemt (de ionisatieenergie van stikstof is ongeveer 16 eV).

Fitzsimmons heeft aan de hand van vergelijking 4.31 en 4.32 gelijksoortige berekeningen uitgevoerd, welke in de volgende paragraaf (Electro-optisch systeem) worden gepresenteerd. Overigens gaat hij uit van een vaste druk in de laserbuis (65 torr) en een vaste laadspanning van 19 kV en vaste maar bekende circuitparameters zoals de circuitimpedantie.

4.1.5. Electro-optisch systeem

Nadat uit de weerstand van de ontlading de tijdsafhankelijke electronendichtheid bepaald is kan het totale electro-optische systeem worden afgerond door ook de laseroutput te berekenen. Dit kan door het volgende stelsel differentiaalvergelijkingen op te lossen, waarin gebruik is gemaakt van het feit dat de statistische gewichten van de niveaus B en C aan elkaar gelijk zijn ^(ALI67.FIT76):

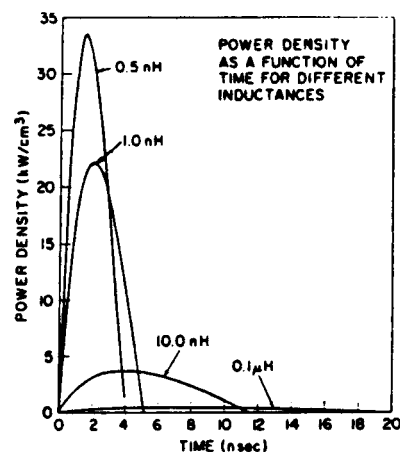
$$\frac{d n_3}{dt} = n_e n_1 \langle \sigma v \rangle_{13} - (n_3 - n_2) \rho(\nu) B_{32} - n_3 A_{32}$$

$$\frac{d n_2}{dt} = n_e n_1 \langle \sigma v \rangle_{12} + (n_3 - n_2) \rho(\nu) B_{32} + n_3 A_{32} - n_2 A_{21}$$

$$\frac{d n_f}{dt} = (n_3 - n_2) \rho(\nu) B_{32} + n_3 A_{32}, \quad (4.34)$$

waarin n_f de fotonendichtheid is. De uitgangsvermogensdichtheid is dan $P = (n_3 - n_2) \rho(\nu) B_{32} E_f$, waarin E_f de fotonenenergie is. Uit de bovenstaande vergelijkingen blijkt dat Fitzsimmons en Ali electronendeexcitatie van de niveaus 2 en 3 verwaarlozen. Het resultaat van Ali wordt weergegeven in figuur 4.8, waaruit weer volgt dat de pulsduur korter wordt naarmate de zelfinductie kleiner wordt.

Fig.4.8 Laseroutput a.f.v. de tijd en de inductie.



Fitzsimmons' numerieke berekeningen voor het Blumleinsysteem en het C-C systeem leveren soortgelijke plaatjes op (fig. 4.9 a en b). Hieruit is wederom af te lezen dat de electronendichtheid en de gereduceerde veldsterkte E/p de laseroutput bepalen in tijd en energie.

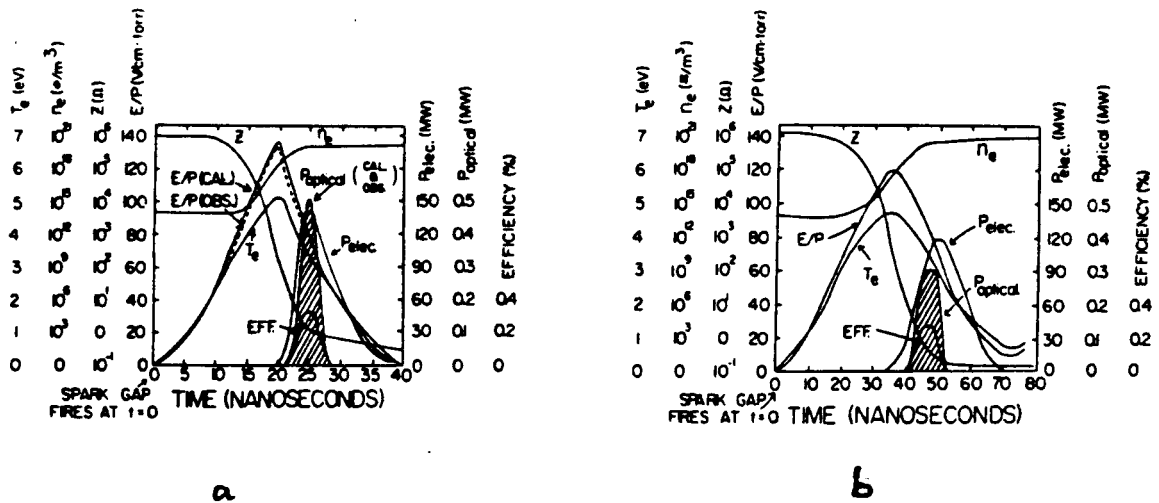


Fig 4.9 a Resultaten voor het Blumleincircuit
b Resultaten voor het C-C systeem.

4.1.6. Diffusie en recombinatie

De vervalprocessen voor de ionen, zoals diffusie en recombinatie zijn tijdens een laserpuls niet van belang. Echter, de tijdsduur tussen twee laserpulsen waarop deze processen plaatsvinden kunnen wel van belang zijn bij hogere repetitiefrequenties vanaf 10 Hz.

Het vervalproces van de ionen kan als volgt worden beschreven:

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} = -\alpha n_i^2 + D_a \nabla^2 n_i, \quad (4.35)$$

waarin α de recombinatiecoëfficiënt is en D_a de ambipolaire diffusie coëfficiënt. Aangenomen is bovendien dat de electronendichtheid gelijk is aan de ionendichtheid ($n_e = n_i$). Wanneer alleen de diffusie term belangrijk is dan kan vergelijking 4.35 omschreven worden tot:

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} = -n_i/\tau, \quad (4.36)$$

waarin τ een diffusievervaltijd is. De oplossing hiervan is dan :

$$n_i = n_{i0} e^{-t/\tau}. \quad (4.37)$$

Maar als alleen recombinatieprocessen een rol spelen geldt dat:

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} = -\alpha n_i^2, \quad (4.38)$$

waarvan de oplossing luidt:

$$1/n_i = 1/n_{i0} + \alpha t. \quad (4.39)$$

Omdat de diffusiecoëfficiënt afneemt bij toenemende druk (immers $D_\alpha \sim \langle \lambda_v^2 \rangle / \tau_c$, waarin λ_v de vrije weglengte is en τ_c de botsingstijd) en recombinatie dan juist toeneemt zal bij lage druk het diffusievervalproces bepalend zijn en bij hogere drukken juist de recombinatieprocessen.

De recombinatiecoëfficiënt kan bij lage druk (≤ 50 torr) slechts $10^{-12} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$ bedragen, terwijl deze tussen zo'n 50 en 90 torr 10^{-6} à $10^{-7} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$ kan zijn ^(PER87). De diffusietijd in beide eerdergenoemde drukregimes bij hoge repetitiefrequenties vanaf 15 Hz is in de orde van 20 msec ^(PER87). Diffusie en recombinatie zijn dus in stikstoflasers wel degelijk van belang wanneer de repetitiefrequentie verandert wordt. Deze processen hebben invloed op de doorslagspanning en het laservermogen en dienen dan ook, strikt genomen, als een van de repetitiefrequentie afhankelijke beginvoorwaarde ingebouwd te worden. (Voor een uitgebreide behandeling zie Persephonis ^(PER87)).

5. Resultaten stikstoflasers

5.1 Blumlein laser

Als start is een stikstoflaser gemaakt door een groep studenten in het kader van een tweede jaarsproject^(TP87), volgens een Blumlein excitatie circuit (fig. 5.1), met als doel de ontlading tussen de electrodes homogeen te maken. Dit blijkt namelijk een probleem te zijn, vooral bij drukken hoger dan 0.2 atmosfeer. De homogeniteit is sterk afhankelijk van de electrodeafstand, de totale circuit inductie (matching), gasdruk en electrodevormen.

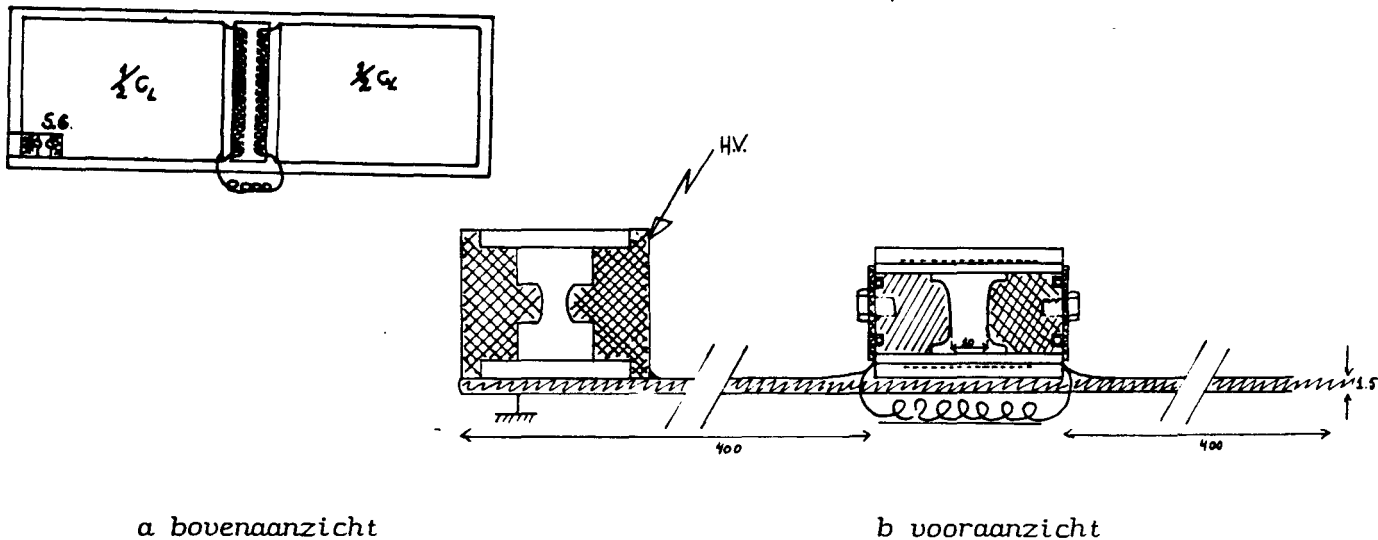


Fig 5.1 Blumleinlaser

Indien een ontlading niet geheel homogeen is kan deze in zekere mate door middel van voorionisatie homogeen worden gemaakt. Deze voorionisatie kan bereikt worden door gebruik te maken van een oppervlakte coronaontlading langs een niet geleidend medium. De UV-straling afkomstig van deze ontlading veroorzaakt fotoionisatie van het stikstofgas en maakt electronen vrij uit de kathode. Hierdoor zal de impedantie van het gas afnemen en kleiner worden dan die van de coronaontlading die parallel geschakeld is aan de ontlading tussen de electrodes. Hierdoor ontstaat dan een homogene stikstofontlading tussen de electrodes. Het oppervlak waarlangs de coronaontlading optreedt kan een isolatiefolie zijn met daarboven een plaat van geleidend materiaal (bijv. in gaasvorm)^(WAL87). Een veel duurdere oplossing is een plaat van halfgeleidermateriaal^(RIC86). Een zeer goedkope en betrouwbare

oplossing is een oppervlak van SiC-papier ^(SER87). Naast en mede door het feit dat deze preionisatie technieken de ontlading homogeniseren wordt de reproduceerbaarheid, repetitiefrequentie en levensduur van de lasers sterk verhoogd.

In dit werk is gebruik gemaakt van de eerst genoemde voorionisatie techniek, namelijk met een perspex plaat en met een gaasvormige geleider (2*2 mm mazen). Bovenstaande Blumleinlaser is hiermee uitgerust en geeft alleen een homogene ontlading wanneer twee electrodes met afgeronde profielen (Chang profielen) worden gebruikt. Wordt een van de electrodes vervangen door een scherpe electrode dan ontstaat er een ontlading met 15 à 20 bogen (fig. 5.2).

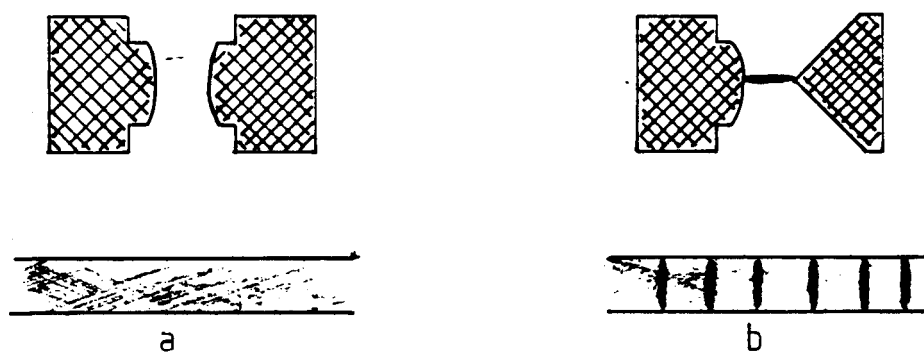


Fig. 5.2 *Ontlading tussen twee electrodes*
a: twee afgeronde electrodes
b: een afgeronde en een scherpe electrodes

Wel moet nog worden vermeld dat deze experimenten in lucht zijn verricht bij 1 atmosfeer. Als het bij 1 atmosfeer lukt om de ontlading homogeen te maken dan zal dat zeker lukken bij lage druk, omdat de opvatting is dat wanneer een ontlading ver boven de druk in het Paschenminimum homogeen is deze zeker nabij dit minimum homogeen zal zijn. Een preionisatiefolie is, in het geval één of twee scherpe electrodes worden gebruikt, niet noodzakelijk omdat de coronaontlading aan de scherpe electrode voldoende is. Echter bij een scherpe electrode spelen oneffenheden een grote rol en kunnen ter plaatse van "bramen" zeer hoge elektrische velden ontstaan, waardoor op die plaats de ontlading zal gaan bogen (fig. 5.3).

Uit bovengenoemde experimenten is de conclusie te trekken dat een homogene ontlading het eenvoudigst te verkrijgen is met twee afgeronde electrodes, waarbij indien nodig een voorionisatierooster is geplaatst.

Een ander resultaat van het tweede jaarsproject is dat er geen laserwerking waargenomen is in lucht. Een mogelijke oorzaak kan zijn de "attachment" van electronen aan zuurstofmoleculen en de ontvolking van de laserniveaus door botsingen met zuurstof (GRAB7). In een zuurstof bevattend stikstofmengsel zal dan nauwelijks inversie optreden tussen de bezettingen van de laserniveaus.

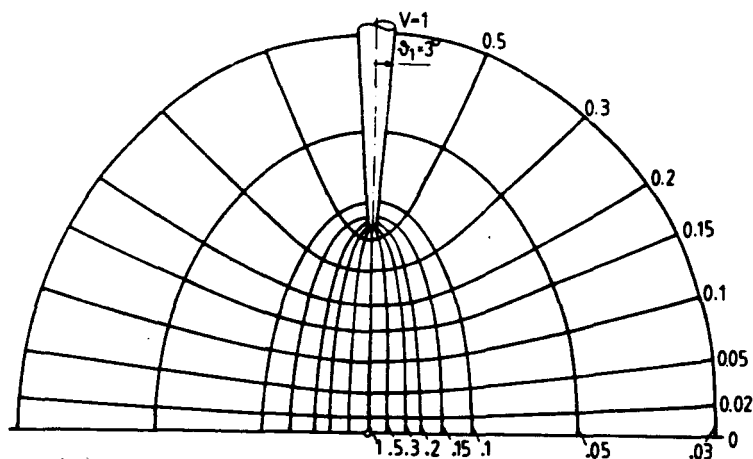


Fig. 5.3 *Electrisch veld tussen een scherpe en een vlakke electrode.*

5.2 Capacity transfer lasers

5.2.1. Discrete condensatoren

Bovenstaande bevindingen zijn verwerkt in een laser met een capacity-transfer (C-C) systeem (fig. 5.4), waarin de elctrodes Chang profielen hebben en waarbij onder en boven de electrodes een perspex plaatje (1mm dikte) met een gaasvormige geleider is geplaatst.

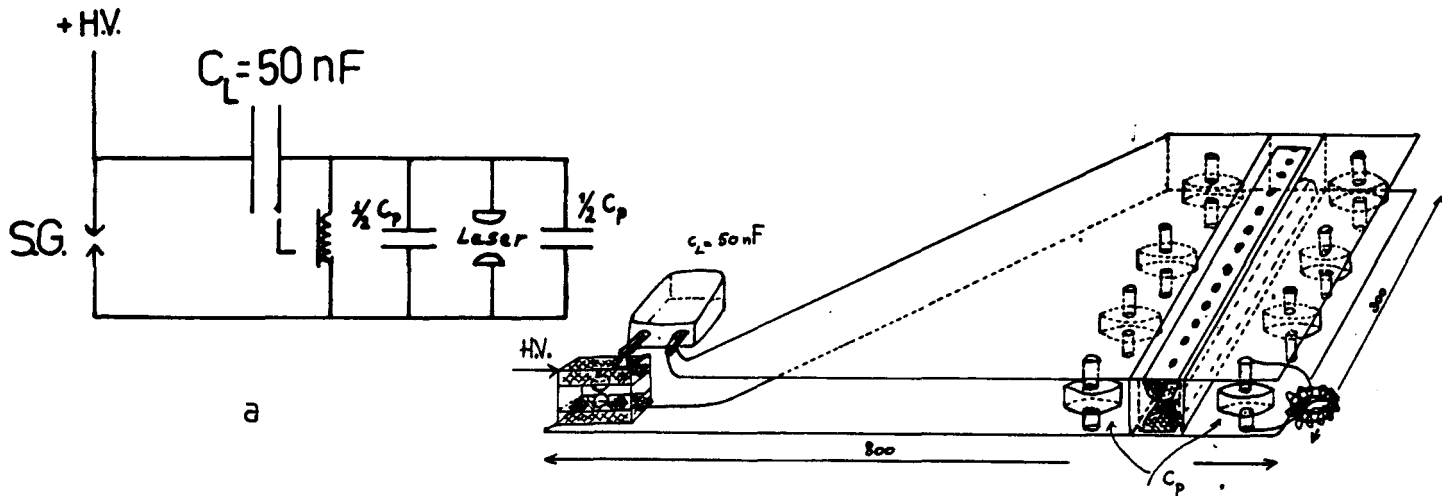


Fig 5.4 a C-C excitatie systeem
b C-C lasersysteem

De piekcondensatoren zijn 4 tot 8 zogenoemde keramische deurknop condensatoren (LCC type HTD 20 kV) van elk 2 of 3 nF. Met de waarde van deze piekcondensatoren is geëxperimenteerd door het aantal te variëren. De laadcapaciteit is een 50 nF condensator van Coimex (25W531 TNL 25kV DC). De vonkbrug is in dit geval een "free-running" (zichzelf triggerende) eigenbouw vonkbrug. De laserbuis wordt longitudinaal afgepompt tot een minimum druk van ongeveer 1 torr.

5.2.2 Metingen aan de discrete C-C laser

Het laadcircuit bestaat uit een continue hoogspanningsvoeding (25 kV, 100 mA). De metingen betreffende de tijdstructuur van de laserpuls zijn uitgevoerd met een Hp-5082-4220 fotodiode en de energie met een pyro-elektrische detector PRA LPED (87006-PED). Deze zijn geplaatst op een afstand van ongeveer 2 meter van de laser en direct (zonder kabels) of met een korte kabel in een messing buis (1 mm wanddikte) aangesloten op een Tektronix 7834 180 MHz geheugen oscilloscoop. Deze opzet is gekozen om zo min mogelijk elektromagnetische storing van de ontlading in de vonkbrug en het laserkanaal op te vangen (fig. 5.5). Voor de energiemetingen diende de laserbundel met een lens gefocuseerd te worden op de PED-detector.

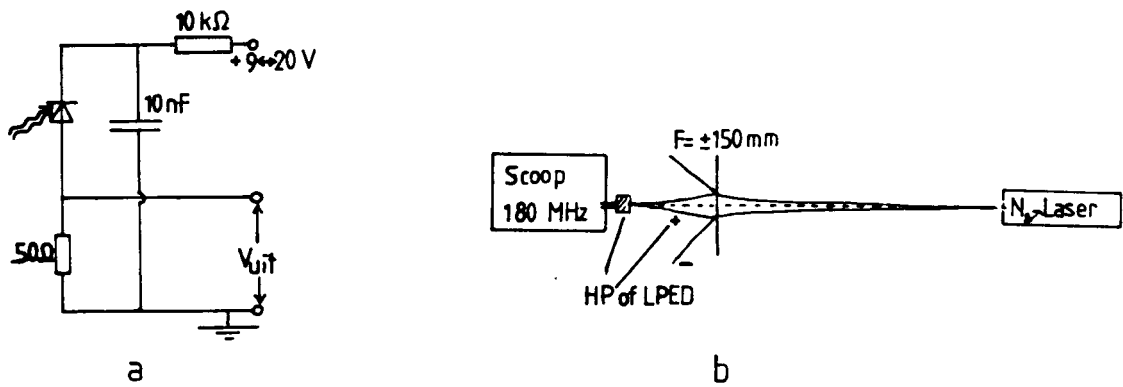


Fig. 5.5 a pindiode schakeling
b meetopstelling

De resultaten met de pindiode leverden een pulsduur op met een halfwaardebreedte van 11 ± 1 nsec, waarbij de langzaam afvallende flank bepaald wordt door de weerstand in de detector (fig. 5.6). Ook blijkt de achterflank minder stijl te zijn door de invloed van zichtbaar licht. De invloed van zichtbaar licht is behoorlijk groot omdat de pindiode gevoeliger is in het zichtbare gebied. Bij een grotere afstand tussen laser en meetpunt blijkt deze flank sneller af te vallen, omdat de divergentie van het zichtbare licht veel groter is.

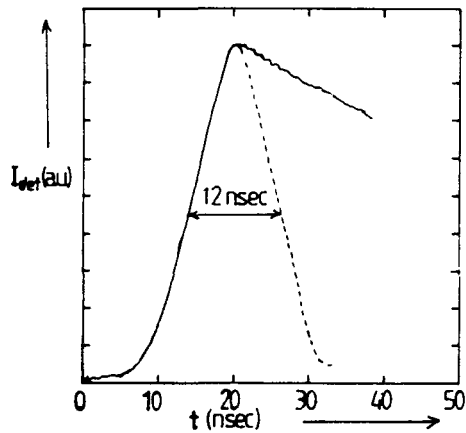


Fig. 5.6 a Tijdstructuur laserpuls

De tijdstructuur bleek nauwelijks een meetbare invloed te hebben van de verhouding C_L/C_p omdat deze verhoudingen binnen een klein gebied zijn gevarieerd (tussen een factor 4 en 6). Dit is in overeenstemming met de theorie (paragraaf 4.1.1).

De laserenergie als functie van de druk, laadspanning en de verhouding C_L/C_p is weergegeven in figuur 5.7.

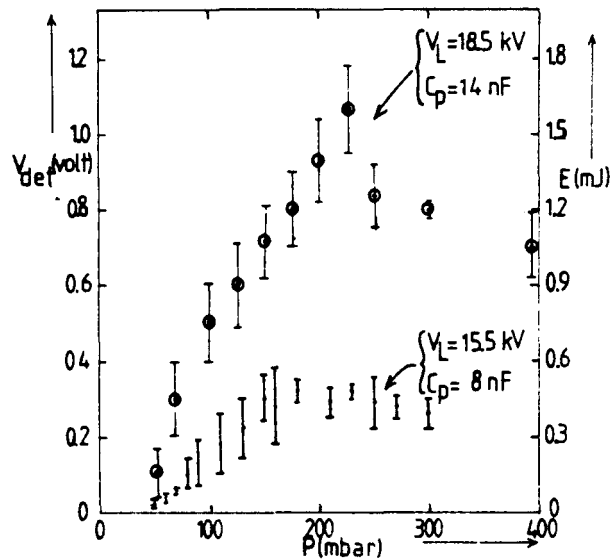


Fig. 5.7 Laser energie a.f.v. de druk, laadspanning en de verhouding C_L/C_p . V_{det} is de uitgangsspanning van de detector ($2mV/\mu J$). N.B. de transmissie van de lens is 30% voor het laserlicht.

Met de halfwaarde breedte van 11 ± 1 nsec en de maximum energie van 1.8 mJ volgt een maximaal vermogen van 163 kWatt. De fluctuaties in de laserenergie bedroegen minimaal ongeveer 15%.

5.2.3. Partieel discrete C-C laser

De resultaten met bovenstaande laser zijn positief maar gezien de relatief lange pulsduur van 11 nsec is het lasersysteem niet (of minder) geschikt om fluorescentie metingen mee te verrichten in de hogere excitatieniveaus (zie paragraaf 2.4). Bovenstaand systeem kan zeker wel gebruikt worden om een dye laser te pompen, om vervolgens met een verzadigbare "absorber" (kleurstof) de pulsduur in te korten.

Om een kortere laserpulsduur te maken is uitgegaan van een lasermodel, gebaseerd op het eerste C-C-model van Polloni ^(POL76), dat verbeterd is door Oliveira dos Santos ^(OL186). Laatstgenoemde rapporteert een piekvermogen van 2 MWatt bij een pulsduur van 1.2 nsec. In dit model is een zo laag mogelijke circuitinductie gecreëerd door voor de piekcapaciteit een (in dit werk halve) cilinder om de laser electrodes te nemen waardoor het circuit er als volgt uitziet (fig. 5.8)

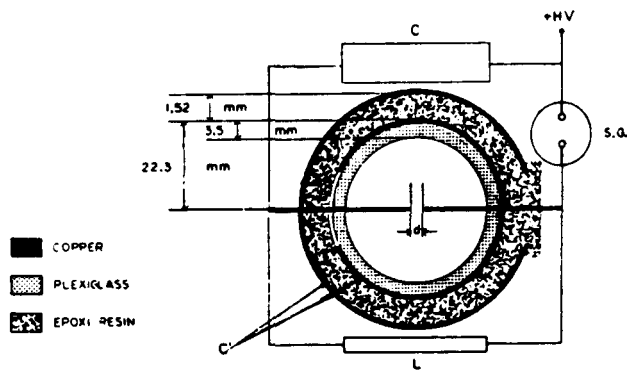


Fig. 5.8 Stikstoflaser met coaxiale piekcapaciteit ^{DL186}

In dit onderzoek is wegens de flexibiliteit gekozen voor een halve cilinder met koperfolie (0.15 mm) met daartussen 4 tot 6 lagen melinex folie (0.2 mm per folie), ingeklemd tussen twee coaxiale halve perspex cilinders. Op deze manier kan een capaciteit worden gemaakt van 0.5 - 1 nF. De electrodes bestaan uit twee koperen platen van 1 mm dikte, al of niet aangescherpt, afgerond of omgebogen ^(STAB7).

De schematische opbouw van de laser is weergegeven in figuur 5.9. Hier is het laserkanaal dichtgelijmd met siliconenkit. De piekcapaciteit bedraagt 0.54 nF en de laadcapaciteit kan worden gevarieerd tussen 0.5 en 10 nF. Een voorschakelweerstand van 400 k Ω maakt in principe repetitiefrequenties mogelijk tot maximaal 500 Hz ($V_L=10$ kV, $C_L=10$ nF).

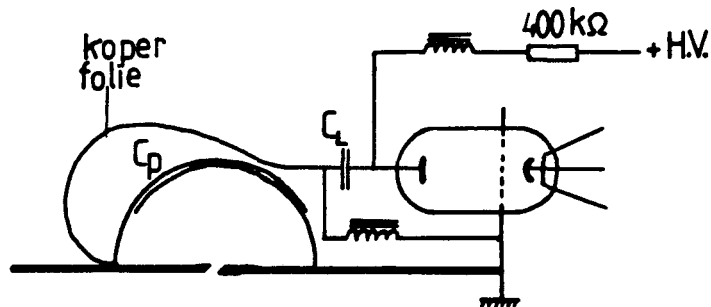


Fig. 5.9 Schematische opbouw van de laser

In deze configuratie fungeert een Thyatron (EG&C HY-1102) als schakelaar (vonkbrug). Deze wordt gevoed en getriggerd door een elektrisch circuit gebouwd door Staring ^(STAB7). De laserbuis wordt aan een zijde afgepompt (tot minimaal ongeveer 1 torr zonder gasinlaat) terwijl aan de andere zijde stikstof wordt ingelaten door een regelventiel. Er ontstaat dus een longitudinale stikstofstroom. Aan een zijde van de laser is tevens een aluminium spiegel geplaatst. De hoogspanningsvoeding is wederom een continue 25 kV, 100mA voeding.

5.2.4. Metingen aan de partieel discrete C-C laser

Aan bovenstaande laser zijn wederom metingen verricht aan de tijdstructuur en energie zoals is beschreven in paragraaf 5.2.2. Uit de tijdstructuur metingen blijkt dat de pulsduur 3.0 ± 0.2 nsec bedraagt (fig. 5.10) onafhankelijk van de druk en van de verhouding C_L/C_p hetgeen niet in overeenstemming met de theorie is.

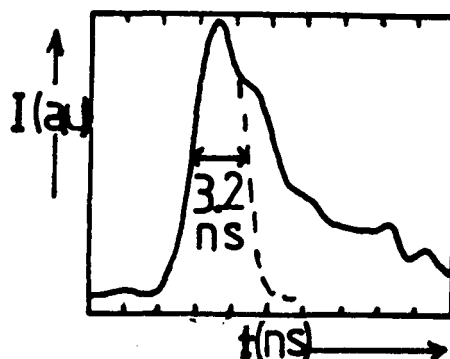


Fig. 5.10 Tijdstructuur van de laserpuls

De laserenergie als functie van de druk en de capaciteitsverhouding is weergegeven in figuur 5.11. Hieruit blijkt dat de optimale druk ongeveer 120 torr is.

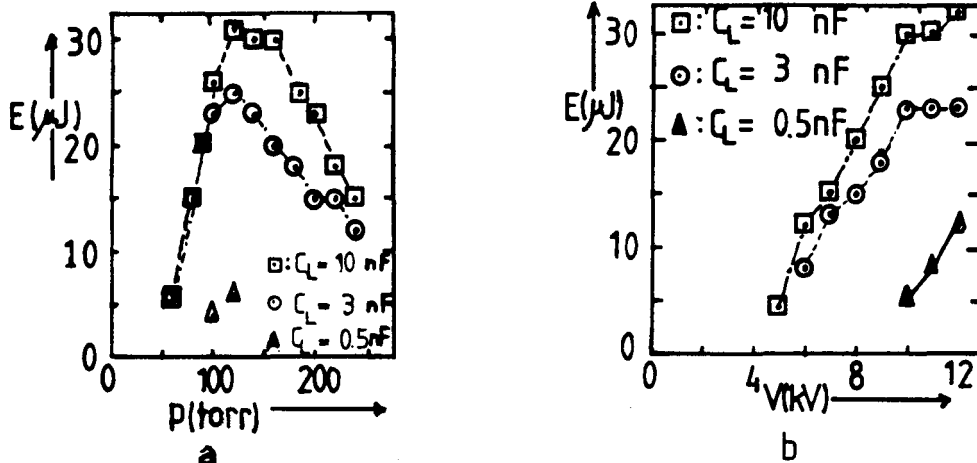


Fig. 5.11 Laserenergie a.f.v.
 a de druk, C_L/C_p met $V_L=10$ kV
 b de laadspanning V_L , met $p=120$ torr

De efficiëntie van deze laser blijkt zeer laag te zijn, namelijk $\leq 3 \cdot 10^{-2} \%$, hetgeen een factor 100 lager ligt dan de efficiëntie zoals Oliveira dos Santos vermeld (fig. 5.12) ⁽⁰¹¹⁸⁶⁾.

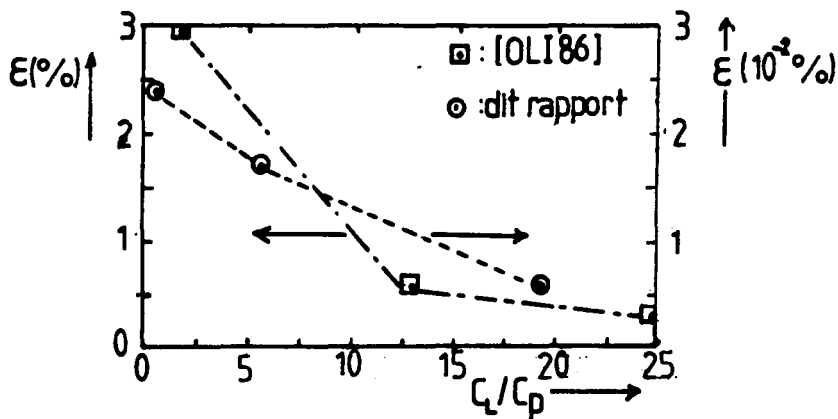


Fig 5.12 Efficiency als functie van de capaciteitsverhouding C_L/C_P
 a : curve volgens Oliveira dos Santos
 b ——— : curve voor bovenstaande laser.

Er zijn geen metingen gedaan van de doorslagspanning. Deze wordt op 10 kV geschat. Bij een druk van 100 torr en een electrodeafstand van 3 mm levert dit een gereduceerde veldsterkte op van $300 \text{ V cm}^{-1} \text{ torr}^{-1}$ (bij een homogeen elektrisch veld). Deze waarde levert een te grote waarde op voor de electronenenergie waardoor een sterke ionisatie optreedt terwijl de laserniveaus veel minder bezet zullen worden, en doordat tevens de electronen de-excitatie het zal winnen van de gestimuleerde emissie. Omdat in bovenstaande laserconfiguratie de plaatafstand niet meer gevarieerd kon worden is de uiteindelijke laser gebouwd zoals onderstaand is beschreven.

5.2.5. Uiteindelijk laserontwerp

De partieel discrete C-C laser is op enkele punten verbeterd. Het thyatron ($L=15 \text{ nH}$) is namelijk vervangen door een coaxiale vonkbrug met een geschatte zelfinductie van 5 nH bij een gasdruk van 1-5 atmosfeer stikstof (fig.5.13).

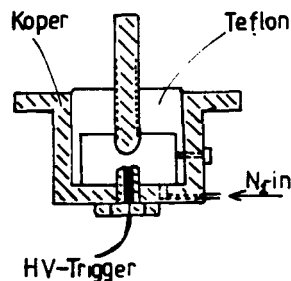


Fig. 5.13 Coaxiale vonkbrug

De laserbuis (halve cilinder) is nu geplaatst in een cilinder die afgepompt kan worden tot drukken kleiner dan 1 torr. De vonkbrug en de laadcondensator(en) zijn nu zo dicht mogelijk bij de lage druk cilinder

geplaatst om inducties zo klein mogelijk te houden (fig. 5.14). Bovendien worden de electrodes aan dezelfde kant via de piekcondensator uitgekoppeld. Bovenstaande opzet is zo gekozen dat nog relatief eenvoudig de laserbuis aangepast kan worden.

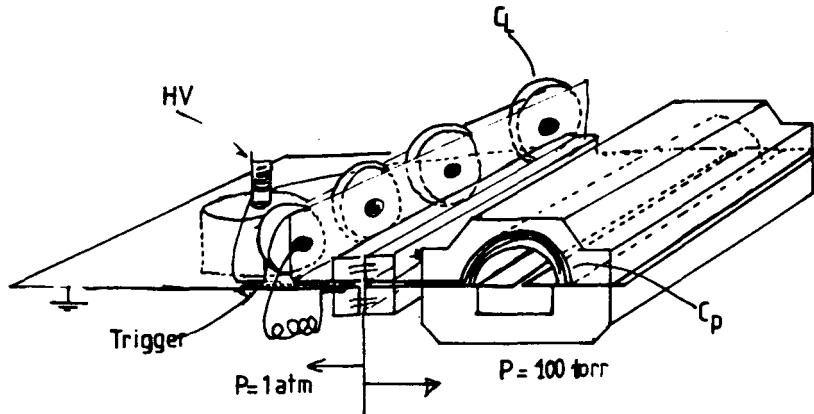


Fig. 5.14 Uiteindelijke laseropbouw

Het triggercircuit van Staring (appendix 1) is nu vervangen door het circuit ontwikkeld door Assink (ASS87) omdat nu een hogere triggerspanning nodig is voor de hogedruk vonkbrug. Buiten de cilinder is een verstelbare Al-spiegel aangebracht. De laadcondensator bestaat nu uit een serie van 1 tot 8 deurknop condensatoren (LCC, 20 kV, type HTD) van 1 nF elk. Het is ook mogelijk een plaatcondensator op te drukken op de vast bevestigde printplaat. Het voordeel is dan een lagere condensatorinductie, maar dit houdt wel in dat de piekcapaciteit vergroot wordt met de parallel staande capaciteit van de transmissielijn (printplaat) die 1 nF groot is. Deze vergrote piekcapaciteit betekent dan dat de C_L/C_p verhouding verkleind wordt en en dat dus niet een korte pulsduur kan worden behaald. Tevens is een plaatcondensator vrij kwetsbaar voor doorslagen bij hoge spanningen (b.v. 15 kV) en hoge repetitiefrequenties boven 50 Hz.

5.2.6 Metingen aan uiteindelijk laserontwerp

Door Assink zijn de eerste metingen verricht aan het uiteindelijke ontwerp (ASS87). Voorlopig zijn alleen metingen gedaan aan de tijdsstructuur van de laserpuls als functie van de laadcapaciteit en laadspanning bij een vaste druk van 100 torr (fig. 5.15a).

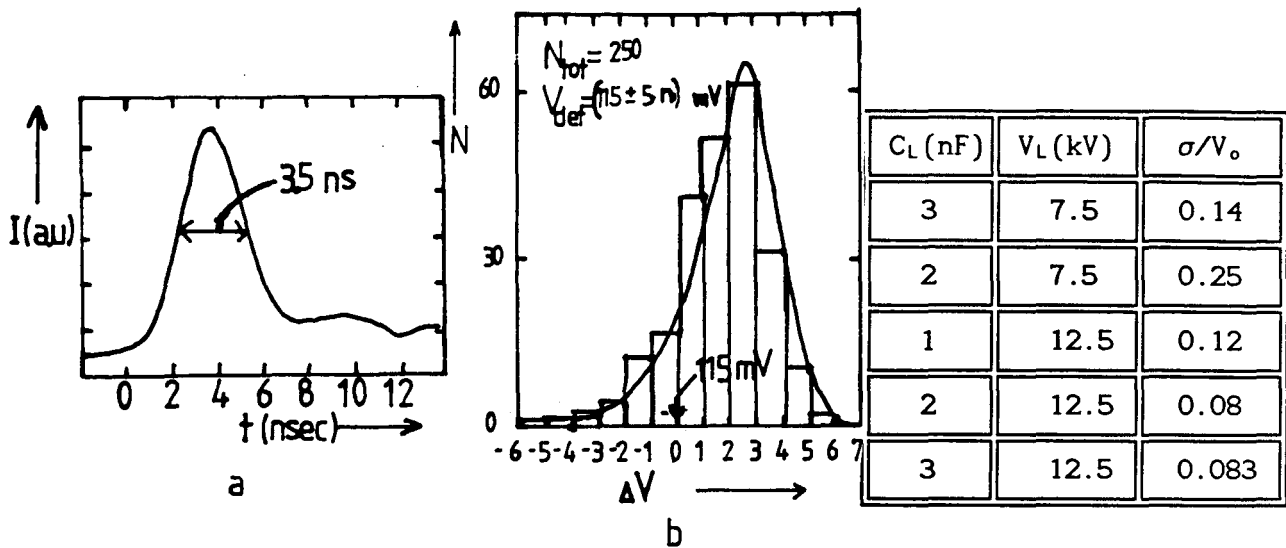


Fig. 5.15 a: tijdsstructuur laserpuls. b: intensiteit laserpuls
 ΔV_{det} is de detector spanning in stapjes van 5 mV t.o.v. 115 mV.

Tabel 5.1 Reproduceerbaarheid a.f.v. C_L en V_L . σ is de standaarddeviatie in de detectorspanning t.o.v. $V_0=115$ mV.

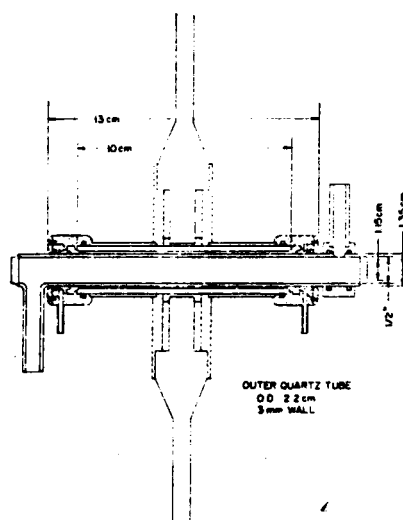
Hieruit volgde een pulsduur van 3.5 ± 0.2 ns. De reproduceerbaarheid van de intensiteit van de laserbundel is met dezelfde pindiodeopstelling bepaald en hieruit blijkt dat de standaarddeviatie in de detectorspanning ten opzichte van een spanning van 115 mV minimaal 8% bedraagt (fig.5.15b). Dit percentage kan kleiner zijn wanneer in plaats van een pindiode, die maar een heel klein oppervlak uit de bundel snijdt ($30 \times 30 \mu\text{m}$), een totale intensiteits of energie meting wordt gedaan.

Aan het laserontwerp worden momenteel enkele aanpassingen gemaakt, zoals de elektrische doorvoer, van de buitenlucht naar de lage druk stikstofatmosfeer. Om de inductie hiervan te verkleinen, zal de doorvoer bestaan uit een ingelijmd stuk dubbelzijdige printplaat. Bovendien worden de electrodes dusdanig bevestigd dat ze instelbaar zijn. In de toekomst wordt nog getracht de coronaverliezen in de coaxiale capaciteit te beperken en bovendien zullen nog andere electrodevormen getest worden (afgeronde electrodes), om in staat te zijn de ontladingsparameters (electronendichtheid n_e en elektrisch veld E) te variëren.

6. Flitslamp-gepompte dye-laser

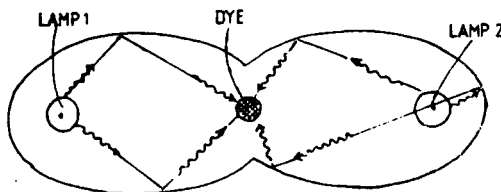
De eerste door een flitslamp gepompte dye laser is geconstrueerd door Sorokin et al. in 1967 ^(SOR67). Dit was een coaxiale lamp gevuld met een argon-lucht mengsel met daarop een schijfcondensator om de inductie van de ontlaadkring klein te maken (fig. 6.1). De kleurstof wordt dus door het licht afkomstig van de flitslamp geïnverteerd. Het probleem bij deze lamp was vooral de lage repetitiefrequentie ($f \sim 1/8 \text{ s}^{-1}$).

Fig. 6.1 Flitslamp volgens Sorokin



Aan deze configuratie is later gewerkt door Furumoto. Deze bereikte een laserpulsduur van $0.5 \mu\text{sec}$ met een vermogen van 2.1 MWatt en een efficiëncy van 0.2 % (in Rhodamine 6G) ^(FUR69). Later is men meer lineaire lampen gaan gebruiken in een dubbel elliptische reflector, waarin de flitslampen en de kleurstofcilinder in de brandpunten van de ellipsoïdes staan (fig. 6.2). Hiermee zijn hoge repetitiefrequenties (100 Hz) en een hoog gemiddeld vermogen van 4 Watt bij pulsduren van 60 μsec behaald ^(JET74, HIR77).

Fig. 6.2 Colineaire flitsbuis-configuratie



Aan het einde van de jaren 70 zijn met de colineaire lasers kortere

pulsduren bereikt tot een minimum van ongeveer 1 μ sec, door gebruik te maken van voorionisatie van de flitslampen. Dit kan door een continue (Simmer) stroom of een voerpulsje door de lamp te sturen (HIR80a, HIR80b). Meer recentelijk is de coaxiale lamp weer terrein aan het winnen door de kortere pulsduren, met daarbij hoge piekvermogens en hogere repetitie frequenties (20 Hz) die nu met deze lampen mogelijk zijn geworden. Dit is vooral door toepassing van een multiaxiaal systeem, waarbij tussen de lamp en de dyevloestof nog waterkoeling (inclusief temperatuurregeling) en een gaslaagje is aangebracht (LUC80).

6.2 Colineaire dye laser

Een bestaande colineaire dyelaser, Electrophotonics model 23, met twee lineaire lampen in een ellipsoïde reflector, zoals in figuur 6.2, is opgebouwd met een continue simmervoeding om laserpulsduren in de orde van 1 μ sec mogelijk te maken. Het elektrisch circuit is dan zoals in figuur 6.3.

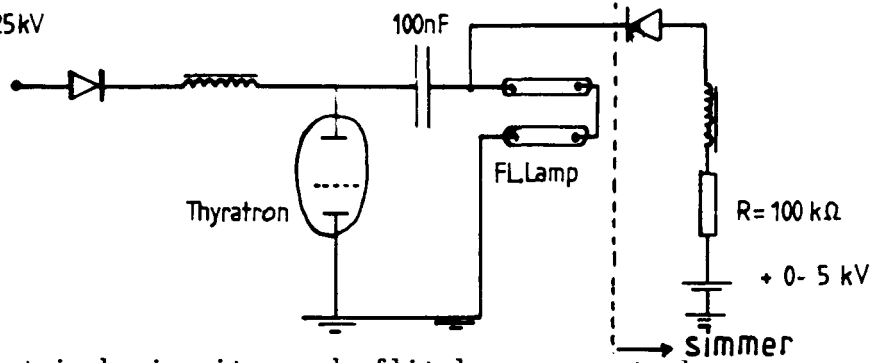


Fig. 6.3 Elektrisch circuit van de flitslamp gepompte laser

De lampen zijn twee lineaire lampen zoals ook gebruikt werden door Sterenborg, Geelen en Gielen, met een lengte van 25 cm en een boring van 3 mm, gevuld met xenon met een druk van 350 torr (STE82, GEE83). Om elke lamp is een vaste koelmantel gesmolten waardoor het koelwater niet in contact komt met de electrodes. De lampen zijn in bovenstaand circuit serie geschakeld om een gelijktijdige doorslag te realiseren.

Het optisch systeem van de laser is geschetst in figuur 6.4. Hierin fungeren de drie prisma's in combinatie met de verdraaibare vlakke eindspiegel als dispergerend medium. Een Fabry-Perot etalon kan eventueel in de cavity worden geplaatst. De totale cavity-lengte komt op één meter.

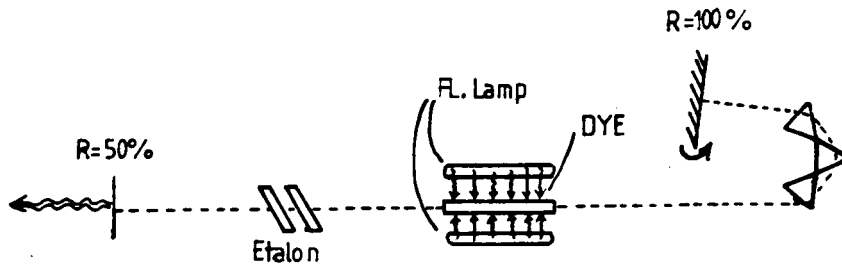


Fig. 6.4 Cavity van de flitslamp gepompte dye laser

De door de eindspiegel en prisma's uitgeselecteerde bandbreedte is bij een golflengte van 600 nm ongeveer 0.85 nm ^(STEB2). Wanneer in de cavity een Fabry-Perot etalon wordt geplaatst, met een vrije spectrale breedte van 0.9 nm en een finesse van 4, dan wordt de bandbreedte (als functie van de tijd t) gegeven door ^(STEB2):

$$\Delta\lambda = 2.25 \sqrt{2^{2.67 \cdot 10^{-9}/t} - 1} \quad [\text{\AA}] \quad (6.1)$$

Dit betekent dat de bandbreedte afneemt bij toenemende pulsduren tot 0.01 nm bij een pulsduur van 1 μsec . Door zich te realiseren dat bij iedere doorgang van het laserlicht door het etalon de bandbreedte wordt verkleind is deze vergelijking te begrijpen.

De vlakke eindspiegels maken dat de laserbundel een Gaussische TEM₀₀ mode is (op grote afstand vertoont deze een heldere centrale spot).

6.2. Metingen aan de colineaire laser

Aan de colineaire laser zijn met behulp van een fotodiode (HP-5082-4220) metingen gedaan aan de tijdstructuur van de laserpuls en aan het licht afkomstig van de ontleding in de lamp (fig. 6.5a &b).

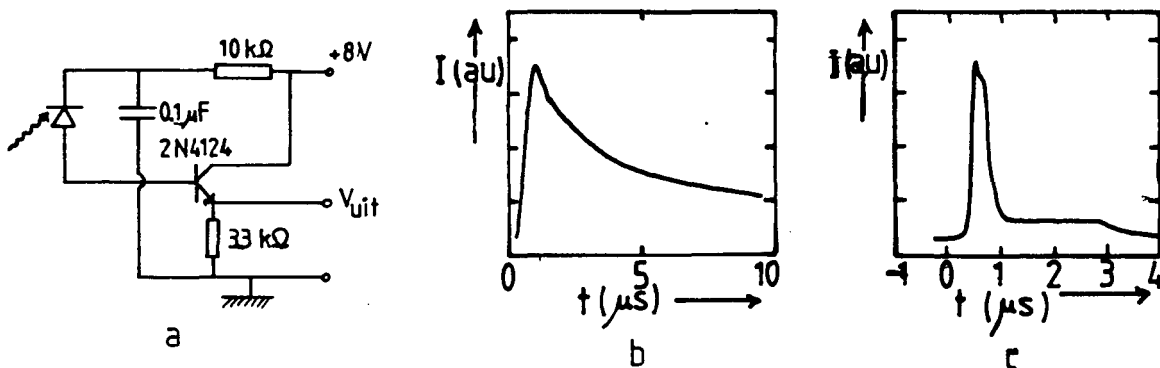


Fig. 6.5 Metingen aan de colineaire laser:
a pindiodeschakeling
b tijdstructuur van de lichtpuls
c tijdstructuur van de laserpuls

Alle metingen zijn verricht bij een simmerstroom van 50 mA. Zonder de simmer bleek de reproduceerbaarheid van de lichtpuls, dus de pompenergie, sterk af te nemen, hetgeen betekent dat de stroompuls niet reproduceerbaar is. Omdat de lichtpuls met gebruik van een continue simmer voorionisatie goed reproduceerbaar is, zijn de minder reproduceerbare laserpulsen te wijten aan stromingseffecten en temperatureffecten in de dye vloeistof. Uit de tijdstructuur van de laserpuls volgt een halfwaardebreedte van $0.7 \pm 0.05 \mu\text{sec}$. De energie en het vermogen zijn bepaald met een EG&G 460 powermeter, met een $10^5 \times$ verzwakker. Het vermogen als functie van de golflengte (=hoekverdraaiing eindspiegel), met als kleurstof Rhodamine 6G opgelost in methanol (10^{-4} M), is weergegeven in figuur 6.6. De metingen zijn verricht met en zonder Fabry-Perot etalon.

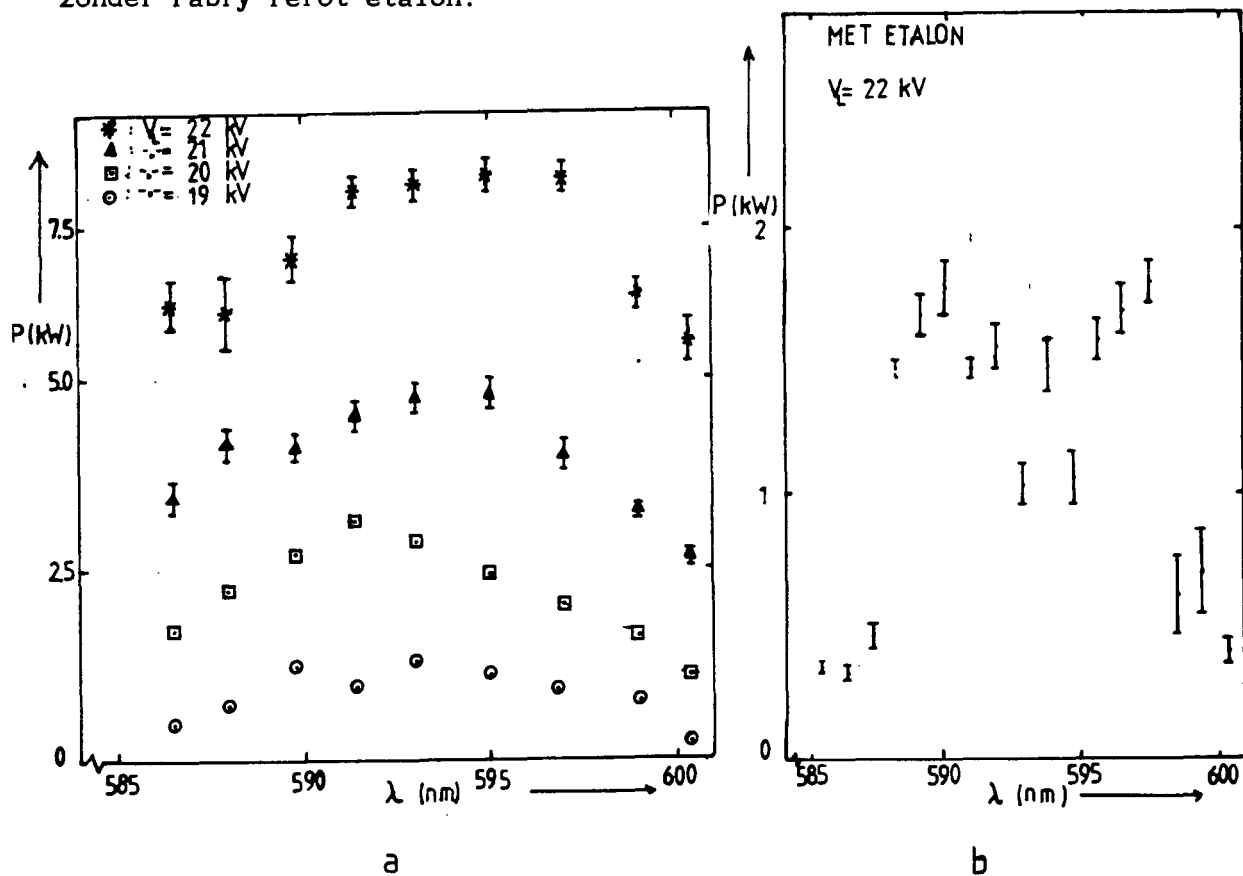


Fig. 6.6 Vermogen als functie van:
 golflengte en voedingsspanning
 a zonder etalon voor 4 verschillende spanningen
 b met etalon bij een spanning van 22 kV

Het grillige verloop van de metingen met het etalon is te wijten aan de vaste instelling van het etalon. De golflengte is alleen met de eindspiegel gevarieerd en er is dus geen maximaal uitgangsvermogen ingesteld met het etalon. Dit wijst op een golflengtespectrum met meerdere maxima (zie ook figuur 6.8b).

De golflengteafhankelijkheid van de laserpuls is bepaald door de laserbundel via een kwartsfiber op de spleet van een monochromator, met een CCD-camera aan de uitgang, af te beelden (fig. 6.7). Op deze manier kan met het Optical Multichannel Analyser (OMA) systeem de golflengte afhankelijkheid schot voor schot worden bepaald.

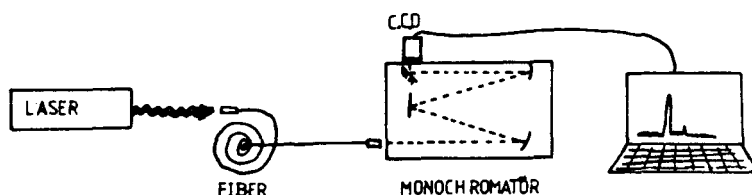


Fig. 6.7 Optical Multichannel Analyser systeem

Zonder een etalon in de lasercavity is het beeld per schot voor 10 schoten zoals in figuur 6.8a is weergegeven. Hieruit blijkt dat de bandbreedte ongeveer 0.9 nm is waarin zich, ogenschijnlijk op vaste posities, enkele spikes bevinden. Deze spikes hebben een breedte van ongeveer 0.2 nm. Het lijkt alsof de spikes om de laserenergie strijden.

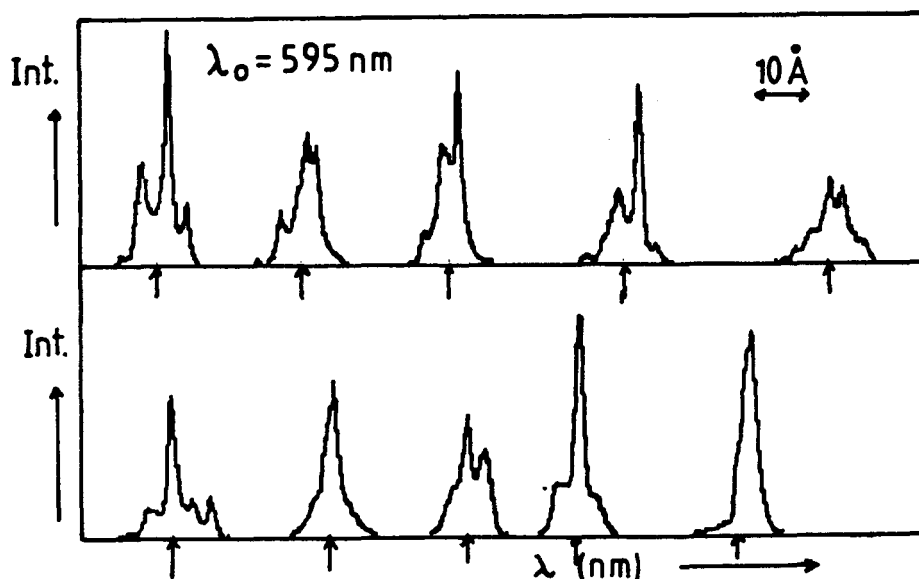


Fig 6.8a Spectrale energieverdeling voor 10 laserpulsen zonder intercavity etalon. Het pijltje geeft de centrale golflengte λ_0 weer.

De oorzaak van deze spikes is niet met zekerheid bekend, maar het lijkt erop dat ze gerelateerd zijn aan verschillende overgangen in het kleurstofmolecuul. De reproduceerbaarheid blijkt schot voor schot zeer slecht te zijn. Een grote verbetering komt hierin wanneer er een etalon intercavity wordt geplaatst (fig. 6.8b).

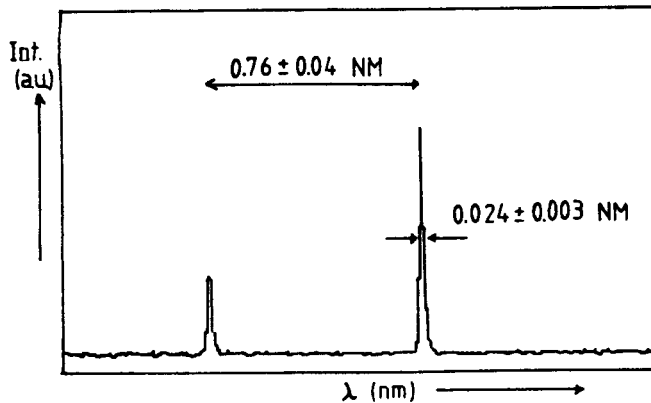


Fig. 6.8b Golflengte spectrum van de laserpuls met etalon

Uit de gegevens van het etalon blijkt dat de vrije spectrale breedte ongeveer 0.8 nm is. Doorgaans zullen zich dus meer dan een spike in het laserspectrum bevinden. Door de hoek van het etalon met de laserbundel te veranderen is het mogelijk om een spike per puls in het laserspectrum te krijgen. De instelling kan met het OMA systeem per puls bekeken worden. De instelling op één spike per puls blijkt vrij kritisch te zijn en afhankelijk van een kleine hoekverdraaiing, maar blijkt dan wel stabiel te zijn (minimaal enkele dagen). De halfwaardebreedte van één spike blijkt dan 0.024 ± 0.003 nm te zijn. Wanneer meerdere spikes in puls zitten blijkt de afstand tussen twee spikes 0.76 ± 0.01 nm te bedragen, hetgeen de vrije spectrale breedte van de combinatie van het etalon met de drie prisma's is. Dit komt overigens goed overeen met de specificaties van het etalon. De divergentie van de laserbundel is bepaald door de straal van de laserspot op drie meter afstand van de laser te delen door die afstand. Dit leverde een waarde op van 1.4 ± 0.3 mrad, hetgeen een acceptabele waarde is (de verhouding van de diameter van de dyecel en de lengte van de cavity levert 1.5 mrad op).

Uit bovenstaande metingen blijkt dat de eisen die gesteld zijn aan

een laser voor fluorescentie-experimenten te verrichten niet is voldaan. De stijgtijd en afvaltijd van de laserpuls zijn, met in achtneming van het vermogen, niet voldoende om snel verzadiging te bereiken.

Bovenstaande configuratie is om aan de gestelde eisen te kunnen voldoen omgebouwd, door de colineaire lampen te vervangen door één coaxiale flitslamp (Phase-R DL-10Y).

6.3 Coaxiale laser

De coaxiale flitsbuis (met triax-adapter) (fig.6.9) is in eerste instantie in de plaats gekomen van de lineaire lampen zonder dat de dimensionering van het elektrisch circuit is veranderd.

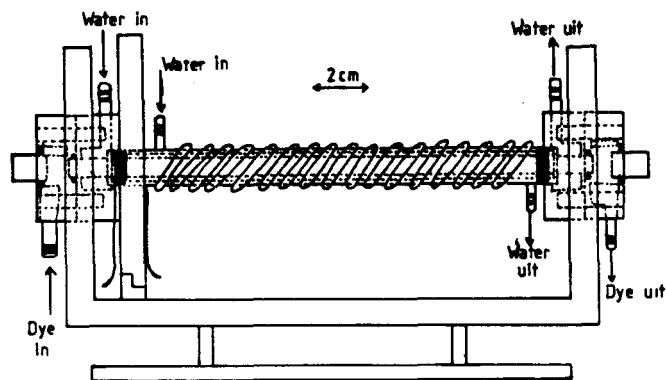


Fig 6.9 Coaxiale flitsbuis

Een simmer voorionisatie is overigens bij een dergelijke lamp niet gewenst omdat deze dan een continu filament ontlading geeft waarlangs de gepulste ontlading zich zal voltrekken. Dit heeft ook een grotere slijtage van de lamp tot gevolg en ook een lagere explosie energie. De levensduur van de lamp, gerekend in het aantal schoten bij een bepaalde bedrijfspanning, is gerelateerd aan de explosie energie volgens de vuistregel $(E_{exp}/E_b)^{8.5}$. Bovendien is de langs het glazen oppervlak van de lamp teruglopende aluminium reflector-electrode van essentieel belang voor de homogeniteit van de ontlading. Het voorionisatie mechanisme loopt, zoals ook is beschreven in het hoofdstuk stikstoflasers, via een coronaontlading langs het glazen oppervlak van de buis. In afwezigheid van deze reflector zal de ontlading zich ten alle tijde volgens een filament voltrekken. Deze bevindingen zijn ontleend aan experimenten met een eigenbouw quadraxiale lamp naar een voorbeeld van Lucatorto (fig. 6.10) (LUC80).

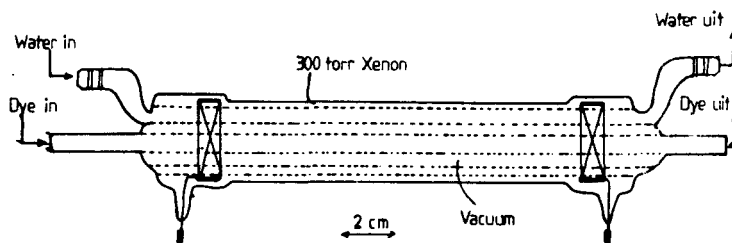


Fig. 6.10 Eigenbouw quadraxiale flitslamp

Doordat de temperatuurstabilisatie van de oorspronkelijke laser niet voldoende is, om het temperatuurverschil tussen het koelwater en de dye vloeistof binnen 0.05 K te houden, ontstaan in de kleurstof gradiënten in de brekingsindex ten gevolge van turbulenties veroorzaakt door convectie. Wanneer een He-Ne laser door de dye cilinder wordt geschoten zal in het ideale geval een heldere fijne spot te zien geven. Wanneer echter een diffuse vlek te zien is kan geen reproduceerbare laserwerking verwacht worden. Dit kan worden opgelost door van de triaxiale adapter een quadraxiale adapter te maken door om het dyecilindertje een vacuum (1 mtorr) cilindertje te smelten (fig. 6.11). Het idee van deze eigenbouw cilindertjes is ontleend aan de bevindingen van Lucatoro aan een quadraxiale flitsbuis (LUC80). Het voordeel van de cilindertjes ten opzichte van een vaste quadraxiale lampconstructie is dat ze eenvoudig verwisseld kunnen worden. De prijs die men hiervoor betaalt is dat de bundeldiameter maximaal 3 mm is, waardoor de totale laserenergie zal afnemen.

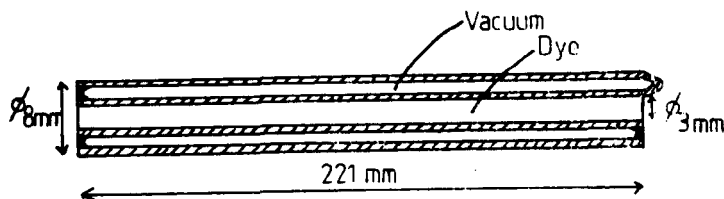


Fig. 6.11 Dye-cilindertje met vacuum wand

De buisjes voldoen voortreffelijk en met en zonder waterkoeling en ontlading blijft de spot van de He-Ne laser gelijk.

Om een grotere energie in de ontlading te stoppen is een condensator van 200 nF bijgevoegd. Met deze configuratie is laserwerking verkregen. De metingen aan deze configuratie worden in de volgende paragraaf besproken.

Het is vooralsnog niet mogelijk gebleken om met een zo kort mogelijk circuit, met een keramisch thyatron (EC&G HY-1102) en een condensator direkt op de flitslamp laserwerking te verkrijgen, door de misaanpassing van de zelfinductie van de condensator (200 nF) en het circuit. Om een optimale laserwerking te verkrijgen is het aan te bevelen de voor deze lamp gematchte condensator met vonkbrug aan te schaffen (matchen betekent een kritische demping creëren).

6.4 Metingen aan de coaxiale laser

Aan deze laser zijn weer metingen verricht aan de tijdstructuur van de laserpuls, vermogen als functie van de laadspanning en golflengte verstemming (met en zonder etalon). Ook is weer het golflengtespectrum opgemeten met het OMA-systeem.

Het golflengte spectrum en de divergentie bleken weer hetzelfde resultaat op te leveren als bij de colineaire laser. Dit was ook te verwachten, omdat de buis diameters gelijk zijn gebleven.

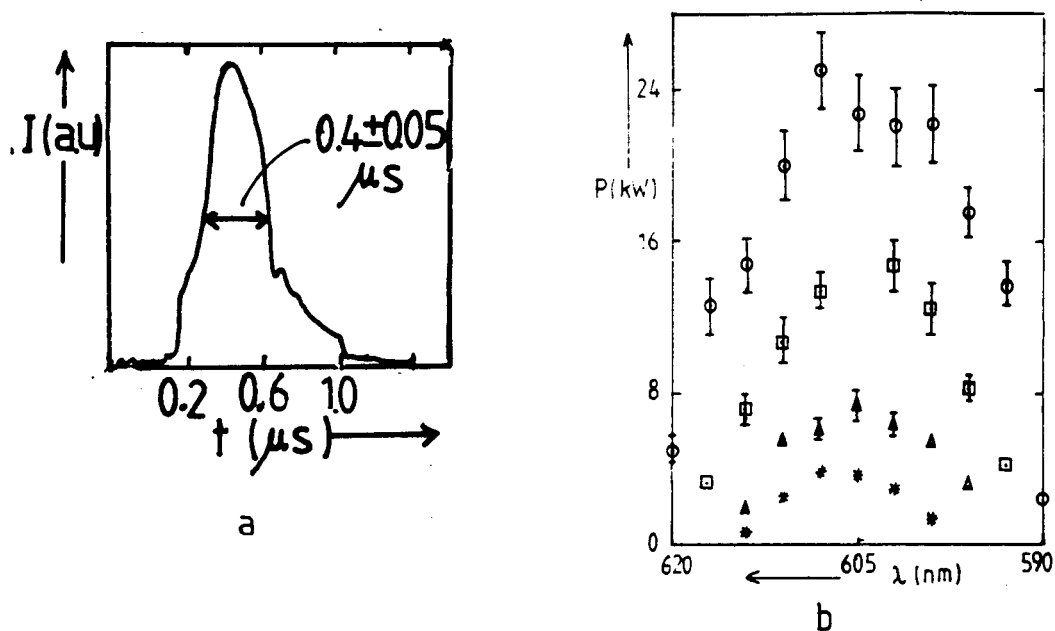


Fig. 6.12 Metingen aan de coaxiale laser:
a tijdstructuur van de laserpuls
b laservermogen a.f.v. de golflengte
en de laadspanning

De repetitiefrequentie kan nu opgevoerd worden tot 17 Hz, het maximum van de aanwezige triggereenheid, waarbij nog steeds laserwerking optreedt, echter het vermogen als functie van de repetitiefrequentie kan niet worden bepaald doordat de voeding dit niet meer aan kan.

Met het vermogen van zo'n 25 kWatt (0.5 μ sec puls), dit betekent een vermogen van 600 kW/nm en dus een verbetering ten opzichte van de colineaire laser van een factor 12, is het volgens de gestelde eisen mogelijk fluorescentieexperimenten met deze laser te bedrijven. Figuur 6.12a geeft een zeer stijle voor en achterflank te zien (de knikpunten in de flenken treden 50 nsec na en resp. voor het begin en einde van de puls op), maar toch zal bijvoorbeeld met een acousto-optische modulator, (zie bijvoorbeeld paragraaf 3.2), de stijgen en afval-tijd van de laserpuls moeten worden verkort, omdat de intensiteit op het niveau waar de stijle flank in een langzaam stijgende (afvallende) flank overgaat nog niet de kantelintensiteit heeft bereikt (zie hoofdstuk 2) (WIL84).

7. Resumé

Gebleken is dat voor een fluorescentie experiment lasers benodigd zijn die aan enkele eisen moeten voldoen. Het vermogen moet groter zijn dan het kantelvermogen, dat onafhankelijk is van de spontane vervalrequentie van het bovenniveau in het geïsoleerde systeem, vermeerderd met de verhouding van de totale ontvolkingsfrequentie en de spontane vervalrequentie van het bovenniveau in een niet geïsoleerd systeem. Uit hoofdstuk 2 blijkt dit de voornaamste vermogens-eisen te zijn die aan een laser voor fluorescentie experimenten gesteld moet worden. Voorts is het zinvol gebleken onderscheid te maken tussen korte en lange laserpulsen. Korte laserpulsen zijn kleiner dan of gelijk aan de levensduur van het bovenniveau. Bij lange pulsen is de duur veel groter dan de vervaltijd van het bovenniveau.

Om dergelijke experimenten uit te voeren waarbij hoogliggende niveaus worden gepompt moet voor de korte puls experimenten een laser worden genomen met een pulsduur van 1 nsec en een piekvermogen van 200 kWatt. Voor de lange puls LIF experimenten kan een laser worden gekozen met een pulsduur van ongeveer 1 μ sec, een hoog vermogen (≈ 200 kWatt) en een korte stijg en vervaltijd van de laserpuls (kort in vergelijking met de levensduur van het bovenniveau). Een laser waarmee korte hoogvermogens laserpulsen gemaakt kunnen worden is de stikstoflaser. Een flitslamp gepompte kleurstoflaser kan worden gebruikt voor de lange puls experimenten.

Het model ter beschrijving van de werking van een stikstoflaser koppelt het elektrisch circuit, de gasontlading en een botsings-stralingsmodel aan elkaar. Dit model is uitgegaan van een Townsend ontleding. Op dit punt kan het model nog worden verbeterd. Het is wel plausibel om een dergelijke ontleding aan te nemen om daarmee de start van de ontleding mee te beschrijven. Maar wanneer doorslag optreedt in het laserkanaal gaat de ontleding over in een glim- of eventueel boogontlading (met ruimtelading). Wat de invloed hiervan op de laserwerking in het model zal zijn moet nog worden nagegaan.

De constructie van de stikstoflasers heeft opgeleverd dat het maken van een stikstoflaser in principe eenvoudig is. Een laser met een korte pulsduur en een hoog piekvermogen en hoge repetitiefrequentie is echter veel lastiger te verwezenlijken. De twee werkende lasermodellen laten

dit ook zien. De discrete C-C laser levert een laserpulsduur van 11 nsec met een vermogen van 160 kWatt. Aan de partieel discrete C-C laser dient echter nog wat werk verricht te worden alvorens aan de gestelde verwachtingen wordt voldaan (1 nsec, 2 MWatt). Deze laser levert wel een korte pulsduur op van 3 nsec maar het vermogen is erg laag (≈ 10 kWatt), terwijl wel laserwerking is bereikt tot een repetitiefrequentie van 280 Hz. In de toekomst worden aan deze laser nog enkele aanpassingen gemaakt, zoals de elektrische doorvoer en de electrodevormen. Bovendien wordt nog gezocht naar een methode om de coronaverliezen in de coaxiale condensator te beperken.

Met de gebouwde discrete C-C laser is het wel mogelijk fluorescentie experimenten uit te voeren in de lage excitatieniveaus van b.v. Ar I. Het vermogen van de partieel discrete C-C laser beperkt het experiment ook tot de lagere excitatieniveaus. Wanneer het vermogen met een factor 10 tot 20 kan worden opgevoerd is het mogelijk om ook naar hogere excitatieniveaus te gaan.

De stikstoflasers zullen in de toekomst een nog te bouwen dye laser gaan pompen om de gewenste (pomp) golflengte te kunnen produceren.

De bestaande flitslamp gepompte dye laser is met de inbouw van de coaxiale flitslamp zodanig verbeterd dat er in principe ook fluorescentie experimenten mee gedaan kunnen worden (lange puls 0.4 μ sec, 25 kWatt) in de lagere niveaus. Ten opzichte van de bestaande colineaire uitvoering is een verbetering van een factor 12, wat betreft de spectrale intensiteit, bereikt.

De ontworpen "vacuum dye cilindertjes" blijken goed te voldoen en maken een goede temperatuurregeling overbodig. Met deze cilindertjes is een repetitiefrequentie van 17 Hz mogelijk. Ook zijn door een experimentele studie aan de bandbreedte, met behulp van de "optical multichannel analyser (OMA)", significante vingerwijzingen gevonden om de stemprocedure te optimaliseren. Een interessante bijkomstigheid is dat indien het stemmen goed is uitgevoerd de reproduceerbaarheid drastisch toeneemt.

Aan te bevelen is om voor deze laser de bij de lamp behorende (gematchte) vonkbrug en condensator aan te schaffen om beter aan de specificaties te kunnen voldoen (150 nsec puls en 2 MWatt vermogen). Met deze aanpassingen zal een betrouwbare laser worden verkregen waarmee de beoogde experimenten uitgevoerd kunnen worden.

Referenties

- (MUL85) J. vd. Mullen
Excitation equilibria in plasmas: a classification
Proefschrift T.U.Eindhoven
- (SAR74) M. Sargent III, M.O. Scully, and W.E. Lamb, jr.
Laser Physics
Addison Wesley publishing company 1974
- (STE82) D. Sterenborg
Fluorescentiemetingen aan Ar II
Intern rapport T.U.Eindhoven, VDF/NT 82.01; 1982
- (WIL84) B. Willems
Fluorescentieexperimenten met een argon plasma
Intern rapport T.U.Eindhoven, VDF/NT 84.27; 1984
- (SIE86) A.E. Siegmann
Lasers
Oxford University Press, XXII, 1986
- (SIB83) W. Sibbett and J.R. Taylor
Passive mode locking in the blue spectral region
Opt. Communications, vol. 46, no. 1, 1983
- (SIB83) W.A. Sibbett and J.R. Taylor
Passive mode locking of flashlamp-pumped dye lasers in
the 508-583 nm range
IEEE J. of Quantum Electronics, vol. QE-19, no. 4, 1983
- (SIB84) W. Sibbett and J.R. Taylor
Passive mode locking in the near infrared
IEEE J. of Quantum Electronics, vol. QE-20, no. 2, 1984
- (ART72) E.G. Arthurs, D.J. Bradley, and A.G. Roddie
Passive mode locking of flashlamp-pumped dye lasers
between 580 and 700 nm
Appl. Phys. Letters, vol. 20, no. 3, 1972
- (GIR73) G. Girard and M. Michon
Transmission of a Kodak 9740 dye solution under
picosecond pulses
IEEE J. of Quantum Electronics, vol. QE-9, no. 10, 1973
- (SZC87) M. Szczurek
Mode-locked Nd:YAG laser with phase conjugate mirror
Opt. Communications, vol. 61, no. 1, 1987
- (DEV86) R.J. Dewhurst and V. Kubecek
A passively mode-locked Nd:YAG laser using Half-symmetric
unstable resonator with continuous output coupling
Opt. Communications, vol. 60, no. 3, 1986
- (TSA86) J.Y. Tsao
Generation of 1.6 ns Ruby laser pulses by passive

Q-switching
Opt. Communications, vol. 60, no. 4, 1986

- (MAR82) E.G. Marason
Laser dye DCM: CW; synchronously pumped, cavity dumped
and single frequency performance
Opt. Communications, vol. 37, no. 1, 1981
- (PAR84) Y.K. Park, G. Giuliani, and R.L. Byer
Single axial mode operation of a Q-switched Nd:YAC
oscillator by injection seeding
IEEE J. of Quantum Electronics, vol. QE-20, no.2, 1984
- (BER83) M. Bernardini, A. di Giulio, M. Giorgi, and S. Marchetti
Single mode 30 MW CO lasersystem for 16 μ m etc.?
Il Nuovo Cimento, vol. 73B, N1, 1983
- (BAR86) R. Barbini, A. Ghigo, M. Giorgi, K.N. Iyer, A. Paluci,
and S. Ribezzo
Injection locked high power low divergence TEA CO laser
using SFUR configuration
Opt Communications, vol. 60, no. 4, 1986
- (TUR75) J.J. Turner, E.I. Moses, and C.L. Tang
Spectral narrowing and electro-optical tuning of a pulsed
dye laser by injection locking to a cw dye laser
Appl. Physics Letters, vol. 27, no. 8, 1975
- (OKA79) T. Okada, M. Maeda, and Y. Miyazoe
Spectral narrowing of a flashlamp-pumped high enrgy dye
laser by two stage injection locking
IEEE J. of Quantum Electronics, vol. QE 15, no. 7, 1979
- (OLI86) B. Oliviera dos Santos, C.E. Fellows, J.B. de Oliviera e
Souza, and C.A. Massone
A 3% efficiency N laser
Appl. Physics B41, 241-244,1986
- (ALI67) A.W. Ali, A.C. Kolb, and A.D. Anderson
Theory of the pulsed molecular nitrogen laser
Applied Optics, vol. 6,no. 12, 1967
- (ALI69) A.W. Ali
A study of the nitrogen laser power density and some
design considerations
Applied Optics, vol. 8, no. 5, 1969
- (BIS82) T. Bisschops
De constructie van een stikstoflaser
Intern rapport T.U.Eindhoven, VDF/NT 82.01, 1982
- (DIA85) A. Dias Taveres, jr, C.E. Fellows, and C.A. Massone
A new simple model for high power pulsed gas lasers
Appl. Physics B 38, 259-262, 1985
- (FIT76) W.A. Fitzsimmons, L.W. Anderson, C.E. Riedhauser, and Jan

- M. Vrtilek
Experimental and theoretical investigation of the
nitrogen laser
IEEE J. of Quantum Electronics, vol. QE-12, no. 10, 1976
- (SER87) A.A. Serafetinides, A.D. Papadopoulos, K.R. Rickwood
SiC preionised TEA nitrogen and carbon dioxide lasers
J. of Phys. E: Sci. Instrum. 20, 1987
- (PER86) P. Persephonis
On the performance conditions of a N laser
Revue Phys. Appl. 21, 609-617, 1986
- (SOR67) P.P. Sorokin, J.R. Lankard, V.L. Moruzzi, and
E.C. Hammond
Flashlamp-pumped organic-dye lasers
The Journal of Chemical Physics, vol. 48, no. 10, 1967
- (FUR69) H.W. Furumoto, and H.L. Cecccon
Optical pumps for organic dye lasers
Appl. Optics, vol. 8, no. 8, 1969
- (JET74) J. Jethwa and F.P. Schäfer
A reliable high average power dye laser
Appl. Phys. 4, 299-302, 1974
- (HIR77) A. Hirth and H. Fagot
High average power from a long pulse dye laser
Optics Communications, vol. 21, no. 2, 1977
- (HIR80a) A. Hirth, Th. Lasser, R. Meyer, and K. Schetter
Comparison of coaxial- and preionized linear flashlamps
as pumping sources for high power repetitive pulsed dye
lasers
Optics Communications, vol. 34, no. 2, 1980
- (HIR80b) A. Hirth, R. Meyer, and K. Schetter
On the proper choice of the preionization mode of linear
flashlamps
Optics Communications, vol. 35, no. 2, 1980
- (LUC80) T.B. Lucatorto, T.J. McIlrath, S. Mayo, and H.W. Furumoto
High stability coaxial flashlamp-pumped dye laser
Applied Optics, vol. 19, no. 18, 1980
- (GEE83) J. Geel
De eigenschappen van diverse flitsbuizen voor een
gepulste dye laser
Intern rapport T.U.Eindhoven, VDF/NT 83-09, 1983
- (CRI84) L.G. Cristophoru
Electron-molecule interactions and their applications
Academic Press, New York (1984)
- (HAS87) T. Hasegawa, and J.D. Winefordner
Rotational, vibrational and electronic excitation of a

neutral nitrogen molecule in the ICP
Spectrochimica Acta, vol. 42B, no. 5, 651-663, 1987

- (BUR80) D.D. Burgess, V.P. Meyerscough, C.H. Skinner and J.M. Ward
A comparison between theory and laser spectroscopic
measurements for a hydrogen plasma under high intensity
resonant Balmer line irradiation
J. Phys. B: Atom. Molec. Phys. 13, 1675-1701, 1980
- (HIM83) G. Himmel, and L. Sowa
Measurement of total decay rates of excited states in
deuterium plasma by laser resonance-fluorescence
J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, vol.30, no 4, 1983
- (SIJ83) B. v/d Sijde
Straling in plasma's: Deel I: botsings-stralingsmodellen
Intern rapport T.U. Eindhoven, VDF/NT 83-01, 1983
- (OST70) L. Oster
Am. J. Phys. 38, 754, 1970
- (KRO85) J.P.C. Kroon
Experiments on state selection and Penning ionisation
with fast metastable rare gas atoms
Proefschrift T.U.Eindhoven 1985
- (STA87) A. Staring
De constructie van een stikstoflaser
Intern rapport T.U.Eindhoven, VDF/NT 87-19
- (TP87) Tweede jaars projekt
Het bouwen van een stikstoflaser gepompte dye laser en
metingen aan een flitslamp gepompte dye laser.
Intern rapport T.U.Eindhoven, VDF/NT 87-22
- (ASS87) H.P.T. Assink
Intern rapport T.U.Eindhoven, nog te verschijnen.
- (GRAB7) B. Gravendeel
Negative corona discharges a fundamental study.
Proefschrift T.U.Eindhoven, 1987.

Met dank aan Joost, die mij laverent door mijn (soms spaghetti) conceptverslagen, nog langs de klippen kon navigeren.

Toine en Harold die tijdens hun stages aan stikstoflasers hebben gewerkt en de tweede jaars projektgroep: Erik, Herman, Mariëtte, Raymond, Richard en Simon, die gewerkt hebben aan stikstoflasers en de dye laser, hebben voor veel bruikbare resultaten gezorgd.

Voor alle technische assistentie wil ik verder Ries van de Sande, Guus Dik en de glasblazers van de CTD bedanken, die het toch maar voor elkaar kregen mijn ideeën om te zetten in laseronderdelen.