

MASTER

Excitatie-overdrachtsprocessen van $Xe^*(3P0,2)$, $Kr^{}(3D3)+N_2(X,v'=0)$**

van Asten, N.A.A.J.

Award date:
1996

[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 Universiteit Eindhoven
Faculteit der Technische Natuurkunde
Vakgroep Deeltjesfysica
Onderwerpgroep Atomaire en Optische Wisselwerkingen

**Excitatie-overdrachtsprocessen van
 $\text{Xe}^*(^3\text{P}_{0,2}), \text{Kr}^{**}(^3\text{D}_3) + \text{N}_2(\text{X}, \mathbf{v}'=0)$**

Collin van Asten

Afstudeerverslag VDF/NO 94-19
Augustus 1994

Begeleider : Ir. T.G. Aardema
Afstudeerhoogleraar : Prof. dr. H.C.W. Beijerinck

Samenvatting

In de vakgroep Deeltjesfysica, onderwerpgroep Atomaire en Optische Wisselwerkingen, wordt de interactie bestudeerd tussen atoom-, molecuul- en laserbundels.

In dit afstudeeronderzoek is de verhouding van de twee soorten metastabielen ($^3P_2/{}^3P_0$) in een Xe^* (${}^3P_2, {}^3P_0$)-bundel experimenteel bepaald, door het wegpompen van $Xe^*({}^3P_2)$ -metastabielen uit de bundel met behulp van een diodelaser. De bundelfractie (r) is gelijk aan $r=12 \pm 41$ en komt overeen met experimenteel afgeschatte waarden [NIJ92]. Met deze verhouding kan de absolute werkzamedoorsnede van het excitatie-overdrachtsproces $Xe^*({}^3P_0, {}^3P_2) + N_2$ worden bepaald.

Tevens is voor de eerste keer de excitatie-overdracht bestudeerd tijdens botsingen tussen kortlevende atomen ($Kr^{**}({}^3D_3)$) met moleculen in de grondtoestand ($N_2(X, v'=0)$). De werkzamedoorsnede van deze exotherme excitatie-overdracht is gemeten in een gekruist bundelexperiment als functie van de botsingsenergie ($85 \leq E \leq 115$ meV). De kortlevende $Kr^{**}({}^3D_3)$ -atomen zijn aangemaakt door metastabiele $Kr^*({}^3P_2)$ -atomen in een metastabilenbundel optisch te pompen, met behulp van een single-mode hoog vermogen diodelaser, bij een golflengte van 811.290 nm. Er is specifiek gekeken welke vibratieniveaus van de $N_2(C)$ -toestand na botsing zijn aangeslagen. Alleen de vibratieniveaus $v'=0$ en $v'=1$ van de $N_2(C)$ -toestand worden aangeslagen. Uit de oriëntatie afhankelijke metingen van het Kr^{**} -aatom in dit proces, kan helaas niets worden geconcludeerd.

Inhoudsopgave

1	Inleiding	1
1.1	Werkzamedoorsnede	1
1.2	Inelastische werkzamedoorsnede	2
1.3	Indeling verslag	5
2	Excitatie van atomen en moleculen	6
2.1	Inleiding	6
2.2	Energieniveaus van edelgas atomen	6
2.3	Optisch pompen	8
2.4	Polarisatie	11
2.5	Moleculaire energie niveaus	12
3	Experimentele opzet	14
3.1	Inleiding	14
3.2	Gekruiste bundelopstelling "Kist II"	15
3.3	Opstelling voor bundelfractiemeting	17
3.4	Opstelling voor botsingsexperimenten met Kr**	18
3.5	Meetmethode	21
3.6	Verwerking van resultaten	22
4	Bundelfractie	26
4.1	Inleiding	26
4.2	Theorie	27
4.3	Resultaten	28
5	Excitatie-overdracht	32
5.1	Inleiding	32
5.2	Interactiepotentialen	32
5.3	Landau-Zener model	35
5.4	Coördinaat systemen	37
6	Kr** + N₂(X, v'=0)	38
6.1	Inleiding	38

6.2	Uitzwaaimeting	39
6.3	Verzadigingsmeting	41
6.4	Werkzamedoorsnede	42
6.5	Polarisatie-afhankelijkheid	44
7	Conclusies en aanbevelingen	47
A	Radiële snelheid	51
B	C-coëfficiënten	52
C	Relatieve fout in bundelfractie	54

Hoofdstuk 1

Inleiding

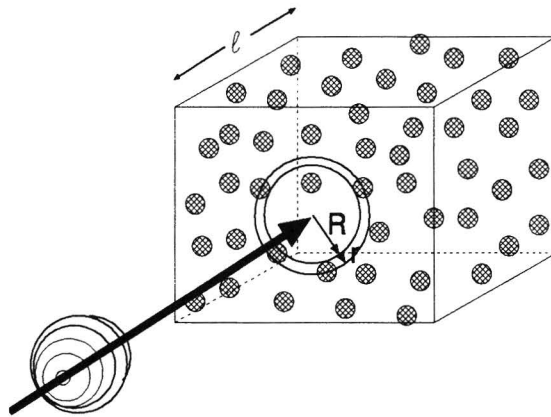
In de vakgroep Deeltjesfysica, onderwerpgroep Atomaire en Optische Wisselwerkingen, worden botsingsprocessen bestudeerd tussen geëxciteerde edelgas atomen met andere atomen of moleculen (b.v. N_2 , CO of NO). De botsingsexperimenten worden gedaan met behulp van bundelopstellingen, waarmee botsingsprocessen snelheidsopgelost kunnen worden gemeten. Bovendien wordt er in de groep AOW zowel fundamenteel als praktisch onderzoek gedaan naar laserkoeling, met als doel een "Bright Atomic Beam" te maken. Dit is een atoombundel met zeer hoge dichtheden, waardoor veel hogere telsnelheden in bundelopstellingen kunnen worden bereikt. Bovendien kan met deze techniek de snelheid van de atomen in de bundel worden gevarieerd. Ook elders in de wereld wordt veel botsingsonderzoek gedaan. De resultaten van dit soort onderzoek zijn van belang om een beter inzicht te krijgen in chemische reacties, gasontladingen en plasma's.

1.1 Werkzamedoorsnede

Theoretisch wordt de waarschijnlijkheid dat een botsingsproces plaatsvindt, gegeven door het nlQ -produkt. Hierin stelt n de dichtheid [m^{-3}], l de interactielengte [m] en Q de werkzamedoorsnede [m^2] voor. In de "harde bol"-benadering kan deze waarschijnlijkheid worden voorgesteld als het aantal keer dat een inkomend deeltje botst als deze l meter heeft afgelegd in een volume met deeltjesdichtheid n (zie fig.1.1). De werkzamedoorsnede, in de harde bol benadering, is gelijk aan het trefoppervlak $\pi(r + R)^2$, met r en R de stralen van de twee botsingspartners. Een botsingsproces dat vaak plaatsvindt, heeft een grote werkzamedoorsnede, we kunnen dit voorstellen door een groot trefoppervlak (zie fig.1.1).

Experimenteel gezien wordt de kans, dat een bepaald botsingsproces plaatsvindt, gevonden uit de verhouding van de deeltjesstroom van ingaande bundel (Φ_{in}) en de stroom van gebotste deeltjes uit het strooicentrum (Φ_{uit}). De experimenteel gevonden werkzamedoorsnede is dan:

$$Q = \frac{\Phi_{uit}}{\Phi_{in}} \frac{1}{\langle nl \rangle} . \quad (1.1)$$



Figuur 1.1: De werkwamedoorsnede tijdens een botsingsproces in de "harde bol" benadering, met R en r de stralen van de desbetreffende botsingspartners.

Er zijn veel verschillende processen die kunnen plaatsvinden tijdens een botsing. Voor elk botsingsproces kan een Q worden bepaald. Bij elastische botsingen zijn de begin- toestand en eindtoestand gelijk, de deeltjes worden verstrooid onder een hoek (Θ, ϕ) ten opzichte van de inkomende deeltjesbundel. Bij inelastische botsingen zijn de begintoe- stand en eindtoestand verschillend. Ook hier is sprake van een verstrooiing van de inkomende deeltjes. Wanneer gekeken wordt naar de werkwamedoorsnede als functie van de hoeken Θ en ϕ , dan spreekt men over de differentiële werkwamedoorsnede $\sigma(\Theta, \phi)$. Voorbeelden van verschillende soorten inelastische botsingen zijn:

- Penning ionisatie: Atomen die in de begintoe- stand zijn geëxciteerd, worden tijdens de botsing geïoniseerd. Er kan nu een werkwamedoorsnede worden bepaald die aangeeft hoe groot de kans is dat een geëxciteerd atoom wordt geïoniseerd.
- Excitatie-overdracht: Atomen die in de begintoe- stand zijn geëxciteerd, worden tij- dens de botsing in een lager liggende toestand gebracht. De verloren energie wordt gebruikt om de botsingspartner te exciteren.

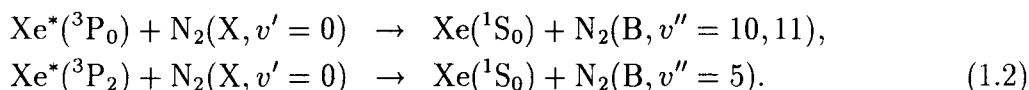
1.2 Inelastische werkwamedoorsnede

In deze afstudeerperiode is onderzoek gedaan naar inelastische botsingsprocessen. Gekeken is naar de excitatie-overdracht die plaatsvindt tussen een geëxciteerd edelgas atoom en een N_2 -molecuul in de grondtoestand. De elektronische- en vibrationele- eindtoestand van het N_2 -molecuul wordt bepaald aan de hand van de vervalstraling van deze eindtoestand. In het verleden zijn met de gebruikte opstelling vooral botsingen bestudeerd tussen metastabiele Ar^* -, Kr^* - en Xe^* -atomen en N_2 -moleculen in de grondtoestand [VRE90, AAR91, NIJ92].

De experimenten die hier zijn gedaan, maken bovendien gebruik van diodelasers om de metastabiele edelgasatomen te exciteren naar hoger gelegen kortlevende niveaus. Daar- voor is tijdens deze afstudeerperiode de bestaande opstelling "Kist II" uitgebreid met een

diodelaseropstelling. Tevens is in deze opstelling onder andere gebruik gemaakt van een nieuwe hoog vermogen, single mode diodelaser.

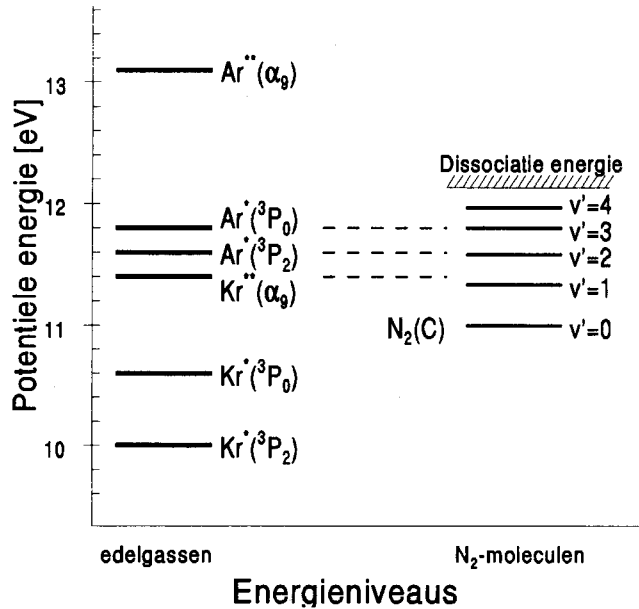
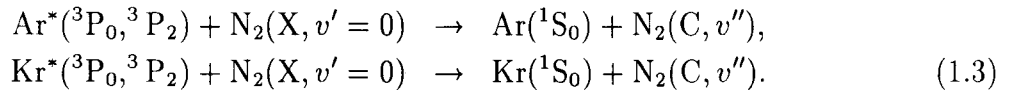
Er worden twee verschillende onderzoeken besproken in dit afstudeerverslag. Het eerste onderzoek heeft betrekking op de bepaling van de bundelfractie (r) van een metastabiele Xe*-bundel. Dit is de verhouding in de bundel tussen het aantal metastabielen van Xe in de 3P_0 -toestand en in de 3P_2 -toestand. Deze bundelfractie wordt bepaald door het wegpompen van 3P_2 -metastabielen uit de Xe*-bundel, met behulp van een diodelaser. Het onderzoek is van belang voor de bepaling van de absolute werkzamedoorsnede voor de toestandselectieve excitatie-overdrachtsprocessen [NIJ92]:



Omdat er in een metastabiele Xe*-bundel veel meer Xe*(3P_2) zit dan Xe*(3P_0), is het vooral voor de excitatie van $\text{N}_2(\text{B}, v''=10,11)$ erg belangrijk wat de bundelfractie precies is [NIJ92]. Tevens is het de eerste keer dat gekeken wordt naar de botsingsenergie-afhankelijkheid van de bundelfractie.

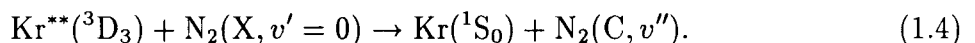
In het tweede onderzoek wordt het excitatie-overdrachtproces bestudeerd tussen een edelgasatoom in een kortlevende geëxciteerde toestand en een N_2 -molecuul in de grondtoestand. Het interessante van dit experiment is dat het kortlevende edelgasatoom in deze situatie een anisotrope ruimtelijke ladingsverdeling heeft. Met andere woorden de oriëntatie van het edelgasatoom ten opzichte van het N_2 -molecuul kan van invloed zijn op het excitatieproces. Aangezien dit excitatieproces voor het eerst wordt bestudeerd, moet worden bepaald welk kortlevend atoom de grootste waarschijnlijkheid heeft om een van de N_2 -toestanden te exciteren. Wanneer de totale energie ($E_{pot} + E_{kin}$) van de edelgasatomen hoger is dan de totale potentiële-energie van het geëxciteerde N_2 -molecuul ($E_{vibr} + E_{elek}$), dan kan een N_2 -molecuul in principe worden geëxciteerd tijdens de botsing. De overgebleven energie kan dan worden omgezet in kinetische-energie van de botsingspartners. Uit de vervalstraling van het geëxciteerde N_2 -molecuul, kan worden afgeleid in welke geëxciteerde toestand het N_2 -molecuul zat direct na de botsing. Alleen licht met een golflengte tussen de (200-800 nm) kan worden waargenomen met een photomultiplier. De vervalstraling van de $\text{N}_2(\text{B}$ en $\text{C})$ -toestanden (respectievelijk first en second positive system) kunnen we goed detecteren met de reeds aanwezige photomultipliers en interferentiefilters. De interferentiefilters die we gebruiken om de vervalstraling van de $\text{N}_2(\text{B})$ -toestand te detecteren, zijn een klein beetje transparant voor het laserlicht dat we gebruiken om de metastabiele atomen te exciteren naar de kortlevende toestand ($\lambda=811$ nm). Daardoor kunnen we de vervalstraling van de $\text{N}_2(\text{B})$ -toestand in deze experimentele situatie niet goed genoeg onderscheiden van de achtergrond van het laserlicht. De interferentiefilters die we gebruiken om de vervalstraling van de $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand te detecteren, blokkeren wel al het laserlicht. De geëxciteerde $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand is dus de beste kandidaat om te onderzoeken. Bovendien is er al veel bekend over de elektronische $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand en de manier waarop deze worden

geëxciteerd door de excitatie-overdrachtprocessen met Ar^* en Kr^* [VRE90]:



Figuur 1.2: *Energieniveaus van de verschillende edelgassen en van de $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand.*

In figuur 1.2 worden de energieniveaus van de edelgassen vergeleken met de energieniveaus van de verschillende vibratietoestanden van de $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand. Wanneer we de potentiële-energie van de Kr^* -, Ar^* -, Kr^{**} - en Ar^{**} -atomen vergelijken met de potentiële-energie van de elektronisch geëxciteerde toestanden van het N_2 -molecuul, dan kan het N_2 -molecuul in principe naar verschillende toestanden worden geëxciteerd. Bijvoorbeeld $\text{Ar}^*(^3\text{P}_0)$ en $\text{Ar}^*(^3\text{P}_2)$ kunnen de $\text{N}_2(\text{C}, v'=0..2)$ exciteren tijdens botsingen [VRE90]. Omdat de metastabiele niveaus van Kr lager liggen dan die van Ar, kunnen die het N_2 -molecuul niet exciteren naar de $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand. Pas bij voldoende hoge kinetische energie kan de $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand door Kr^* -atomen worden geëxciteerd [VRE90] (≈ 0.5 eV voor $\text{Kr}^*(^3\text{P}_0)$ en ≈ 1.0 eV voor $\text{Kr}^*(^3\text{P}_2)$). De potentiële-energie van het kortlevende Ar^{**} -atoom (13.1 eV) is hoger dan de dissociatie-energie van de $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand (12.1 eV). Als er excitatie-overdracht plaats vindt tijdens botsingen tussen Ar^{**} en N_2 , dan zal het N_2 -molecuul waarschijnlijk worden gedissociëerd. Ook kan het N_2 -molecuul worden geëxciteerd naar een toestand die hoger ligt dan de $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand. Hiervan kunnen we de vervalstraling niet detecteren, bovendien is er weinig bekend van deze toestanden. Het kortlevende Kr^{**} -atoom heeft een potentiële-energie (11.4 eV) die lager ligt dan de dissociatie-energie van de $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand, deze kan het N_2 -molecuul dus gemakkelijk exciteren naar de $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand. We bestuderen nu alleen de excitatie-overdracht van $\text{Kr}^{**} + \text{N}_2(\text{X})$. Met name zal worden gekeken welke vibratieniveaus van de $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand worden aangeslagen:



Ten eerste wordt onderzocht hoeveel $\text{Kr}^*(^3\text{P}_2)$, door de diodelaser wordt gepompt naar de kortlevende $\text{Kr}^{**}(^3\text{D}_3)$ -toestand. Dit is van belang om de absolute werkzamedoorsnede van dit excitatie-overdrachtsproces te bepalen. Tenslotte is het ook interessant om de oriëntatie van het Kr^{**} -atoom ten opzichte van de botsingssnelheid te variëren, door de polarisatie van de diodelaser te draaien. De oriëntatie-afhankelijkheid van het excitatie-overdrachtsproces kan zo worden bestudeerd.

1.3 Indeling verslag

In hoofdstuk 2 wordt eerst uitgelegd welke atomaire- en moleculaire-energieniveaus meedoen tijdens de excitatie-overdrachtprocessen. Ook wordt uitgelegd hoe de edelgas atomen worden geëxciteerd, hoeveel er worden geëxciteerd en hoe we ze kunnen oriënteren.

De experimenten die in dit verslag worden beschreven, zijn gedaan met de gekruiste bundelopstelling "Kist II", in hoofdstuk 3 wordt deze opstelling beschreven. De karakteristieken van de gebruikte diodelasers, de stabilisatie van de diodelasers en de optica die de laserbundel in de juiste vorm inkoppelt in de gekruiste bundelopstelling "Kist II", worden ook beschreven hoofdstuk 3. Bovendien staat in dit hoofdstuk de gevolgde meetmethode en de verwerkingsprocedures.

In hoofdstuk 4 worden de bundelfractie metingen besproken. Eerst wordt de theorie uitgelegd in §4.2. Daarna worden in §4.3 de resultaten besproken.

Een botsingsproces kan volledig worden beschreven door zogenaamde interactiepotentialen. In hoofdstuk 5 wordt uitgelegd wat interactiepotentialen zijn en hoe een excitatie-overdrachtsproces kan worden beschreven door een zogenaamd Landau-Zener model dat uitgaat van kruisingen tussen de verschillende interactiepotentialen. Met behulp van dit Landau-Zener model kan, uit de energie afhankelijke werkzamedoorsnede $Q(E)$, de vorm en de ligging van de potentiaalkruisingen worden bepaald. Ook wordt in dit hoofdstuk uitgelegd hoe de verschillende Kr^{**} -oriëntaties het botsingsproces beïnvloeden.

In hoofdstuk 6 staan de resultaten van de excitatie-overdrachtprocessen van $\text{Kr}^{**} + \text{N}_2(\text{X})$. Eerst worden metingen besproken die de hoeveelheid aangemaakt Kr^{**} bepalen. Daarna wordt de energie-afhankelijke werkzamedoorsnede gegeven en besproken. Tenslotte staan de resultaten van de polarisatie-afhankelijke botsingen gegeven.

In hoofdstuk 7 staan tenslotte de conclusies van dit afstudeeronderzoek.

Hoofdstuk 2

Excitatie van atomen en moleculen

2.1 Inleiding

Bij excitatie-overdrachtsprocessen wordt de excitatie-energie van een deeltje overgedragen aan de botsingspartner. In dit hoofdstuk wordt ingegaan op de verschillende energieniveaus van edelgasatomen en van het N_2 -molecuul. Ook wordt beschreven hoe we de atomen kunnen exciteren door middel van een laser. In paragraaf 2.2 worden verschillende toestanden van de edelgasatomen beschreven en wordt de notatie van deze toestanden uitgelegd. In de derde paragraaf wordt uitgelegd hoe we de atomen met een laser kunnen exciteren. Er wordt specifiek gekeken naar een overgang van metastabiel $Kr^*(^3P_2)$ naar het kortlevende $Kr^{**}(^3D_3)$ -niveau. In deze paragraaf wordt een oplossing gegeven voor het aantal atomen dat in de kortlevende toestand zit. Tijdens de laserexcitatie, kan het Kr^{**} -atoom ook worden georiënteerd. Hoe dat gebeurt en wat deze oriëntatie precies inhoudt wordt beschreven in paragraaf 2.4. Tenslotte worden in de laatste paragraaf de energieniveaus van het N_2 -molecuul gegeven.

2.2 Energieniveaus van edelgas atomen

Edelgas atomen zijn atomen die in de grondtoestand volledig gevulde elektronenschillen hebben:

$$\begin{aligned} \text{He} : & \quad (1s)^2 & \text{K-schil,} \\ \text{Ne} : & \quad +(2s)^2(2p)^6 & \text{L-schil,} \\ \text{Ar} : & \quad +(3s)^2(3p)^6 & \text{M-schil,} \\ \text{Kr} : & \quad +(4s)^2(4p)^6 & \text{N-schil,} \\ \text{Xe} : & \quad +(5s)^2(5p)^6 & \text{O-schil.} \end{aligned} \tag{2.1}$$

In deze grondtoestand heeft het atoom de minste interne energie ($E=0$). Elke andere elektronenconfiguratie betekent een hogere interne energie voor het atoom ($E>0$). De

verschillende toestanden kunnen worden weergegeven door de Russel-Saunders notatie:

$$^{2S+1}L_J. \quad (2.2)$$

De grondtoestand van een edelgas atoom kan worden gegeven door 1S_0 , omdat volledig gevulde schillen geen L en S bijdragen hebben.

Het eerste energieniveau boven de grondtoestand correspondeert met de elektronenconfiguratie waarin een elektron in de hoogst bezette $(np)^\dagger$ -baan is geëxciteerd naar het laagst gelegen niveau in de volgende schil, een $(n+1)s$ -baan. De elektronenschil is niet meer volledig bezet, dus nu kan het atoom een totaal impulsmoment ($J=L+S$) ongelijk aan nul hebben. Het baanimpulsmoment ($l_1 = 1$) van het gat in de np -baan + het baanimpulsmoment ($l_2 = 0$) van het geëxciteerde elektron in een $(n+1)s$ -baan, kan koppelen tot een baanimpulsmoment $L = l_1 + l_2 = 0, 1$. Voor het spinimpulsmoment (S) geldt hetzelfde $S = s_1 + s_2 = 0, 1$. Deze L en S kunnen verschillende oriëntaties hebben ten opzichte van elkaar. Ze kunnen dus op verschillende manieren koppelen ($J=0..2$). Elke oriëntatie heeft een andere energie. Zo krijgen we 4 verschillende energieniveaus voor atomen met het buitenste elektron in de $(n+1)s$ -baan. De energie opsplitsing tussen deze niveaus onderling is klein ten opzichte van de grondtoestand (zie fig. 2.1). Na excitatie zullen de atomen hun energie gauw weer verliezen en vervallen ze naar de grondtoestand. Vanwege de selectiekriteria:

$$\Delta J = -1, 0, +1 \text{ en } J = 0 \not\rightarrow 0, \quad (2.3)$$

kunnen de toestanden 3P_0 en 3P_2 niet direkt terugvallen naar de grondtoestand. Ze leven dus langer (levensduur in de orde van seconden), deze toestanden noemen we metastabiel.

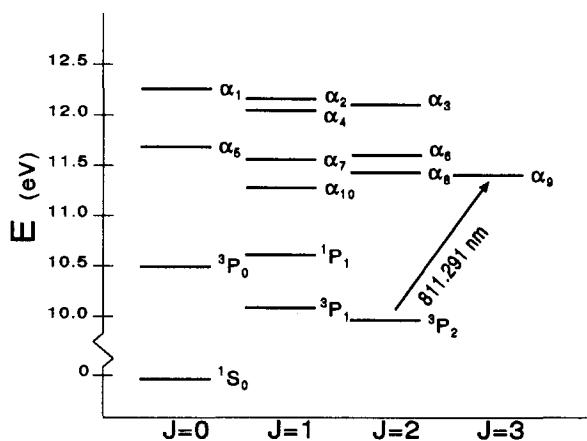
De toestanden die hierboven liggen, zijn toestanden waarin het buitenste elektron in een $(n+1)p$ -baan zit. Dit zijn zogenaamde kortlevende toestanden (levensduur in de orde van ns). Voor deze toestanden geldt:

$$\begin{aligned} L &= l_1 + l_2 = 0, 1, 2, \\ S &= s_1 + s_2 = 0, 1. \end{aligned} \quad (2.4)$$

Deze kunnen op 10 verschillende manieren koppelen tot een totaal impulsmoment $J=0..3$. Al deze toestanden hebben een andere energie, ze worden binnen de groep AOW genoteerd als $\alpha_1 t/m \alpha_{10}$ in volgorde van afnemende energie (zie fig. 2.1).

Alle toestanden zijn ontaard in $2J+1$ subniveaus ($m_j = -|J|... + |J|$). Deze splitsen op als de atomen zich in een magneetveld bevinden (Zeeman-effect). Omdat de energieën evenredig zijn met de massa, zijn de energieniveaus van verschillende isotopen een klein beetje verschoven ten opzichte van elkaar. Ook kan er een energieverval tussen atomen met verschillende kernspin (hyperfijnopsplitsing) optreden, als deze kernspin (I) koppelt met het totale impulsmoment (J). Alleen de oneven isotopen van de edelgassen hebben een kernspin, dus de oneven isotopen krijgen een extra energieverval. De energieverval tussen de verschillende isotopen zijn echter veel kleiner dan de energieverval tussen atomen met verschillende spin-baan koppeling. Onder normale omstandigheden hebben atomen te weinig energie en zitten alle atomen in de grondtoestand.

[†]Dit geldt niet voor He, zie (2.1).



Figuur 2.1: De energieniveaus van Kr-atomen, met de metastabiele toestanden 3P_0 en 3P_2 en de kortlevende toestanden α_1 t/m α_{10} .

2.3 Optisch pompen

De atomen in de grondtoestand kunnen worden geëxciteerd naar de metastabiele toestanden 3P_0 en 3P_2 door middel van een metastabielenbron. Daarin wordt een ontlading getrokken door het edelgas. Metastabiele atomen ontstaan dan door botsingen van edelgasatomen in de grondtoestand met elektronen en ionen van de ontlading [VER84]. Deze metastabiele atomen kunnen nu weer worden geëxciteerd naar de hogergelegen kortlevende toestanden (α_1 t/m α_{10}), door een foton te absorberen. Dit laatste proces noemen we het optisch pompen van een atoom.

We bekijken nu de overgang van ${}^3P_2 \rightarrow {}^3D_3$ (α_9). Deze overgang is een twee-niveau systeem, dat wil zeggen dat volgens de selectieregels (2.3) het α_9 -niveau alleen te bereiken is vanuit het 3P_2 -niveau en dat het α_9 -niveau alleen kan vervallen naar het 3P_2 -niveau. De atomen die dus een keer gepompt zijn, kunnen na verval weer opnieuw worden gepompt enz.

In de volgende beschouwing gaan we uit van totaal N atomen, waarvan er N_g in de 3P_2 -toestand zitten en N_e in de α_9 -toestand ($N = N_g + N_e$). De atomen in de beneden-toestand (3P_2) kunnen naar de boventoestand (α_9) worden gepompt met behulp van licht met frequentie $\nu = (E_e - E_g)/h$ en een fotonenflux $\Phi = P/h\nu\pi R^2$. Het aantal atomen dat per seconde naar de boventoestand gaat, de absorptiesnelheid R_{abs} , wordt dan gegeven door [MIL88]:

$$R_{abs} = N_g \sigma_{ge} \Phi. \quad (2.5)$$

Dit is evenredig met Φ de fotonenflux [$1/m^2s$], het aantal atomen in de beneden toestand N_g en σ_{ge} de werkzamedoorsnede van fotonabsorptie [m^2]. De werkzamedoorsnede is nu gedefiniëerd als de energieabsorptiesnelheid per atoom in de beneden toestand gedeeld door de energieflux van de fotonen ($\Phi h\nu$).

Het verval van de boventoestand terug naar de beneden-toestand kan op twee manieren verlopen, via spontane emissie en via gestimuleerde emissie. Bij gestimuleerde emissie

vervalt het atoom van de boventoestand naar de benedentoestand onder invloed van een invallend foton. De vervalsnelheid R_{stim} , is dan equivalent aan de absorptiesnelheid:

$$R_{stim} = N_e \sigma_{eg} \Phi. \quad (2.6)$$

Bij spontane emissie vervalt het atoom als gevolg van zijn eindige levensduur ($\tau = 1/\Gamma$) vanzelf naar de beneden toestand. De vervalsnelheid van dit proces R_{spont} wordt gegeven door [MIL88]:

$$R_{spont} = N_e \Gamma. \quad (2.7)$$

Het spontaan verval is dus onafhankelijk van het lichtvermogen, terwijl absorptie en gestimuleerde emissie wel afhankelijk zijn van het lichtvermogen. We kunnen nu een verzadigingsintensiteit I_0 definiëren, waarbij spontaan verval twee keer zo vaak plaats vindt als gestimuleerde emissie:

$$I_0 = \frac{\Gamma h \nu}{2 \sigma_{eg}}. \quad (2.8)$$

De intensiteit van het licht met frequentie ν kan nu worden geschaald met de verzadigingsintensiteit. Dit levert de verzadigingsparameter s_{eg} op:

$$s_{eg} = \frac{I}{I_0} = \frac{2 \Phi \sigma_{eg}}{\Gamma}. \quad (2.9)$$

Het 3P_2 -niveau is ontaard in 5 verschillende m_j -toestanden en het α_9 -niveau is ontaard in 7 verschillende m_j -toestanden. In deze beschouwing gaan we uit van een statistische subniveau-bezetting, dat betekent dat alle ontaarde niveaus gelijk bezet zijn. We kunnen nu niet spreken van een zuiver twee-niveausysteem. Dit leidt tot een verschil tussen σ_{ge} en σ_{eg} :

$$\sigma_{eg} = \frac{g_g}{g_e} \sigma_{ge} = \frac{5}{7} \sigma_{ge}. \quad (2.10)$$

Met behulp van bovenstaande definities (2.9) en (2.10) kunnen we de absorptiesnelheden en de vervalsnelheden schrijven als:

$$\begin{aligned} R_{abs} &= N_g \frac{1}{2} s_{ge} \Gamma, \\ R_{stim} &= N_e \frac{1}{2} \frac{g_g}{g_e} s_{ge} \Gamma, \\ R_{spont} &= N_e \Gamma. \end{aligned} \quad (2.11)$$

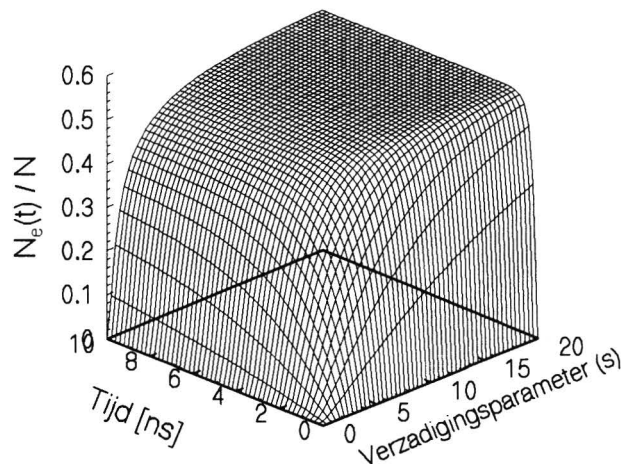
Het totale aantal atomen dat per seconde naar de boven- en beneden toestand gaat, wordt dan gegeven door:

$$\begin{aligned} \dot{N}_g &= \Gamma N_e + \frac{1}{2} s \Gamma \left(\frac{g_g}{g_e} N_e - N_g \right), \\ \dot{N}_e &= -\Gamma N_e - \frac{1}{2} s \Gamma \left(\frac{g_g}{g_e} N_e - N_g \right). \end{aligned} \quad (2.12)$$

Hierin is s_{ge} geschreven als s . Als we aannemen dat alle atomen in het begin ($t = 0$) in de benedentoestand zitten, dan wordt de oplossing van (2.12) gegeven door:

$$\frac{N_e(t)}{N} = \left[-\frac{s}{2 + \left(\frac{g_g}{g_e} + 1\right)s} \right] e^{-\Gamma t \left(1 + \frac{g_g + g_e}{2g_e} s\right)} + \frac{s}{2 + \left(\frac{g_g}{g_e} + 1\right)s}. \quad (2.13)$$

In figuur 2.2 is deze oplossing getekend als functie van t en de verzadigingsparameter s .



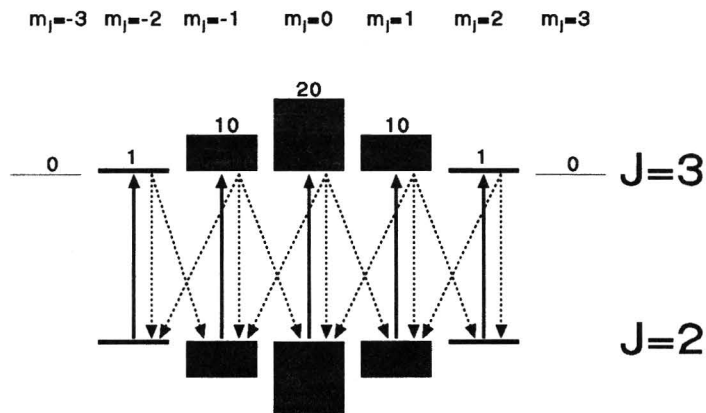
Figuur 2.2: Bovenniveau bezetting als functie van tijd en intensiteit, voor de overgang van $\text{Kr}^*(^3P_2) \rightarrow \text{Kr}^{**}(\alpha_9)$, ($\frac{g_g}{g_e} = \frac{5}{7}$, $\Gamma = 35 * 10^6 \text{ s}^{-1}$).

Voor atomen die gedurende enkele microseconden interactie hebben met het laserlicht ($t\Gamma \gg 1$), mogen we de bovenniveaubezetting dus onafhankelijk van de tijd schrijven als:

$$\frac{N_e}{N} = \frac{s}{2 + \left(\frac{g_g}{g_e} + 1\right)s}. \quad (2.14)$$

Als de intensiteit nu hoog is ($I \gg I_0$) dan wordt de bovenniveaubezetting gelijk aan $\frac{g_g + g_e}{g_e} N$.

In de praktijk hebben we geen statistische bezetting over de verschillende m_j -toestanden. De bezetting g_j over de verschillende ontaarde m_j -toestanden wordt bepaald door de manier waarop een atoom naar de boventoestand wordt gepompt en naar welke toestand het weer vervalst. Als het atoom wordt geëxciteerd met lineair gepolariseerd licht, dan geldt $\Delta L = 1$, $\Delta m_j = 0$ (zie fig 2.3). Als het atoom vaak naar de boventoestand wordt gepompt en vaak spontaan vervalst, zal op den duur een stationaire verdeling ontstaan ($g_0 : g_{\pm 1} : g_{\pm 2} : g_{\pm 3} = 20 : 10 : 1 : 0$) over de verschillende m_j -toestanden (zie fig. 2.3). Al na ongeveer 4 pompcycli, ontstaat zo'n stationaire verdeling [BEE92]. In de praktijk zal dit voor hoge intensiteiten altijd het geval zijn. Als er maar 1 pompcyclus heeft plaatsgevonden (zeer lage intensiteiten), is de relatieve bezettingsverhouding $g_0 : g_{\pm 1} : g_{\pm 2} : g_{\pm 3} = 9 : 8 : 5 : 0$, dit is gelijk aan de verhouding van de kwadraten van de Clebsch-Gordon coëfficiënten van deze overgang [BEE92].



Figuur 2.3: *Stationaire bezetting bij excitatie door lineair gepolariseerde bundel, bij hoge intensiteit.*

2.4 Polarisatie

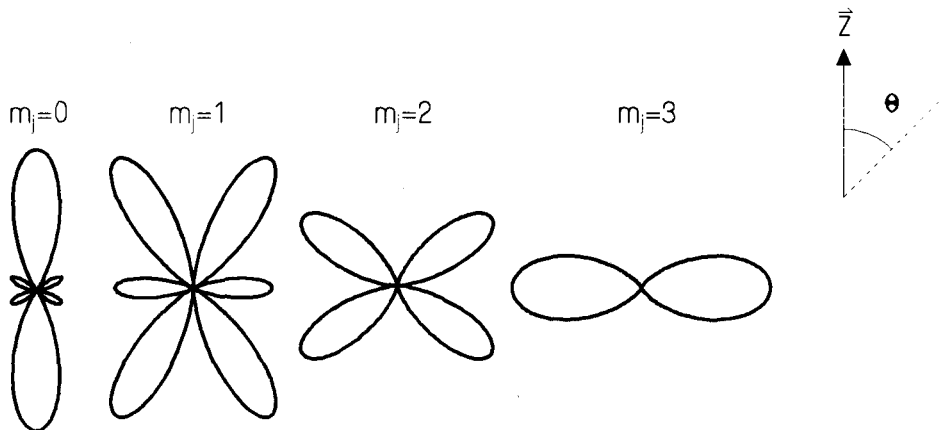
In de vorige paragraaf hebben we gezien dat we een atoom kunnen exciteren naar een hogere toestand, door een foton te absorberen. Het atoom heeft in deze geëxciteerde toestand een andere vorm. De vorm van een atoom in een bepaalde toestand, de ruimtelijke uitgebreidheid van de elektronen-baan, kan worden gegeven door de gekwadraterde eigenfunctie van de toestand waarin het atoom zich bevindt. Een atoom in de kortlevende toestand heeft het buitenste elektron in een $(n + 1)p$ -baan, dat wil zeggen $L = 1$ en $m = -1, 0, +1$. De vorm van die eigenfunctie is getekend in figuur 2.4.a Dit elektron zit gemiddeld verder weg van de kern vergeleken met de andere elektronen. De rest van de elektronen zitten nog in dezelfde baan als in de grondtoestand. De rest van het atoom is dus hetzelfde als een atoom in de grondtoestand, maar met een gat op een np plaats. De “vorm” van dit gat is identiek als de $(n + 1)p$ -baan, maar dan kleiner (zie fig. 2.4.b).



Figuur 2.4: a) *Eigenfunctie van het buitenste elektron in een $(n+1)p$ -baan.* b) *Eigenfunctie van het gat in een np -baan.*

De totale golffunctie van het atoom is afhankelijk van de manier waarop deze twee toestanden koppelen. De L en S kunnen koppelen tot nieuwe J 's, die ook nog bestaan uit verschillende ontaarde niveaus met verschillende m_j 's (zie §2.2). De vorm van de verschillende m_j -toestanden van het α_9 -niveau ($J = 3$) wordt gegeven door het hoekafhankelijke deel $Y_{l,m}(\Theta, \phi)$ van de eigenfuncties. De gekwadraterde hoekafhankelijke delen

$|Y_{l,m}(\Theta, \phi = 0)|^2$ staan getekend in figuur 2.5 ten opzichte van een kwantisatie-as \vec{z} . Bij lineair gepolariseerd laserlicht is de \vec{E} vector van het gepolariseerde licht, de kwantisatie-as voor de m_j -toestanden ($\vec{z} \parallel \vec{E}$). Door de polarisatierichting van het laserlicht (\vec{E}) te draaien, kunnen we dus de banen oriënteren.



Figuur 2.5: Polaire weergave van de gekwadrateerde hoekafhankelijke eigenfuncties voor de verschillende m_j -toestanden van het α_9 -niveau.

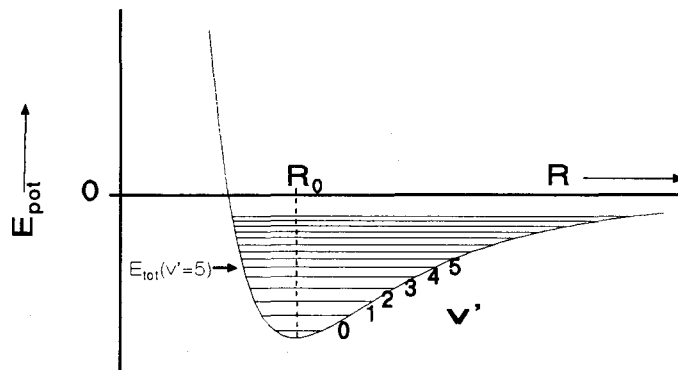
2.5 Moleculaire energie niveaus

Ook een molecuul heeft verschillende energieniveaus. Ten eerste kan een molecuul roteren om zijn massamiddelpunt. De rotatie energie die het molecuul bezit is gequantiseerd en is in de orde van meV. Deze energie verschillen tussen de rotatie niveaus onderling, zijn te klein om ze te kunnen meten met de meetopstelling, daarom zullen we deze rotatie-energie verder verwaarlozen.

Atomen in een molecuul zijn aan elkaar gebonden door de elektronen die ze met elkaar delen, de bindingslektronen. De overlap-integraal van de golffuncties van de twee elektronen zorgt voor een lagere energietoestand, dus binding. Als de binding in elkaar wordt gedrukt, of uit elkaar wordt getrokken, dan verandert de overlap-integraal, dus verandert ook de potentiële-energie van het molecuul. Dit is weergegeven in de figuur 2.6, waarin de potentiële-energie staat aangegeven als functie van de afstand tussen de atomen.

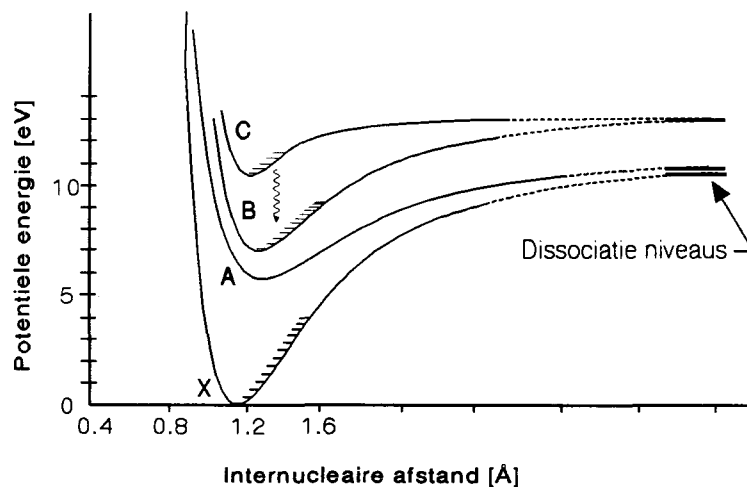
Het molecuul kan nu gaan trillen om het evenwichtspunt R_0 . De totale vibratie-energie die het molecuul dan heeft (kinetische + potentiële- vibratie-energie), is ook gequantiseerd. De verschillende vibratietoestanden worden genoteerd als $v'=0..n$. De totale vibratie-energie $E_{tot}(v'=n)$ blijft gelijk, dus het verschil tussen de potentiële-energie en de totale energie $E_{tot}(v'=n)$ geeft de kinetische-energie (zie fig. 2.6).

Moleculen kunnen ook elektronisch worden aangeslagen. Een of meerdere elektronen in een molecuul worden dan geëxciteerd naar een hogere toestand. Deze toestanden worden aangegeven door een hoofdletter. We kunnen een N_2 -molecuul dat zowel elektronisch



Figuur 2.6: De potentiële-energie van een molecuul met verschillende vibratie-toestanden als functie van de afstand tussen de atomen.

als vibrationeel in de grondtoestand zit noteren als $N_2(X, v'=0)$. Belangrijke geëxciteerde toestanden van het N_2 -molecuul die vervallen onder uitzending van zichtbaar licht zijn; de elektronische A-, B- en C-toestanden. In figuur 2.7 staan ze getekend samen met de grondtoestand (X) in een grafiek.



Figuur 2.7: Schematische weergave van enkele elektronisch geëxciteerde toestanden van het N_2 -molecuul met de daarbij behorende vibratieniveaus.

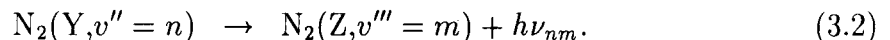
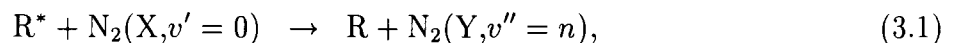
Het elektronisch geëxciteerde molecuul vervalt naar een lagere elektronische toestand, de vibratietoestand kan tijdens het verval ook veranderen. De golflengte van het foton dat tijdens het verval wordt uitgezonden correspondeert met het energieverval van beneden- en boventoestand, uit deze golflengte kunnen we bepalen in welke toestand het N_2 -molecuul zat.

Hoofdstuk 3

Experimentele opzet

3.1 Inleiding

Tijdens dit onderzoek is gebruik gemaakt van de gekruiste bundelopstelling “Kist II”. Deze opstelling is al jaren in de groep AOW aanwezig en heeft vooral haar diensten bewezen bij onderzoek naar botsingen tussen metastabiel Ar^* , Kr^* en Xe^* in de $^3\text{P}_0$ en $^3\text{P}_2$ toestand met N_2 -moleculen in de grondtoestand [VRE90, AAR91, NIJ92]. Er werd daarbij gekeken naar de excitatie-energie die de N_2 -moleculen kregen na botsing. Aan de uitgezonden straling, tijdens het verval van de N_2 -moleculen, kan worden bepaald in welke toestand het N_2 -molecuul heeft gezeten direct na de botsing. Het botsingsproces ziet er dan in het algemeen als volgt uit:



Hierin stelt R^* een metastabiele toestand voor van een edelgas (Ne, Ar, Kr of Xe). Het foton dat tijdens het verval van het N_2 -molecuul wordt uitgezonden, kan met behulp van het optisch systeem van “Kist II” worden gemeten. In de volgende paragraaf (§3.2) wordt in het kort iets over deze opstelling geschreven. Voor gedetailleerdere informatie wordt verwezen naar de referenties [BOO88, VRE90].

Anders dan in de voorgaande experimenten, wordt in dit onderzoek gebruik gemaakt van diodelasers om de atoombundel te exciteren. Voor het optisch pompen van Kr^* , Ar^* en Xe^* naar de kortlevende toestanden (α_1 t/m α_{10}) hebben we infrarood licht nodig. Diodelasers gemaakt van AlGaAs zijn hiervoor uitermate geschikt, omdat ze precies die golflengte uitzenden die we daarvoor nodig hebben ≈ 800 nm. Binnen de groep AOW is een diodelaser systeem ontwikkeld waarmee de diodelasers in de experimenten kunnen worden gebruikt [HUR90, KNO92, MEG92]. Met dit systeem kan de frequentie van het laserlicht worden veranderd door de stroom en de temperatuur van de diodelaser te variëren. Omdat het voor pompexperimenten van belang is dat de frequentie van het laserlicht altijd gelijk is aan de overgangsfrequentie van de atomaire niveaus, is ook een regeling ontwikkeld die de diodelaser stabiliseert op deze overgangsfrequentie. Er zijn twee verschillende diodelasers

gebruikt voor twee verschillende experimenten. Dit komt omdat we bij deze experimenten verschillende atomen en verschillende overgangen pompen, die niet met dezelfde laser te bereiken zijn. Het eerste experiment (Hfd.4) is het pompen van $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ met het doel de bundelfractie van de metastabiele Xe^* -bundel te bepalen. De gebruikte experimentele opstelling voor dit experiment wordt beschreven in §3.3. In het tweede experiment (Hfd.6) wordt een diodelaser gebruikt om kortlevend Kr^{**} te maken, de gebruikte opstelling voor deze experimenten wordt beschreven in §3.4. Bij dit laatste experiment is veel meer laser- vermogen nodig dan bij de bundelfractie metingen, daarom is hiervoor een nieuwe single mode, hoog vermogen diodelaser gebruikt.

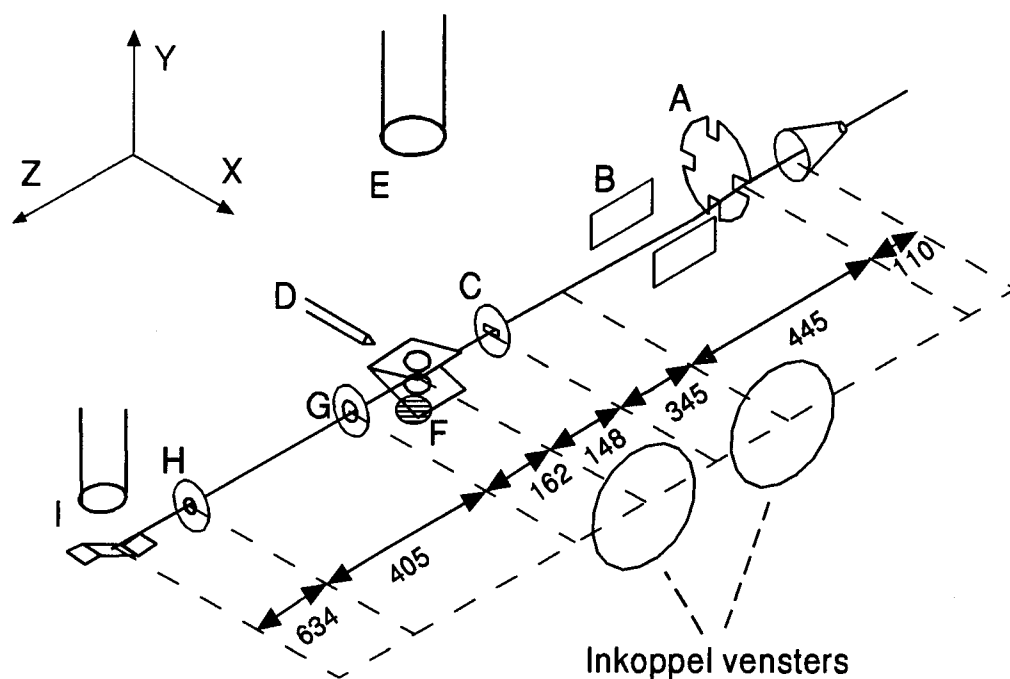
Tenslotte wordt nog ingegaan op de meetmethode (§3.5) en de verwerking (§3.6) van de data.

3.2 Gekruiste bundelopstelling “Kist II”

De opstelling “Kist II” heeft een bron die metastabiele edelgas atomen produceert door een ontlading te trekken door een expanderend edelgas. Er zijn twee type bronnen: de Thermische Metastabielen Bron (T.M.S.) [VER84] en de Hollow Cathode Arc (H.C.A.) [THE82]. Het belangrijkste verschil tussen deze twee is het verschil in snelheid van de uitkomende metastabielen. De metastabielen die uit de H.C.A.-bron komen hebben een veel hogere snelheid dan de metastabielen die uit de T.M.S. komen. De T.M.S. kan bovendien nog op twee manieren worden gebruikt. Ten eerste door er zuiver edelgas in te laten, ten tweede door er een mengsel met He in te laten. De He-atomen zorgen dan voor een hogere snelheid van de metastabielen. Met deze bronnen kunnen we dus botsingsexperimenten over een groot snelheidsbereik uitvoeren.

De deeltjes uit de bron stromen via een skimmer het hoofdvacuümvat binnen. Deze deeltjesbundel wordt gechopt tot een tijdgepulste bundel. Vervolgens worden de ionen uit de bundel afgebogen door middel van afbuigplaten. In het strooicentrum botsen de metastabielen met N_2 -moleculen uit de dwarsbundel. De vorm van het strooicentrum wordt nu bepaald door de afmetingen van de dwarsbundel en van de hoofdbundel ($6 \times 6 \times 7 \text{ cm}^3$). In figuur 3.1 is deze opstelling schematisch getekend.

De N_2 -moleculen die door de botsing geëxciteerd zijn, vervallen onder uitzending van fotonen (vgl. 3.2). De fotonen uit het strooicentrum worden door middel van lenzen afgebeeld op een photomultiplier buis [BOO88]. Deze zet de fotonen om in elektrische pulsjes die geteld worden door een computersysteem. De golflengte van de fotonen die door het stikstof worden uitgezonden is afhankelijk van het energieverval tussen de toestand waarin het N_2 -molecuul zat en de toestand waar het naar toe vervalt. Omdat de N_2 -moleculen op verschillende manieren kunnen vervallen en omdat het N_2 -molecuul in verschillende vibratie toestanden kan zitten, worden er fotonen met verschillende golflengten uitgezonden (vgl. 3.2). Alle $\text{N}_2(\text{B}/\text{C}, v')$ -moleculen die vervallen naar een $\text{N}_2(\text{A}/\text{B}, v'')$ -toestand en die wat vibratieniveau betreft $\Delta v (=v' - v'')$ lager liggen, zenden fotonen uit met ongeveer dezelfde golflengte. De golflengte van al deze fotonen vallen dan binnen de transmissiecurve van hetzelfde interferentiefilter. Er zijn nu verschillende interferentiefilters die allemaal



Figuur 3.1: Schematische tekening van de opstelling "Kist II" met: A) Chopper, B) Afbuigplaten, C) Strooiencentrum bepalend diafragma, D) Nozzle waaruit dwarsbundel expandeerd, E) Optisch systeem dat fotonen uit strooiencentrum afbeeldt op fotomultiplier F) Spiegeltje G) Eerste diafragma na het strooiencentrum (diameter 0.3 mm) H) Einddiafragma (diameter 0.1 mm, 0.25 mm of 0.5 mm) en I) Metastabielen-detector.

een ander Δv -verval kunnen meten. We noemen deze interferentie filters in het vervolg: Δv -filters. We kunnen nu met behulp van verschillende Δv -filters precies bepalen in welke vibratie-toestanden het N_2 -molecuul zit direct na de botsing.

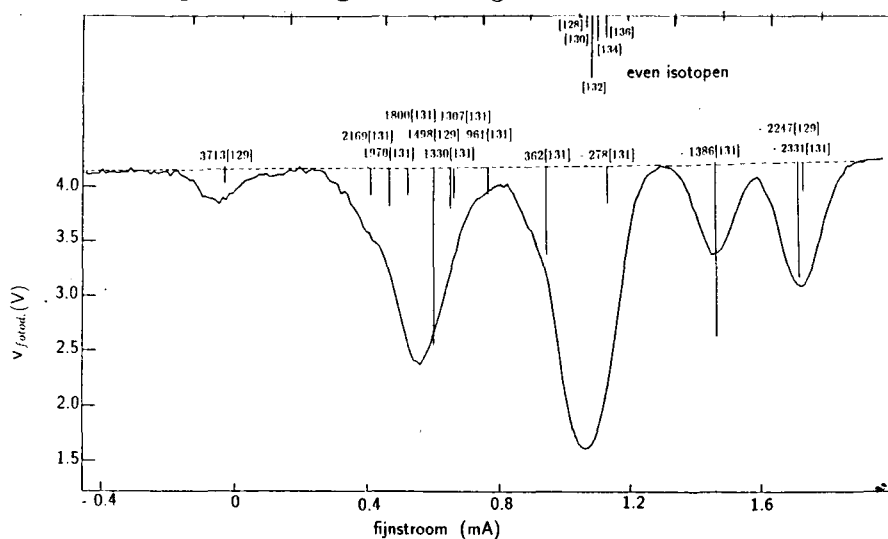
De metastabielen uit de hoofdbundel vallen tenslotte op een detector. Deze zet de metastabiele atomen weer om in elektrische pulsjes die gemeten kunnen worden door het computersysteem.

De elektrische pulsjes kunnen in het computersysteem worden geteld door een multiscaler. De multiscaler is een teller met een aantal instelbare tijdskanalen (10-150 μs). Elk kanaal telt gedurende deze kanaaltijd het aantal pulsjes van fotomultiplier of metastabielen-detector. Het eerste kanaal begint te tellen zodra de chopper geopend is. Nadat de kanaaltijd is verstreken, begint het tweede kanaal, te tellen. Door zo alle kanalen achter elkaar te laten tellen, krijgen we een tijdsopgeloste meting, de Time Of Flight meting (TOF-meting). Uit deze tijdsafhankelijke fotonen- en metastabielen-opbrengst is een energie-afhankelijke werkwedomsnede te bepalen.

3.3 Opstelling voor bundelfractiemeting

In de experimenten voor de bepaling van de bundelfractie (Hfd.4.) wordt gebruik gemaakt van de gekruiste bundelopstelling "Kist II". Voor de detectie van fotonen die van het botsingsproces af komen, is een Δv -filter gebruikt die fotonen met een golflengte van (669 ± 14) nm doorlaat. Dit is de golflengte die wordt uitgezonden door het geëxciteerde $N_2(B, v'=5)$ tijdens het verval naar de $N_2(A, v''=2)$ -toestand. De photomultiplier die we gebruikt hebben (Thorn-EMI nr.9658), heeft de hoogste gevoeligheid in dit golflengte gebied.

De laserbundel, wordt voor het strooicentrum in de opstelling "Kist II" gekoppeld (zie fig. 3.4). Hierdoor worden de $Xe^*(^3P_2)$ -metastabielen al voor de botsingen met de N_2 -moleculen, uit de bundel gepompt. De laser die gebruikt is, is een diodelaser van het type Hitachi HL-8311E. Dit is een AlGaAs-diodelaser die werkt in het golflengtegebied rond 830 nm met een vermogen van maximaal 4 mW en een lijnbreedte van 60 MHz. Voor de stabilisatie van de laserfrequentie op de overgangsfrequentie is een regeling ontwikkeld die werkt op basis van absorptie in een gasontladingscel.

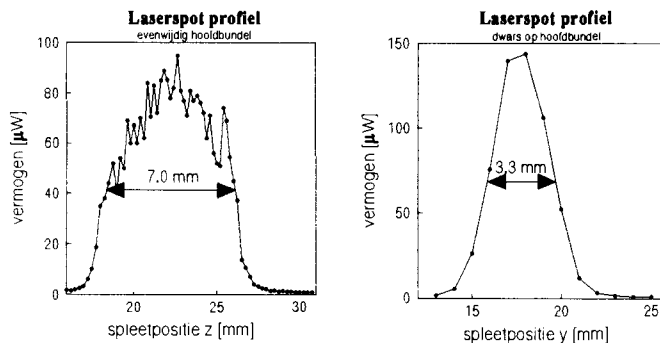


Figuur 3.2: Doppler absorptieprofiel van laserbundel door een Xe-ontlading

In deze gasontladingscel worden metastabiele atomen gemaakt. Een gedeelte van het laserlicht wordt dan door deze ontleding gestuurd en valt op een fotodetector. Als de laserbundel een frequentie heeft die precies overeenkomt met een overgangsfrequentie van zo'n metastabiel atoom, dan wordt dat laserlicht geabsorbeerd door de metastabiele atomen in de gasontladingscel. We zien dan dus minder licht op de fotodetector. De atomen in de gasontlading hebben een snelheid in willekeurige richting, daardoor "zien" de atomen met verschillende snelheidscomponenten in de richting van de laserbundel het laserlicht met een andere frequentie (Doppler-effekt). We krijgen daardoor niet een scherpe absorptie-piek te zien, maar een breder absorptie-minimum ten gevolge van de snelheidsspreiding. Het Doppler absorptieprofiel van deze laser door een Xe-gasontladingscel is gegeven in figuur 3.2. De verschillende minima ontstaan door de hyperfijn opsplitsing van verschillende

isotopen (zie §2.2). Door middel van een lock-in, aangesloten op de fotodiode, kan de laser worden geregeld zodanig dat z'n frequentie voor zo veel mogelijk absorptie zorgt [KNO92]. Er wordt gestabiliseerd op een doppler minimum.

De intensiteit van de laserbundel aan de randen is lager dan de intensiteit in het midden, het intensiteitsprofiel heeft een Gausische vorm. Het pompproces is vermogensafhankelijk (zie §2.3). Om toch alle metastabielen, over de hele bundeldiameter ($d = 3,3 \text{ mm}$) even goed te pompen, wordt de laserbundel vergroot door middel van een lens ($f = 9 \text{ mm}$) vlak achter de laserdiode zelf. De vergroting is zo gekozen dat het laservermogen aan de randen van de metastabielenbundel precies de helft is van het vermogen in het midden van de metastabielenbundel. Door een tweede lens ($f = 100 \text{ mm}$) wordt de laserbundel weer evenwijdig gemaakt, zodat de laser overal loodrecht op de metastabielenbundel staat en alle $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ -atomen in de metastabielenbundel Doppler vrij worden gepompt. Het laserspotprofiel is gemeten door de laserbundel te scannen met een spleet en een vermogensmeter, het resultaat staat gegeven in figuur 3.3. We zien dat het vermogen over de bundeldiameter afneemt van $150 \mu\text{W}$ in het midden tot $75 \mu\text{W}$ aan de rand.

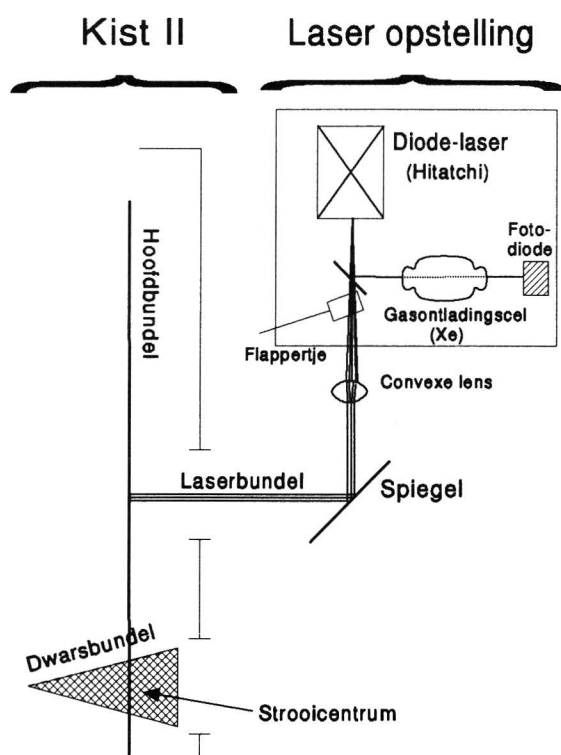


Figuur 3.3: Spotprofiel van de laser ter plaatse van de metastabielenbundel. Evenwijdig aan de hoofdbundel (z -richting) is de laserspot breed om een groot interactiegebied te krijgen. Dwars op de hoofdbundel (y -richting) is de laserspot zo breed dat het vermogen aan de randen van de metastabielenbundel precies de helft is van het vermogen midden in de metastabielenbundel.

De opbouw van de laser staat nu getekend in figuur 3.4.

3.4 Opstelling voor botsingsexperimenten met Kr^{**}

In de botsingsexperimenten met kortlevend Kr^{**} wordt ook gebruik gemaakt van de gekruiste bundelopstelling "Kist II". Voor de detectie van fotonen die van het botsingsproces af komen, zijn verschillende interferentiefilters gebruikt met een transmissie bij golflengtes tussen 290 nm en 360 nm. Dit zijn de golflengtes die worden uitgezonden door het geëxciteerde $\text{N}_2(\text{C}, v'=0.4)$ tijdens het verval naar de $\text{N}_2(\text{B}, v'')$ -toestand. De photomultiplier die we gebruiken hebben (Thorn-EMI nr.9635 QB), heeft de hoogste gevoeligheid in dit golflengte gebied. Bovendien is dit type photomultiplier relatief ongevoelig voor het

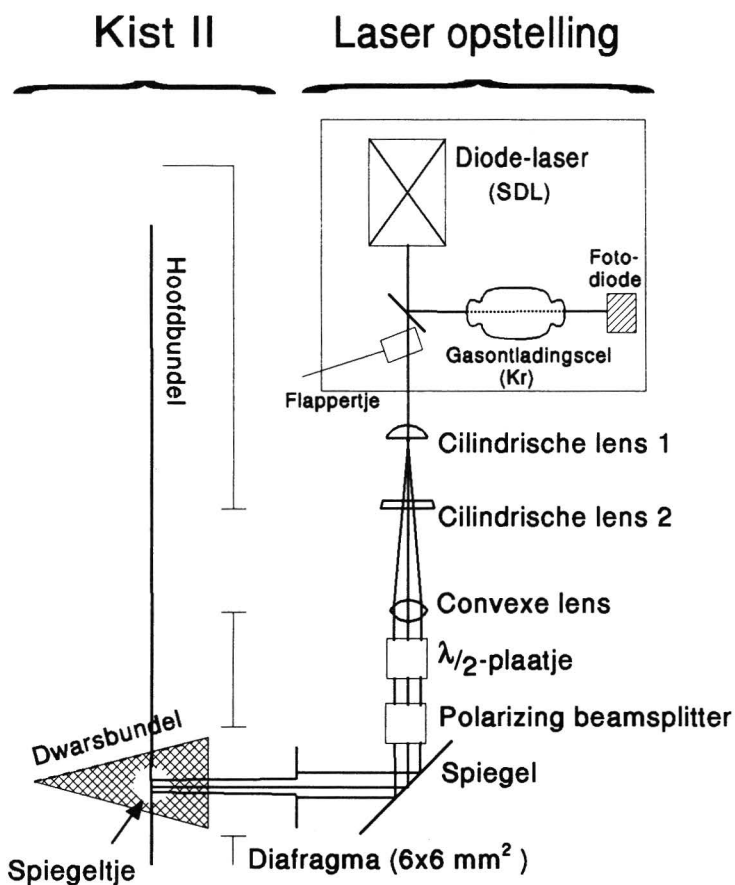


Figuur 3.4: Schematische weergave van de opstelling zoals die gebruikt is voor de bepaling van de bundelfractie. De laserbundel wordt ingekoppeld voor het strooicentrum.

laserlicht van 811 nm dat rechtstreeks vanuit het strooicentrum op het interferentiefilter en de photomultiplier valt.

De laserbundel zoals die in dit experiment wordt gebruikt, wordt onder in het strooicentrum op een klein spiegelkje gericht (zie fig. 3.1 en 3.6). Dit spiegelkje richt de laserbundel omhoog loodrecht door het strooicentrum van de "Kist II". De laser die gebruikt is, is een diodelaser van het type SDL-5410-C. Dit is een hoogvermogen, single mode, AlGaAs-diodelaser die werkt in het golflengtegebied rond 810 nm met een vermogen van maximaal 110 mW en een lijnbreedte tussen 10 en 15 MHz. Voor de stabilisatie van de laserfrequentie op de overgangsfrequentie kan nu ook bovenstaande regeling (§3.3) worden gebruikt maar dan met een Kr-gasontladingscel. Dankzij de smalle lijnbreedte, kan ook worden gestabiliseerd met behulp van verzadigde absorptie [STE85]. Dit is identiek aan dopplerabsorptie maar de laserbundel wordt nadat hij uit de gasontlading komt niet gedetecteerd door een fotodiode maar hij wordt teruggestuurd door de gasontlading en dan pas gedetecteerd. Als de heen en teruggaande bundel precies overlappen, is er in het minimum van het "gewone" dopplerprofiel een piekje te zien. Dit piekje ontstaat doordat metastabiele atomen, die alleen een snelheid precies loodrecht op de laserbundel hebben, voor beide bundels tegelijk resonant zijn. Alle metastabielen met een snelheidscomponent in de richting van de laserbundel zijn nooit voor beide laserbundels resonant. Als de metastabielen wel voor beide laserbundels resonant zijn, dan worden ze door de heengaannde bundel gepompt, waardoor

er door de teruggaande bundel minder overblijven die nog kunnen worden gepompt. Er ontstaat een maximum in het minimum van het "gewone"-dopplerprofiel. Op dit smalle piekje dat de breedte heeft van de lijnbreedte van de overgang, kan nu worden gestabiliseerd. Dit heeft het voordeel dat de laserfrequentie nu niet zo veel gemoduleerd hoeft te worden rond de overgangsfrequentie, de laserfrequentie is nu gemiddeld vaker resonant met de overgangsfrequentie. In ons geval is verzadigde absorptie gelukt, maar het piekje was zo klein (minder dan 1% van de Doppler-absorptie) dat storingen ervoor zorgden dat geen regeling mogelijk was voor experimenten die langer dan ≈ 1 uur duren. Deze storingen werden veroorzaakt door terugkoppeling van het licht in de fotodetector en in de laserdiode zelf. Terugkoppeling van het laserlicht in de fotodetector zelf, veroorzaakt veel storingen op het regelsignaal. Terugkoppeling van het laserlicht in de laserdiode veroorzaakt veranderingen van de laserfrequentie, dus verandering van absorptie.



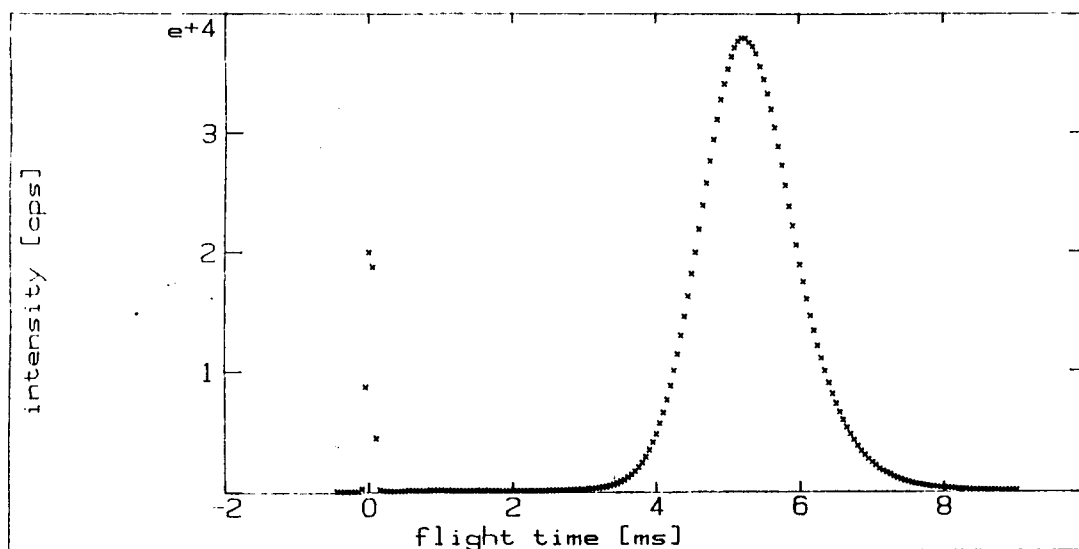
Figuur 3.5: Schematische weergave van de opstelling zoals die gebruikt is voor de botsings-experimenten met Kr^{**} . De laserbundel wordt ingekoppeld onder het strooicentrum en daar door een spiegeltje loodrecht het strooicentrum in gericht.

Omdat de afmetingen van de laserspot uit de 100 mW-laser niet overeen komen met de afmetingen van het strooicentrum, zijn lenzen gebruikt om dit te corrigeren. De opbouw van de laser staat nu getekend in figuur 3.5. Om ook polarisatie afhankelijke metingen te

doen, zijn na de lenzen een $\frac{\lambda}{2}$ -plaatje en een polarising beamsplitter in de bundel gebouwd. Door het $\frac{\lambda}{2}$ -plaatje te draaien, kunnen we de polarisatierichting van de laserbundel draaien. Met de polarising-beamsplitter wordt zuiver lineair gepolariseerd licht gemaakt. Door de laserbundel loodrecht op het botsingsvlak in het strooicentrum te richten, kunnen we de laserpolarisatie in elke gewenste richting in dit botsingsvlak instellen. Het \vec{E} -veld van het laserlicht kan nu precies evenwijdig aan of loodrecht op de relatieve botsingsnelheid \vec{g} worden gedraaid. We kunnen de Kr^{**} -atomen in elke gewenste richting in dit botsingsvlak oriënteren (zie §2.4)

3.5 Meetmethode

Zoals in paragraaf 3.2 is verteld, worden de metastabielen en de fotonen geteld door een multiscaler. Als we het aantal counts per kanaal, van alle kanalen, naast elkaar zetten, kunnen we er een TOF-spectrum van metastabielen en fotonen van maken. In figuur 3.6 is een voorbeeld getekend van een metastabielen-spectrum.



Figuur 3.6: *TOF-spectrum van de metastabielen.*

De meetprocedure die we daarbij gebruiken, noemen we de DOTOF-cyclus. In deze DOTOF-cycli worden de TOF-spectra van de metastabielen en fotonen een aantal keer gemeten naar gelang de telsnelheden van elk spectrum. Een DOTOF-cyclus voor één filtermeting ziet er als volgt uit:

1. Frequentiemeting van de chopper.
2. Meting van TOF-spectrum van metastabielen zonder dwarsbundel, zonder laser (metalu).

3. Meting van TOF-spectrum van fotonen met dwarsbundel, zonder laser (fot-lu).
4. Meting van TOF-spectrum van metastabielen zonder dwarsbundel, zonder laser (meta-lu).
5. Meting van TOF-spectrum van metastabielen zonder dwarsbundel, met laser (meta-la).
6. Meting van TOF-spectrum van fotonen met dwarsbundel, met laser (fot-la).
7. Meting van TOF-spectrum van metastabielen zonder dwarsbundel, met laser (meta-la).

Deze DOTOF-cyclus kan worden uitgebreid voor meerdere Δv -filters. Wanneer voor alle gekozen filters deze serie is gemeten, wordt hetzelfde opnieuw gedaan maar dan van achter naar voren (van 7...1). Op deze manier wordt eventuele drift van de bron geëlimineerd. Het aantal pulsen dat in de praktijk gemeten wordt in het maximum van het TOF-spectrum tijdens de twee experimenten (Hfd.4 en Hfd.6), met de desbetreffende filters staat gegeven in tabel 3.1. Bij deze metingen wordt binnen de experimentele randvoorwaarden gestreefd naar een zo klein mogelijke fout. In de praktijk hield dit het volgende in: de bundelfractie-metingen duurde ongeveer 8 uur met 50 DOTOF-cycli en daarin 1000 TOF-metingen en 5000 TOF-metingen voor respectievelijk de metastabielen en fotonen. Voor de botsings-experimenten met kortlevend Kr^{**} hebben we 10 DOTOF-cycli gedaan en daarin 2000 TOF-metingen van metastabielen en 5000-15000 TOF-metingen van fotonen (afhankelijk van fotonopbrengst).

	$\text{Xe}^*(^3\text{P}_2) + \text{N}_2$		$\text{Kr}^{**}(\alpha_9) + \text{N}_2$				
	isotoop [132]	isotoop [131]	$\Delta v=-1$	$\Delta v=0$	$\Delta v=1$	$\Delta v=2$	$\Delta v=3$
meta-lu	38	38	3.8	3.8	3.8	3.8	3.8
meta-la	26	35	1.8	1.8	1.8	1.8	1.8
fot-lu	1.8	1.8	0	0	0	0	0
fot-la	1.2	1.7	1.9	1.1	0.8	0	0

Tabel 3.1: Gemeten telsnelheden [$\cdot 10^3$ counts/s] in het maximum van het TOF-spectrum, zonder achtergrond, voor de verschillende experimenten.

3.6 Verwerking van resultaten

De verschillende TOF-spectra (meta-lu, meta-la, fot-lu, fot-la) moeten nog worden gecorrigeerd en bewerkt [VLI87]:

- De dode tijd van de detectoren moet in rekening worden gebracht.
- Het TOF-spectrum van de metastabielen wordt vertaald in een snelheidsspectrum.

- De eindige spleetbreedte van de chopper veroorzaakt een eindige snelheidsresolutie van het snelheidsspectrum van de metastabielen.
- Om het TOF-spectrum van de fotonen (die gemeten worden ter hoogte van het strooi-centrum) te vergelijken met het TOF-spectrum van de metastabielen (die gemeten worden ≈ 1 meter na het strooi-centrum), wordt het snelheidsspectrum teruggetransformeerd in een TOF-spectrum van metastabielen op de plaats van het strooi-centrum.
- De achtergrond van de fotonen- en metastabielen signalen moet worden afgetrokken en de fout van de gemiddelde TOF-spectra moet worden uitgerekend.

Dit wordt gedaan met behulp van programmatuur die aanwezig is in de software-bibliotheek van de groep AOW. We krijgen dan het aantal getelde metastabielen dat in het strooi-centrum heeft gebotst en het aantal fotonen dat van het botsingsproces af komt, als functie van tijd, respectievelijk $\dot{S}_m(t)$ en $\dot{S}_f(t)$. De werkelijke metastabielenstroom ($\dot{N}_m(t)$), op een bepaald tijdstip t , is dan gelijk aan:

$$\dot{N}_m(t) = \frac{\dot{S}_m(t)\Omega_{sc}}{\eta_m\Omega_m}. \quad (3.3)$$

Hierin is gecorrigeerd voor de efficiency van de metastabielen detector η_m , deze is voor Xe^* -metastabielen afhankelijk van de soort metastabielen ($^3\text{P}_2$ of $^3\text{P}_0$). Ook is er gecorrigeerd voor het feit dat de metastabielen detector maar een ruimtehoek Ω_m van de hoofdbundel ziet, terwijl het strooi-centrum een ruimtehoek Ω_{sc} van de hoofdbundel ziet.

Ook de werkelijke fotonenstroom ($\dot{N}_{fot}(t)$) kan worden geschreven als:

$$\dot{N}_{fot}(t) = \frac{\dot{S}_{fot}(t)}{\eta_{opt}}. \quad (3.4)$$

Hierin is $\eta_{opt} = \eta_{qe} \cdot T_{lenzen} \cdot \frac{\Omega_{opt}}{4\pi}$ een combinatie van de quantumefficiency van de photomultiplier η_{qe} , de transmissie van de lenzen T_{lenzen} en de ruimtehoek van het optisch systeem Ω_{opt} . In tabel 3.2 staan de waarden van de verschillende factoren gegeven.

Het aantal metastabielen dat is geteld in het metastabielen TOF-spectrum, is geteld met de dwarsbundel uit. Als de dwarsbundel aan staat, wordt het aantal metastabielen dat meedoet aan het proces verminderd ten gevolge van elastische- en inelastische- botsingen met N_2 -moleculen uit de dwarsbundel. De werkzamedoorsnede van elastische botsingen wordt gegeven door Q_{el} . Voor Q_{el} wordt een waarde van 200\AA^2 genomen [VRE90]. Dit is minder dan de totale werkzamedoorsnede voor elastische botsingen $Q_{el}^{tot} = 500\text{\AA}^2$ [KER88], omdat kleine hoek verstrooiing niet is meegenomen. Atomen die onder een kleine hoek worden verstrooid kunnen nog steeds aan het botsingsproces meedoen. De werkzamedoorsnede van excitatie-overdracht, gemeten met een bepaald Δv -filter, kan worden geschreven als [BOO88]:

$$Q^{\Delta v}(E(t)) = \frac{\dot{S}_f(t)}{\dot{S}_m(t)} \frac{\eta_m\Omega_m}{\eta_{opt}\Omega_{sc}} \frac{Q_{el}}{1 - \exp\{-\langle nl \rangle Q_{el} g(t)/v(t)\}}. \quad (3.5)$$

	Transmissie/ efficiency	referentie
T_{lenzen}	0.41	[BOO88]
$\eta_{qe}(280-360 \text{ nm})$	0.27-0.29	[EMI84]
$\eta_{qe}(669 \text{ nm})$	0.08	[EMI84]
$\Omega_{opt}/4\pi$	0.033	[BOO88]
$\frac{\eta_m(Xe^*(^3P_0))}{\eta_m(Xe^*(^3P_2))}$	2.799	[BOR71]
$\eta_m(Kr^*)$	0.064	[THE81]
$\Omega_m(0.10 \text{ mm})$	$2.49 \cdot 10^{-9} \text{ sr}$	[NIJ92]
$\Omega_m(0.25 \text{ mm})$	$15.6 \cdot 10^{-9} \text{ sr}$	[NIJ92]
$\Omega_m(0.50 \text{ mm})$	$62.3 \cdot 10^{-9} \text{ sr}$	[NIJ92]
Ω_{sc}	$18.7 \cdot 10^{-6} \text{ sr}$	[NIJ92]

Tabel 3.2: *De efficiency van de detectiesystemen.*

Met hierin g de relatieve botsingssnelheid, v de snelheid van de metastabielen en $\langle nl \rangle$ het produkt van de dichtheid van de dwarsbundeldeeltjes en de interactielengte. Dit produkt kan worden uitgerekend uit de dwarsbundelparameters [BEI81]. De verhouding g/v is het gevolg van het feit dat we uitgaan van een coördinatenstelsel dat meebeweegt met de dwarsbundeldeeltjes.

Uit de $Q^{\Delta v}(E)$ -metingen met verschillende Δv -filters wordt dan weer de $Q^{v'}(E)$ voor verschillende vibratie toestanden afgeleid. Het aantal fotonen dat wordt geteld met een bepaald Δv -filter, is de som van fotonen van verschillende golflengten van verschillende vervalsprocessen (vgl. 3.2):

$$Q^{\Delta v}(E) = \sum_{v'=0}^n M_{v'',v'} T_{v'',v'} Q^{v'}(E). \quad (3.6)$$

Hierin stelt $M_{v'',v'}$ de vertakkingsverhouding voor, deze geeft aan welk gedeelte van het N_2 -molecuul in de (C, v') -toestand vervalst naar de (B, v'') -toestand.

$$M_{v'',v'} = A_{v'',v'}/A_{v'} \quad (3.7)$$

$$A_{v'} = \sum_{v''=0}^{\infty} A_{v'',v'}$$

De waarden voor $M_{v'',v'}$ zijn berekend met behulp van de gegevens van $A_{v'',v'}$ en $A_{v'}$ uit [LOF77]. Elke verschillende vervalssmogelijkheid zendt een foton uit met een andere golflengte $\lambda_{v',v''}$, de transmissie van het filter bij deze golflengte wordt gegeven door $T_{v'',v'}$. In tabel 3.3 staat de golflengte $\lambda_{v',v''}$ en alle factoren $M_{v'',v'}$ en $T_{v'',v'}$ gegeven. Uit het stelsel vergelijkingen (3.6) kunnen $Q^{v'=0..4}(E)$ worden opgelost uit de verschillende filtermetingen $Q^{\Delta v=-1..3}(E)$. Ook dit gebeurt weer met behulp van Turbo Pascal[©] programma's uit de AOW softwarebibliotheek.

v''		$v'=0$	$v'=1$	$v'=2$	$v'=3$	$v'=4$
0	$\lambda_{v',v''}$	337 nm	316 nm	298 nm	282 nm	269 nm
	$M_{v',v''}$	0.509	0.501	0.176	0.024	0
	$T_{v',v''}$	0.283	0.294	0.17	0.13	-
1	$\lambda_{v',v''}$	358 nm	334 nm	314 nm	296 nm	281 nm
	$M_{v',v''}$	0.323	0.019	0.418	0.326	0.059
	$T_{v',v''}$	0.398	0.283	0.294	0.17	0.13
2	$\lambda_{v',v''}$	380 nm	354 nm	331 nm	312 nm	295 nm
	$M_{v',v''}$	0.122	0.199	0.037	0.240	0.415
	$T_{v',v''}$	-	0.398	0.283	0.294	0.17
3	$\lambda_{v',v''}$	406 nm	376 nm	350 nm	329 nm	310 nm
	$M_{v',v''}$	0.035	0.168	0.060	0.125	0.122
	$T_{v',v''}$	-	-	0.398	0.283	0.294
4	$\lambda_{v',v''}$	434 nm	400 nm	371 nm	347 nm	327 nm
	$M_{v',v''}$	0.008	0.077	0.139	0.003	0.171
	$T_{v',v''}$	-	-	-	0.398	0.283
5	$\lambda_{v',v''}$	467 nm	427 nm	394 nm	367 nm	345 nm
	$M_{v',v''}$	0.002	0.026	0.101	0.082	0.007
	$T_{v',v''}$	-	-	-	-	0.398

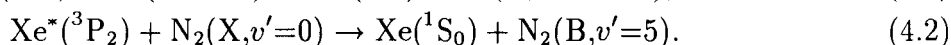
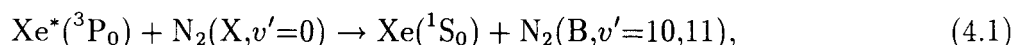
Tabel 3.3: De golflengte $\lambda_{v',v''}$, vertakkingsverhoudingen $M_{v',v''}$ en de filtertransmissie $T_{v',v''}$ voor het verval van $N_2(C,v') \rightarrow N_2(B,v'')$. De transmissies $T_{v',v''}$ zijn alleen gegeven voor de $\Delta v = v' - v'' = -1..3$ overgangen, omdat we alleen deze filters hebben.

Hoofdstuk 4

Bundelfractie

4.1 Inleiding

In de metastabielenbundel bevinden zich twee verschillende metastabiele toestanden zie §2.2. Het excitatie-overdrachtsproces tijdens botsingen tussen Xe^* en $\text{N}_2(\text{X}, v'=0)$ blijkt afhankelijk te zijn van deze metastabiele toestanden [NIJ92]. De toestandselectieve excitatie-overdrachtsprocessen zijn:

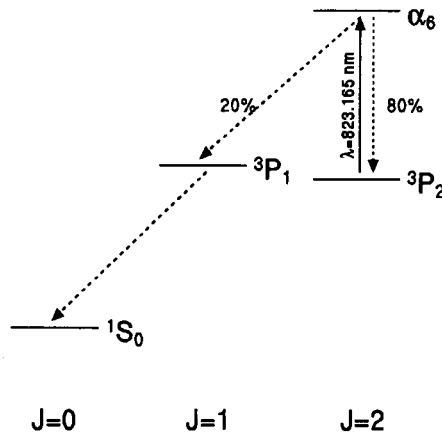


Om de werkzamedoorsnede van de twee bovenstaande botsingsprocessen te bepalen, moet de verhouding van het aantal $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ en $\text{Xe}^*(^3\text{P}_0)$ in de metastabielenbundel bekend zijn. Bij een statistische bezetting van beide niveaus, is deze verhouding gelijk aan de verhouding van het aantal ontaarde niveaus (m_j -niveaus), de verhouding $^3\text{P}_2 : ^3\text{P}_0$ is dan 5 : 1. Naarmate het edelgas atoom zwaarder wordt, komen de twee metastabiele niveaus verder uit elkaar te liggen. Bij het Xe-atoom, liggen deze twee niveaus zo ver uit elkaar dat het $^3\text{P}_0$ -niveau dicht tegen de kortlevende niveaus aan ligt ($\Delta E \approx 15$ meV). Een metastabiel in de $^3\text{P}_0$ -toestand, kan dan door inelastische botsingen gemakkelijk naar een kortlevend niveau worden geëxciteerd. Een kortlevend niveau kan wel (indirekt) naar de grondtoestand vervallen, dus verdwijnen er metastabielen in de $^3\text{P}_0$ -toestand uit de metastabielenbundel. De bundelfractie r kan daardoor sterk afwijken van het statistische geval ($r = 5$). In de literatuur wordt deze waarde geschat op 11.9 [NIJ92], 15 [AAR91], of zelfs ≥ 30 [BÖH89]. In dit onderzoek wordt de bundelfractie van een metastabielenbundel experimenteel bepaald, door een gedeelte van de $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ -metastabielen te pompen uit de bundel met behulp van een diodelaser.

In de volgende paragraaf (§4.2) wordt de theorie van dit experiment uitgelegd. Daarna zullen de resultaten worden besproken in §4.3.

4.2 Theorie

Het feit dat er twee toestandselectieve botsingsprocessen bestaan (vgl. 4.1 en 4.2) voor excitatie-overdracht tussen Xe^* en $\text{N}_2(\text{X}, v'=0)$, kunnen we gebruiken voor de bepaling van de bundelfractie (r) van de Xe^* -metastabielenbundel. In dit experiment wordt gebruik gemaakt van een diodelaser (zie §3.3) die een gedeelte van het metastabiele $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ uit de metastabielenbundel pompt. De diodelaser wordt gestabiliseerd op de overgang tussen het metastabiele $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ -niveau en het kortlevende $\text{Xe}^{**}(\alpha_6)$ -niveau (zie fig. 4.1), de bijbehorende golflengte van deze overgang is 823.165 nm. Dit $\text{Xe}^{**}(\alpha_6)$ -niveau vervalt voor 20% via het $\text{Xe}^*(^3\text{P}_1)$ -niveau naar de grondtoestand en voor 80% vervalt het terug naar het $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ -niveau. Op deze manier kunnen we dus een gedeelte van de $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ uit de bundel pompen. We kunnen niet alle $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ uit de metastabielenbundel weg pompen, omdat de lijnbreedte van de laser te groot is. Daardoor is het effectieve pompvermogen minder dan het verzadigingsvermogen (zie §2.3).



Figuur 4.1: Pompproces van het $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ -niveau naar het $\text{Xe}^{**}(\alpha_6)$ -niveau (—). Vervalproces (---) van het $\text{Xe}^{**}(\alpha_6)$ -niveau terug naar het $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ -niveau en via het $\text{Xe}^*(^3\text{P}_1)$ -niveau naar de grondtoestand.

Door een geschikt Δv -filter voor de photomultiplier te zetten, detecteren we alleen fotonen afkomstig van het verval van de $\text{N}_2(\text{B}, v'=5)$ -toestand. De geëxciteerde $\text{N}_2(\text{B}, v'=5)$ -moleculen kunnen alleen ontstaan door botsingen met $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ (zie vgl. 4.2). De fotonenstroom die we meten met de photomultiplier (\dot{S}_f) is minder dan de werkelijke fotonenstroom \dot{N}_f uit het strooicentrum vanwege de detectieefficiency η_{opt} (zie §3.6):

$$\dot{S}_f = \eta_{opt} \dot{N}_f. \quad (4.3)$$

Met laser aan zitten er minder $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ -metastabielen in de bundel, dan met laser uit. De fotonenstroom \dot{N}_f is dan evenredig met de stroom metastabielen in de $^3\text{P}_2$ -toestand ($\dot{N}_m(^3\text{P}_2)$). We definiëren nu de fotonen pompfractie als:

$$f = \frac{\dot{S}_f(\text{laser uit}) - \dot{S}_f(\text{laser aan})}{\dot{S}_f(\text{laser uit})} = \frac{\Delta \dot{N}_f}{\dot{N}_f} = \frac{\Delta \dot{N}_m(^3\text{P}_2)}{\dot{N}_m(^3\text{P}_2)}. \quad (4.4)$$

De totale metastabielenstroom in de bundel wordt genoteerd als (\dot{N}_m) , deze bestaat uit een gedeelte in de 3P_0 -toestand ($\dot{N}_m(^3P_0)$) en een gedeelte in de 3P_2 -toestand ($\dot{N}_m(^3P_2)$). De metastabielenstroom met laser aan en laser uit, die wordt gemeten met de detector (\dot{S}_m) kan dan geschreven worden als:

$$\begin{aligned}\dot{S}_m(\text{laser uit}) &= \eta_{m,0}\dot{N}_m(^3P_0) + \eta_{m,2}\dot{N}_m(^3P_2), \\ \dot{S}_m(\text{laser aan}) &= \eta_{m,0}\dot{N}_m(^3P_0) + \eta_{m,2}(1-f)\dot{N}_m(^3P_2).\end{aligned}\quad (4.5)$$

De detectie-efficiency van de metastabielen-detector is voor de Xe*-metastabielen afhankelijk van het soort metastabielen, daarom zijn er verschillende efficiencies ingevoerd: $\eta_{m,0}$ voor de 3P_0 -metastabielen en $\eta_{m,2}$ voor de 3P_2 -metastabielen. Met laser aan zitten er minder metastabielen in de bundel, dan met laser uit. We definiëren nu de metastabielen pompfractie als:

$$\begin{aligned}f^* &= \frac{\dot{S}_m(\text{laser uit}) - \dot{S}_m(\text{laser aan})}{\dot{S}_m(\text{laser uit})} = \\ &= \frac{f \dot{N}_m(^3P_2)}{\frac{\eta_{m,0}}{\eta_{m,2}} \dot{N}_m(^3P_0) + \dot{N}_m(^3P_2)}.\end{aligned}\quad (4.6)$$

We laten de ruimtehoeken (zie vgl. 3.3) weg, omdat we toch praten over relatieve verschillen. De definitie van de pompfractie wordt gegeven door:

$$r = \frac{\dot{N}_m(^3P_2)}{\dot{N}_m(^3P_0)}.\quad (4.7)$$

Als we (4.7) invullen in (4.6), dan krijgen we:

$$f^* = \frac{f}{\left(\frac{\eta_{m,0}}{\eta_{m,2}}\right) \frac{1}{r} + 1}.\quad (4.8)$$

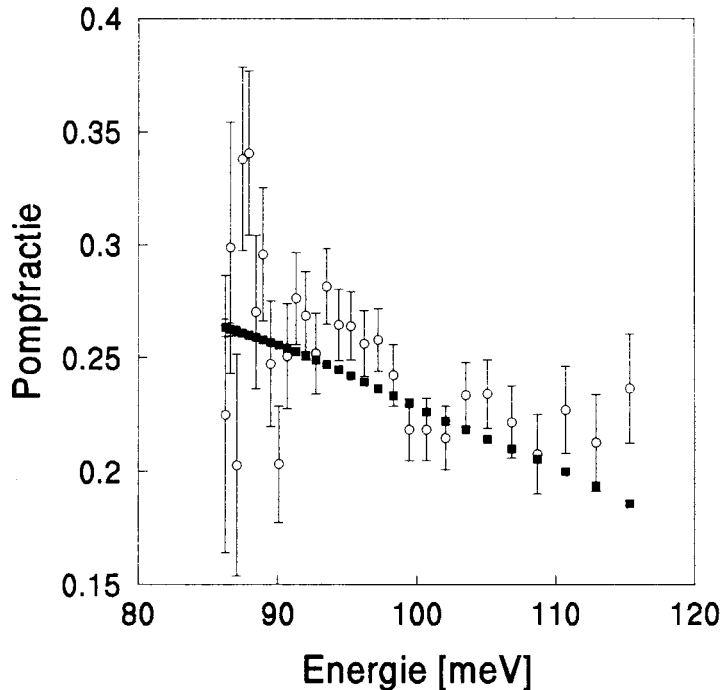
We kunnen hieruit de pompfractie r oplossen:

$$r = \frac{\eta_{m,0}}{\eta_{m,2}} \left\{ \frac{f^*}{f - f^*} \right\}.\quad (4.9)$$

De verhouding van de detectie-efficiencies is gelijk aan 2.799 (zie tabel 3.2).

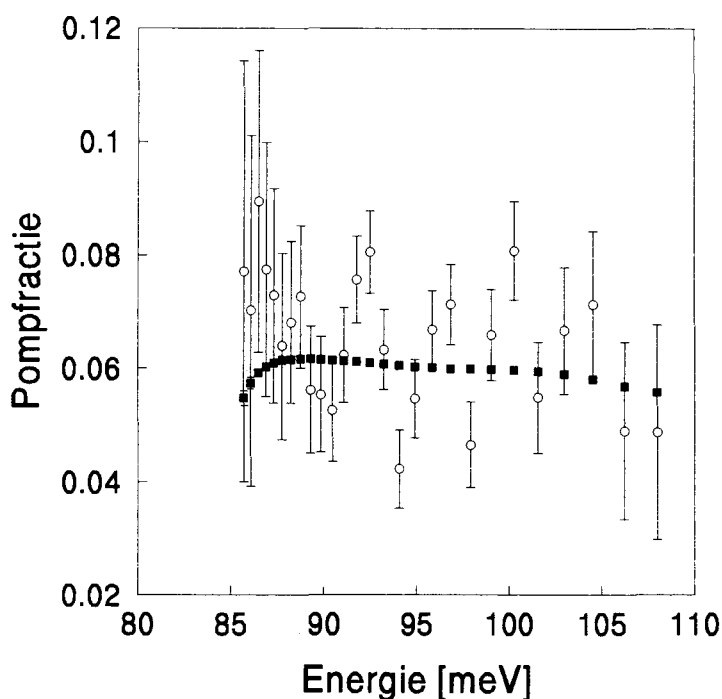
4.3 Resultaten

De bundelfractiemetingen zijn gedaan aan een Xe*-bundel die is gemaakt door de Thermische Metastabielen Bron. Bij de eerste metingen is de diodelaser gestabiliseerd op het diepste doppler-minimum (zie fig. 3.2.), waarin de overgangen van verschillende even en oneven isotopen zitten. In figuur 4.2 is de pompfractie van metastabielen (f^*) en van de fotonen (f) uitgezet tegen de botsingsenergie (E).



Figuur 4.2: Pompfracties van metastabielen \square (f^*) en fotonen \circ (f) als functie van de botsingsenergie. De diodelaser is tijdens deze meting gestabiliseerd op het “diepste” doppler absorptie minimum bij 1.1 mA (zie fig. 3.2).

De fluctuaties en de grote standaardafwijkingen in het fotonen signaal zijn het gevolg van het lage aantal fotonen dat geteld wordt. De energie-afhankelijkheid van de pompfracties kan worden verklaard als we kijken naar figuur 3.2 van het doppler absorptie profiel. Zoals vermeld hebben we gestabiliseerd op het “diepste” doppler absorptie minimum bij 1.1 mA. We zien dat er in dit minimum overgangen van verschillende isotopen liggen, isotopen met even massagetal en isotopen met oneven massagetal. Het totale absorptie minimum is dus een sommatie van alle absorptie minima van deze overgangen afzonderlijk, dit resulteert in één breed diep absorptie minimum. Als we de regeling van de laser nu op dit minimum laten stabiliseren, dan is de laser voornamelijk resonant met de overgang van het isotoop [132]. Omdat de lijnbreedte van de laser ongeveer 60 MHz is, zullen ook naburige isotopen worden gepompt. De pompfractie kan hoger zijn dan het relatieve voorkomen van dat [132]-isotoop (27%), dit is tijdens de experimenten ook inderdaad gezien. De naburige isotopen worden slechts heel zwak gepompt, het effectieve vermogen van de laser bij de overgangsfrequentie van zo’n naburig isotoop is veel lager dan voor het [132]-isotoop. Uit §2.3 volgt dat er bij lage vermogens maar een paar atomen naar de boventoestand worden gepompt. Atomen die het laserlicht nu langer zien, de langzame atomen, hebben een grotere kans om een foton te absorberen. Vandaar dat de pompfractie van langzame atomen groter is. Stel dat de bundelfractie onafhankelijk is van de energie en van de isotopen, dan kunnen we de bundelfractie op elk energiepunt afzonderlijk uitrekenen en dan middelen. Er volgt dan uit deze berekening een gemiddelde bundelfractie van (19 ± 87) .

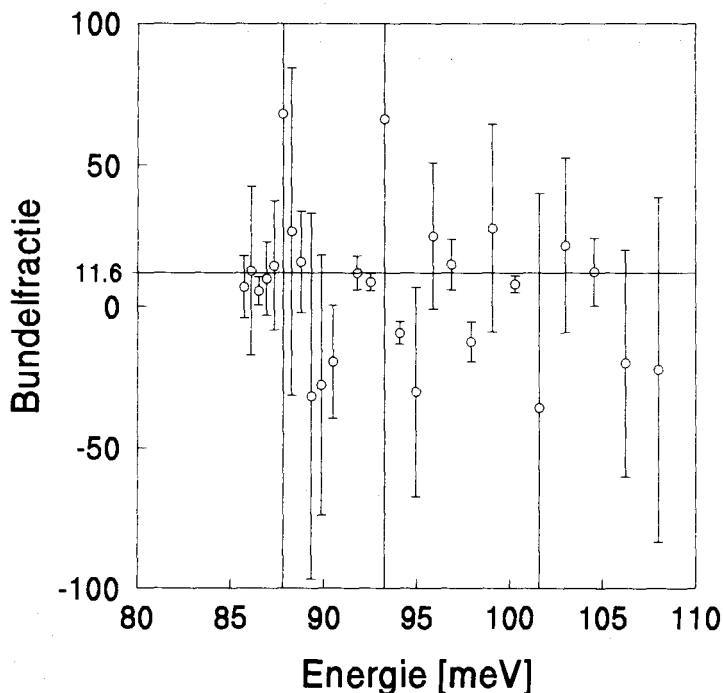


Figuur 4.3: *Pompfracties van metastabielen \square (f^*) en fotonen \circ (f) als functie van botsingsenergie. De diodelaser is tijdens deze meting gestabiliseerd op het doppler absorptie minimum van het isotoop [131] bij 1.5 mA (zie fig. 3.2).*

In de volgende metingen hebben we de diodelaser gestabiliseerd op de overgang van isotoop-[131] bij 1.5 mA (zie fig. 3.2). In dit Dopplerminimum zit alleen de overgang van het [131]-isotoop, als we hierop stabiliseren zal alleen dit isotoop worden gepompt. Het resultaat van de metingen staat gegeven in figuur 4.3. We zien uit deze meting dat er nu veel minder metastabielen worden gepompt dan in de vorige meting (respectievelijk $\approx 6\%$ en $\approx 25\%$), terwijl het natuurlijk voorkomen van het isotoop-[131] ongeveer gelijk is aan het natuurlijk voorkomen van het isotoop-[132] (respectievelijk 21% en 27%). Dit komt omdat we nu echt maar een isotoop weg pompen. In de vorige meting worden dus veel meer andere isotopen gepompt dan alleen isotoop-[132]. De lage pompfractie (6%) betekent dat lang niet alle $Xe^*(^3P_2)$ van het [131]-isotoop worden gepompt. Er wordt dus zeer inefficiënt gepompt, waarschijnlijk omdat de lijnbreedte van de diodelaser (60 MHz) veel groter is dan de natuurlijke lijnbreedte van de overgang.

We zien in figuur 4.3 ook dat het pompproces van de metastabielen nog niet helemaal energie-onafhankelijk is. In het algemeen wordt de pompfractie lager naarmate de energie toe neemt, dit komt vanwege het feit dat de langzame atomen het laserveld langer zien, dus relatief meer gepompt worden (zie §2.3). Bij lage energieën is er echter een ander energie-afhankelijk effect te zien, de pompfractie neemt sterk toe naarmate de energie toeneemt. Dit is ook te zien in figuur 4.2, als we de pompfractie vergelijken met een rechte lijn. Het kan betekenen dat de bundelfractie energie-afhankelijk is, maar de fout in het fotonensignaal is te groot om daaruit iets te concluderen. De toenemende pompfractie van

metastabielen kan niet worden verklaard door energie-afhankelijke pompeffekten, alle mogelijke pompeffekten zijn juist slechter naarmate de energie toeneemt. Bijvoorbeeld als de laserbundel niet helemaal loodrecht op de hoofdbundel staat, dan hebben we Dopplerverschuiving. Metastabielen met hoge snelheid hebben een grotere Dopplerverschuiving dus die worden slechter gepompt. Ook de interactietijd van langzame metastabielen is groter, dus worden ze beter gepompt. Tenslotte is de uitwijking die langzame atomen krijgen ten gevolge van dan de stralingsdruk groter dan van snelle atomen die ook een foton hebben geabsorbeerd. Daardoor vallen er relatief minder langzame metastabielen op de detector.



Figuur 4.4: De bundelfractie berekend uit de fotonen- en metastabielen- pompfracties van fig. 4.3 volgens vergelijking 4.9.

Als we de bundelfractie op elk energiepunt uitrekenen, zien we geen energie-afhankelijk effect in de bundelfractie (zie fig. 4.4). De bundelfracties van alle afzonderlijke energiepunten kunnen dan weer worden gemiddeld. We vinden dan een gemiddelde bundelfractie van $r = 12 \pm 41$. Als we uitgaan van een energie-onafhankelijke pompfractie, dan kunnen we de pompfractie van de metastabielen en de fotonen middelen en uit deze gemiddelde pompfracties kunnen we dan de bundelfractie berekenen (vgl 4.9). De gevonden bundelfractie is dan $r = 32 \pm 73$. Dit is waarschijnlijk niet goed, omdat we in figuur 4.3 kunnen zien dat de pompfracties energie-afhankelijk zijn.

De grote fout is het gevolg van de formule van de bundelfractie (4.9). Hierin wordt gedeeld door een verschil van f en f^* , dit verschil is heel klein, dus de relatieve fout van de bundelfractie wordt heel groot (zie bijlage C).

Hoofdstuk 5

Excitatie-overdracht

5.1 Inleiding

In dit hoofdstuk wordt ingegaan op de excitatie-overdracht van een geëxciteerd edelgasatoom aan een tweeatomig molecuul (N_2).

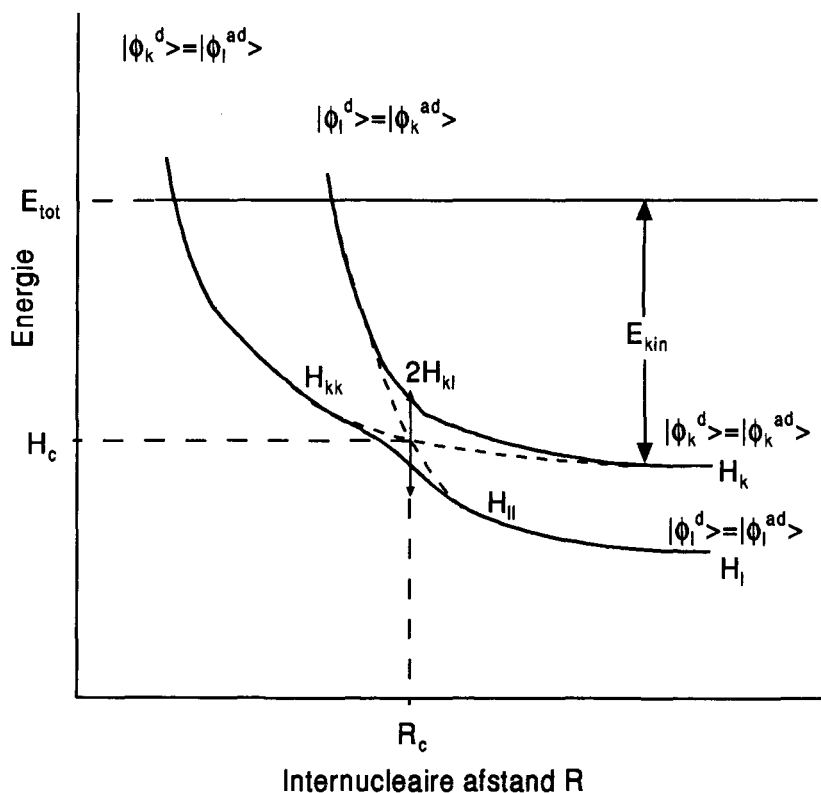
In paragraaf 5.2 worden interactiepotentialen geïntroduceerd, deze beschrijven de verandering van potentiële energie tijdens de interactie van twee of meerdere deeltjes wanneer die elkaar naderen. Ook wordt beschreven hoe de onderlinge oriëntatie tijdens nadering van invloed is op de interactiepotentialen. De interactiepotentialen geven een volledige beschrijving van het botsingsproces. In paragraaf 5.3 wordt de Landau-Zener theorie uitgelegd, deze beschrijft een model voor excitatie-overdracht aan de hand van (interactie-) potentiaalkruisingen. Met deze theorie kunnen we de plaats en de vorm van de potentiaalkruisingen berekenen uit de experimenteel gemeten energie-afhankelijke werkzamedoorsnede. Tenslotte wordt in paragraaf 5.4 uitgelegd hoe we de experimenteel gemeten polarisatierichting-afhankelijke werkzamedoorsnede Q^β moeten omschrijven in een werkzamedoorsnede als functie van de onderlinge oriëntatie van de botsingspartners $Q^{|M_k|}$.

5.2 Interactiepotentialen

De wisselwerking tussen botsende deeltjes (atomen/moleculen) wordt weergegeven door de interactiepotentiaal. Deze geeft de potentiële energie weer van de twee deeltjes als functie van hun onderlinge afstand. Er zijn repulsieve- (monotoon dalend) attractieve- (monotoon stijgend) en bindende potentialen (met minimum). De interactiepotentialen kunnen quantummechanisch berekend worden uit het radiële deel van de Hamiltoniaan van het totale systeem.

Als we de golffunctie benaderen door een elektronisch deel dat alleen afhangt van de afstand tussen de elektronen onderling $\xi(r)$ en een nucleair deel dat alleen afhangt van de afstand tussen de kernen onderling $\psi(R)$, krijgen we de zogenaamde diabatische potentiaal. Als we de golffunctie benaderen door een elektronisch deel dat afhangt de afstand tussen de elektronen onderling en van de afstand tussen de kernen onderling $\chi(r, R)$ plus

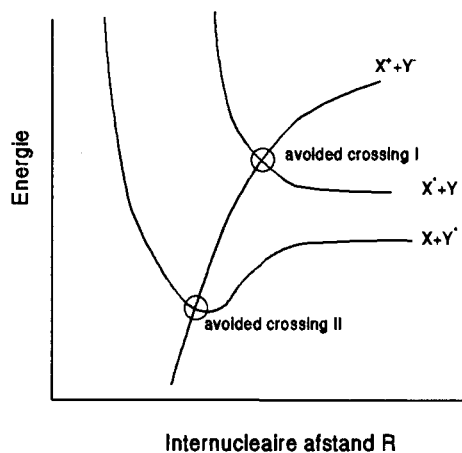
een nucleair deel dat alleen afhangt van de afstand tussen de kernen $\phi(R)$, krijgen we de zogenaamde adiabatische potentiaal [CHI79]. In het limietgeval dat $r, R \rightarrow \infty$ (d.w.z. twee afzonderlijke deeltjes) zijn beide benaderingen gelijk. Uit de Born-Oppenheimer benadering volgt dat we de elektronische beweging kunnen scheiden van de kernbeweging, omdat de elektronische beweging veel sneller is dan de kernbeweging. De elektronen kunnen de kernbeweging gemakkelijk volgen, de elektronengolffunctie verandert mee met de kernbeweging, de elektronengolffunctie is dus afhankelijk van de coördinaten van de kernen (R). Dit komt overeen met de adiabatische potentiaal. In de andere situatie dat de kernen veel sneller bewegen en de elektronen niet kunnen volgen, komt overeen met de diabatische potentiaal. Bij twee situaties waarbij de botsingspartners in verschillende elektronische toestanden zitten, horen dus vier verschillende potentialen. Elke toestand heeft z'n eigen diabatische- (gestippelde lijn) en adiabatische- potentialen (doorgetrokken lijn) (zie figuur 5.1).



Figuur 5.1: De adiabatische (ϕ^{ad}) en diabatische (ϕ^d) potentialen van botsingspartners in twee verschillende toestanden k en l

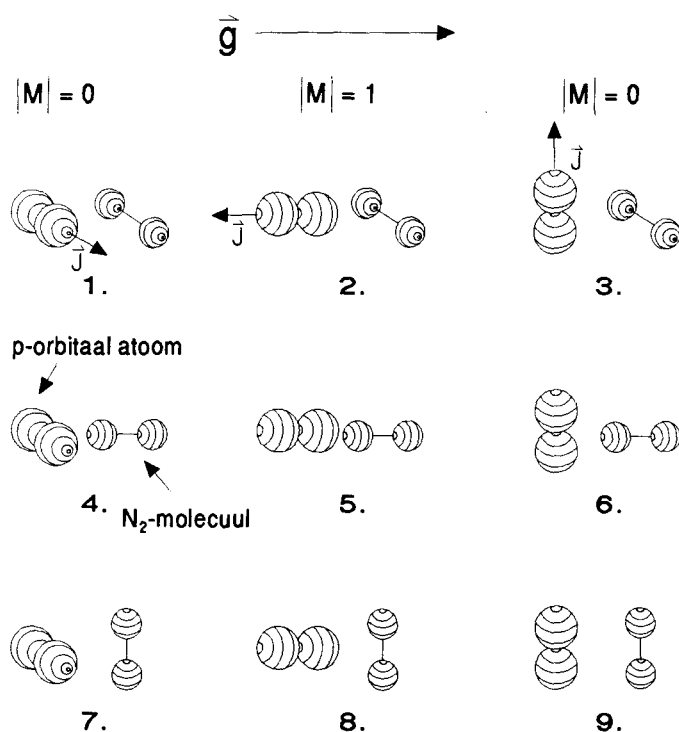
Adiabatische potentialen kruisen elkaar nooit. Op plaatsen waar twee adiabatische potentialen elkaar naderen (R_c), treed een sterke koppeling op. Bij voldoende hoge snelheid van de kernen, kunnen elektronen niet snel genoeg aanpassen aan de kernbeweging. De deeltjes volgen de andere adiabatische toestand, dit komt overeen met een andere ge-exciteerde toestand van de botsingspartners. Als de botsingspartners na de botsing in

een andere toestand zitten, heeft een non-adiabatische overgang plaats gevonden [CHI79]. Dit kan gebeuren tussen twee potentialen, een directe overgang, of tussen drie (of meer) potentialen, dan noemen we het een indirecte overgang. Bij een indirecte overgang wordt nog een tussen toestand gevormd die later weer overgaat naar de eindtoestand (zie fig. 5.2).



Figuur 5.2: Een voorbeeld van een indirecte overgang via een ionogene potentiaal.

De interactiepotentialen kunnen verschillend zijn voor verschillende oriëntaties van de botsingspartners ten opzichte van elkaar. Dit is in het algemeen het geval voor moleculen, omdat die niet bolvormig zijn en geen homogene ladingsverdeling hebben. Ook geëxciteerde atomen hebben in het algemeen geen homogene ladingsverdeling en zijn niet bolvormig. De oriëntaties van het atoom ten opzichte van de relatieve botsingssnelheid \vec{g} kan worden gegeven door de parameter $|M|$, dit is de component van \vec{J} van het atoom in de richting van \vec{g} . De verschillende oriëntaties die mogelijk zijn voor een botsing tussen een twee-atomig molecuul en een atoom met het buitenste elektron in een p-baan zijn getekend in fig. 5.3. De verschillende mogelijkheden uit de laatste kolom zijn gelijk aan mogelijkheden uit de eerste kolom ($3=7$, $6=4$ en $9=1$), bovendien zijn 2 en 8 uit de middelste kolom gelijk. Alle verschillende oriëntaties hebben een andere interactie potentiaal, er zijn dus vijf verschillende potentialen. Maar omdat de moleculen niet georiënteerd kunnen worden, kunnen we geen onderscheid maken tussen de rijen (123, 456 en 789). We kunnen dus alleen een verschil meten tussen $|M| = 0$ en $|M| = 1$ oriëntaties. We zullen dus combinaties van interactie potentialen 1,4 en 7 meten voor de $|M| = 0$ oriëntatie en combinaties van interactiepotentialen 2,5 en 8 voor de $|M| = 1$ oriëntatie. We meten dus maar twee interactie potentialen, een voor botsingen met de oriëntatie $|M| = 1$ en een voor de $|M| = 0$ oriëntatie. Let op, voor een geëxciteerd atoom met $J = 3$ zijn er vier oriëntaties $|M| = 0, 1, 2, 3$ mogelijk. Dit komt door de verschillende m_j -toestanden, want die hebben allemaal verschillende J -componenten in de quantisatie-richting \vec{z} (zie fig. 2.5).



Figuur 5.3: De verschillende oriëntaties van een botsing tussen een twee-atomig molecuul en een geëxciteerd atoom met $J = 1$ (p -baan).

5.3 Landau-Zener model

De non-adiabatische overgang kan volledig quantummechanisch worden beschreven [CHI79]. De deeltjes kunnen tijdens zo'n overgang ook wel worden beschreven door de diabatische potentialen die een curve-crossing vertonen. De Landau-Zener theorie beschrijft de non-adiabatische overgang door een zogenaamde "avoided crossing" tussen twee adiabatische potentialen. Een adiabatische golf functie (ingangskanaal, ϕ_k^{ad}) koppelt dan met een andere adiabatische golf functie (uitgangskanaal, ϕ_l^{ad}) (zie fig. 5.1). De "avoided crossing" ontstaat als de afstand tussen de twee deeltjes ongeveer gelijk is aan R_c . De kans dat een deeltje tijdens een doorgang van de ene adiabatische potentiaal (ϕ_k^{ad}) naar de andere (ϕ_l^{ad}) gaat is p_{kl} , deze wordt volgens [NIK68] gegeven door:

$$\begin{aligned}
 p_{kl} &= \exp(-v_{kl}/v_{rad}), \\
 v_{kl} &= 2\pi(H_{kl})^2/\hbar |F_k - F_l|,
 \end{aligned}
 \tag{5.1}$$

Hierin is v_{rad} de radiale snelheid waarmee de kernen naar elkaar toe bewegen, $F_{k,l}$ de helling van de twee adiabatische potentialen op $R = R_c$ en H_{kl} de helft van het verschil tussen de twee adiabatische potentialen ϕ_l en ϕ_k (zie fig. 5.1). De totale kans dat een deeltje tijdens een botsing overgaat van toestand ϕ_k naar ϕ_l is dus een maal de kans dat het deeltje overgaat op de heenweg (p_{kl}) maal de kans dat het deeltje niet overgaat op de terugweg ($1 - p_{kl}$) plus de kans dat het deeltje niet overgaat op de heenweg en wel op de weg terug.

De totale kans P_{kl} wordt dan:

$$P_{kl} = 2p_{kl}(1 - p_{kl}). \quad (5.2)$$

De maximale overgangskans ligt bij $v_{rad} = v_{kl}/\ln(2)$. De kans kan semi-klassiek worden voorgesteld; zolang de elektronen zich aan kunnen passen aan de kernbeweging (lage snelheid) zijn de adiabatische toestanden goede beschrijvingen en blijven de elektronen in deze adiabatische toestanden ϕ_k , er is dus geen overgang. Als de snelheden van de elektronen hoger liggen, dan kunnen de elektronen in de buurt van de "avoided crossing" zich niet snel genoeg aanpassen aan de adiabatische golf functie en zullen ze overgaan van de ene adiabatische golf functie naar de andere adiabatische golf functie ($k \rightarrow l$). De deeltjesbeweging wordt dan beschreven door de diabatische potentialen (stippellijnen in fig. 5.1). Wordt de snelheid van de kernen nog groter, dan gaan de elektronen op de heenweg over naar een andere adiabatische toestand en op de terugweg nog een keer, er is dus tijdens de botsing effectief niets gebeurd.

De totale overgangskans is een functie van de snelheid $v_{rad}(b, E)$, deze kan geschreven worden als $v_{rad} = \sqrt{\frac{(E - E(\frac{b}{R_c})^2 - 2(H_c - H_k))}{\mu}}$ (zie bijlage A), als we dit invullen in vgl. (5.2) krijgen we de totale overgangskans als een functie van de impactparameter b volgens:

$$P_{kl}(b, E) = 2 \exp\left(-\frac{v_{kl}}{\frac{1}{\mu}\sqrt{E - E\left(\frac{b}{R_c}\right)^2 - 2(H_c - H_k)}}\right) \dots \dots \dots \left\{1 - \exp\left(-\frac{v_{kl}}{\frac{1}{\mu}\sqrt{E - E\left(\frac{b}{R_c}\right)^2 - 2(H_c - H_k)}}\right)\right\}. \quad (5.3)$$

Om überhaupt een overgang te krijgen, moet er daarna nog wat radiële kinetische energie overblijven ($E_{rad} > 0$). Uit bijlage A volgt dan:

$$0 < b < b_{max} = R_c \sqrt{\frac{E - (H_c - H_k)}{E}}. \quad (5.4)$$

Als we kans P_{kl} (vgl. 5.3) vermenigvuldigen met het bijbehorende trefoppervlak (πb^2) en integreren over alle impactparameters die mee doen ($0 < b < b_{max}$), dan krijgen we de totale werkzamedoorsnede Q_{kl} :

$$Q_{kl}(E) = \int_0^{b_{max}} 2\pi b P_{kl}(b, E) db. \quad (5.5)$$

De vorm van de bovenstaande functie is alleen afhankelijk van de parameters H_c, R_c en v_{ref} . Als we nu experimenteel de werkzamedoorsnede als functie van de relatieve botsingsenergie $Q(E)$ bepalen, dan kunnen we hieruit de vrije parameters H_c, R_c en v_{ref} bepalen.

5.4 Coördinaat systemen

In §5.2 hebben we gesproken over de oriëntatie van de elektronen-baan (\vec{J}) van een atoom ten opzichte van de relatieve botsingssnelheid \vec{g} . Vanuit het atoom gezien is dit een logisch coördinaten systeem. Als we de atomen echter gaan exciteren met een laser, dan kunnen we de polarisatie-richting van de laser ten opzichte van de botsingssnelheid \vec{g} draaien met een hoek β . De elektronen-baan maakt dan dus ook een hoek β met de relatieve botsingssnelheid \vec{g} . We kunnen een atoom dat een hoek β maakt met de relatieve botsingssnelheid, ook beschrijven als een combinatie van $|M| = 0..3$ oriëntaties.

Wanneer we nu dus de werkzamedoorsnede $Q^\beta(E)$ meten als functie van die hoek die de laser maakt met de botsingssnelheid \vec{g} , dan kunnen we deze transformeren naar een werkzamedoorsnede als functie van $|M|$ -oriëntaties. Deze transformatie wordt gegeven door de Wigner D functies ($d_{m_k M_k}^{J_k}(\beta)$). We krijgen dan een uitdrukking die er als volgt uit ziet:

$$Q^\beta = \sum_{m_k=-J_k}^{J_k} g_{m_k} \sum_{m_k=-J_k}^{J_k} \{d_{m_k M_k}^{J_k}(\beta)\}^2 Q^{|M_k|}. \quad (5.6)$$

De gereduceerde Wigner d -functies zijn combinaties van \cos termen, als we dezelfde \cos termen bij elkaar optellen, krijgen we een reeks die te schrijven is als:

$$Q^\beta = \sum_{n=0}^{J_k} J_k C_n \cos(2n\beta). \quad (5.7)$$

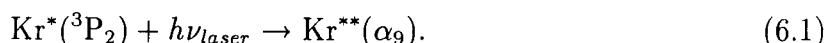
Voor een $J = 3$ overgang zijn de $J_k C_n$ coëfficiënten berekend, deze zijn gegeven in bijlage B.

Hoofdstuk 6

$\text{Kr}^{**} + \text{N}_2(\text{X}, v' = 0)$

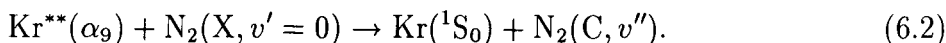
6.1 Inleiding

In dit hoofdstuk gaan we in op de botsingsexperimenten die zijn gedaan met kortlevende $\text{Kr}^{**}(\alpha_9)$ -atomen en N_2 -moleculen in de grondtoestand. De $\text{Kr}^{**}(\alpha_9)$ -atomen worden geproduceerd door $\text{Kr}^*(^3\text{P}_2)$ in de metastabielenbundel te pompen volgens:

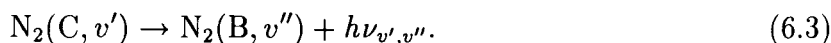


Het optisch pompen van deze overgang is uitgelegd in §2.3. Het pompen wordt gedaan met behulp van een hoog vermogen diodelaser, bij een golflengte van 811.291 nm (zie §3.4).

In §1.2 hebben we voorspeld dat tijdens deze botsing de excitatie-energie van het Kr^{**} -aatom kan worden overgedragen aan het N_2 -molecuul volgens het volgende proces:



We kijken tijdens dit experiment naar het volgende vervalsproces:



De golflengte van de fotonen die bij dit vervalsproces vrij komen ligt in het gebied tussen 290 en 350 nm. Door nu de vervalstraling (6.3) te detecteren, kunnen we afleiden hoe het proces (6.2) verloopt.

Om zo veel mogelijk signaal van het proces (6.2) te krijgen, moeten we zorgen dat er veel Kr^{**} is. Daarom is gekozen voor de twee-niveau overgang (6.1), de kortlevende $\text{Kr}^{**}(\alpha_9)$ -atomen vallen terug naar de metastabiele $\text{Kr}^*(^3\text{P}_2)$ -toestand en kunnen dan weer opnieuw gepompt worden. Ook is gebruik gemaakt van een hoogvermogen diodelaser om zo veel mogelijk te pompen (§2.3).

Om de werkzamedoorsnede te bepalen (vgl. 3.5), moet $\dot{N}(\text{Kr}^{**})$ bekend zijn. Dit kunnen we niet direkt meten, we moeten eerst weten hoeveel metastabiele $\text{Kr}^*(^3\text{P}_2)$ -atomen zijn geëxciteerd naar de $\text{Kr}^{**}(\alpha_9)$ -toestand. Als dat bekend is, kunnen we met behulp van de metastabielenmeting bepalen wat $\dot{N}(\text{Kr}^{**})$ tijdens de botsing was. Er zijn twee

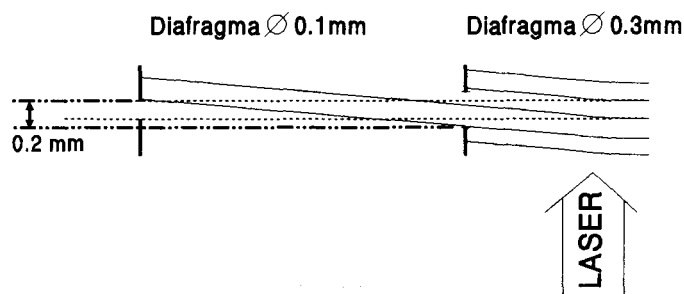
soorten metingen gedaan waarmee de hoeveelheid $\text{Kr}^{**}(\alpha_9)$ kan worden bepaald. De zogenaamde “uitzwaaimeting”, deze wordt besproken in §6.2, hiermee kunnen we precies bepalen hoeveel $\text{Kr}^*(^3\text{P}_2)$ er gepompt kan worden door de diodelaser. De zogenaamde “verzadigingsmeting” wordt besproken in §6.3. Met behulp van deze meting kunnen we bepalen hoeveel, van het $\text{Kr}^*(^3\text{P}_2)$ dat gepompt kan worden, in de kortlevende $\text{Kr}^{**}(^3\text{P}_2)$ zit.

In §6.4 worden de energie-afhankelijke botsingsmetingen besproken. Tenslotte wordt in §6.5 gekeken naar de polarisatieafhankelijkheid (zie §2.4 en §5.2) van het proces (6.2).

6.2 Uitzwaaimeting

Tijdens deze zogenaamde “uitzwaaimeting” is de laserbundel ingekoppeld op het spiegeltje onder het strooicentrum. De laserbundel wordt dan omhoog gericht op de hoofdbundel, zonder dat de dwarsbundel aan staat (zie fig 3.1 en 3.5). Als we dan het metastabielsignaal meten, met laser-aan en laser-uit, dan zien we een verschil in metastabielen opbrengst.

Een atoom dat een foton absorbeert, krijgt een extra impuls van het foton. Als een atoom een foton uitzendt, dan verliest het atoom de impuls die het uitgezonden foton heeft. Fotonen die door de atomen in de bundel worden geabsorbeerd, hebben allemaal dezelfde richting (richting van de laser) en dezelfde golflengte, dus dezelfde impuls ($\hbar\vec{k}$). Alle atomen die een foton absorberen krijgen dus een extra impuls omhoog (omdat de laserbundel in het strooicentrum omhoog is gericht). De fotonen worden door spontane- of gestimuleerde-emissie weer uitgezonden. Bij gestimuleerde emissie vertrekt het foton met dezelfde richting als waarmee het aankwam. De impuls van het atoom is dan niet veranderd tijdens een absorptie en gestimuleerde emissie cyclus. Bij spontane-emissie vertrekt het foton in een willekeurige richting. Het atoom verliest dan weer impuls in die (willekeurige) richting. Gemiddeld heeft elk atoom dan een extra impuls $\hbar k$ omhoog gekregen bij elke absorptie en spontane-emissie cyclus [KNO94] [BEI93]. Met de laser aan wordt dus een gedeelte van de metastabielenbundel, door de laser, omhoog “geduwd”.



Figuur 6.1: *Atomen die buiten het tweede diafragma vallen.*

Een metastabiel $\text{Kr}^*(^3\text{P}_2)$ met snelheid $v = 535 \frac{\text{m}}{\text{s}}$, dat in het strooicentrum één foton met golflengte 811 nm heeft geabsorbeerd, heeft een extra impuls omhoog van $v_{\text{recoil}} =$

$6 \cdot 10^{-3} \frac{m}{s}$ [BEI93]. Er staan nu twee diafragma's na het strooicentrum (zie fig. 3.1). Deze hebben een diameter van respectievelijk 0.3 mm en 0.1 mm en staan 405 mm uit elkaar. Dus als het $Kr^*(^3P_2)$ één foton geabsorbeerd en spontaan geëmiteerd heeft, krijgt het tussen de twee diafragma's een uitwijking van:

$$u = \frac{v_{recoil}}{v} 405 \cdot 10^{-3} m = 4.5 \cdot 10^{-6} m. \quad (6.4)$$

De atomen die een uitwijking hebben gekregen van meer dan 0.2 mm (zie fig. 6.1), vallen altijd buiten het tweede diafragma. Als de atomen dus genoeg fotonen (n_{fot}) hebben geabsorbeerd, vallen ze niet meer op de metastabielen detector:

$$n_{fot} = \frac{2 \cdot 10^{-4} m}{4.5 \cdot 10^{-6} m} \approx 44. \quad (6.5)$$

Het aantal fotonen dat nu gemiddeld door een atoom geabsorbeerd wordt in het strooicentrum, kan met behulp van vergelijkingen (2.11) en (2.14) worden berekend:

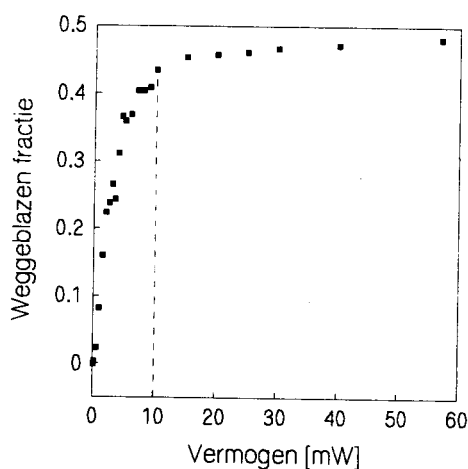
$$n_{fot} = \frac{R_{spont} T}{N} = \Gamma T \frac{s}{2 + (\frac{g_2}{g_e} + 1)s}. \quad (6.6)$$

Met hierin N het aantal atomen en $T = \frac{6 \cdot 10^{-3} m}{535 \frac{m}{s}}$, de interactietijd van een metastabiel met snelheid $535 \frac{m}{s}$ in het strooicentrum met een lengte van 6 mm. Uit vergelijking (6.6) volgt dat het aantal foton absorpties per atoom bij hoge vermogens nadert naar:

$$\Gamma T \frac{7}{12} \approx 230. \quad (6.7)$$

Met $\Gamma = 35 \cdot 10^6 s^{-1}$ en $\frac{g_2}{g_e} = \frac{5}{7}$ voor de overgang $Kr^*(^3P_2) \rightarrow Kr^{**}(\alpha_9)$. Alle atomen die dan resonant zijn met het laserlicht, komen niet meer door het diafragma.

We hebben nu het aantal metastabielen dat op de detector valt gemeten als functie van het vermogen, zie figuur 6.2. Te zien is dat bij een vermogen hoger dan ≈ 10 mW (stippellijn), alle $Kr^*(^3P_2)$ al naast het diafragma vallen. Het percentage van de metastabielen dat is "weggeduwd" bij hoge laservermogens (als alle $Kr^*(^3P_2)$ -atomen die resonant zijn met de laserbundel naast het diafragma terecht komen), is 48%. Dit komt overeen met de theoretisch verwachte waarde. Want alleen de 3P_2 -toestand wordt gepompt, in de Kr^* -bundel zit 88% $Kr^*(^3P_2)$ (zie [VRE90] blz. 87). Bovendien is daarvan 57% het isotoop Kr[84]. Alleen metastabiele $Kr^*(^3P_2)$ -atomen van het isotoop Kr[84] zijn resonant met de laserbundel. Dit komt omdat de diodelaser is gestabiliseerd op een doppler-minimum, waarin de overgang van het Kr[84]-isotoop het sterkst is. In dit dopplerminimum liggen de overgangen van de andere isotopen meer dan 60 MHz uit elkaar [JAC79]. De lijnbreedte van de diodelaser is minder dan 15 MHz breed, dus er kan slechts een isotoop worden gepompt, in dit geval dus Kr[84]. Deze meting geeft precies aan welk percentage van de metastabielen resonant is met de laserbundel en gepompt kan worden naar de kortlevende $Kr^{**}(\alpha - 9)$ -toestand. In dit geval dus 48%.

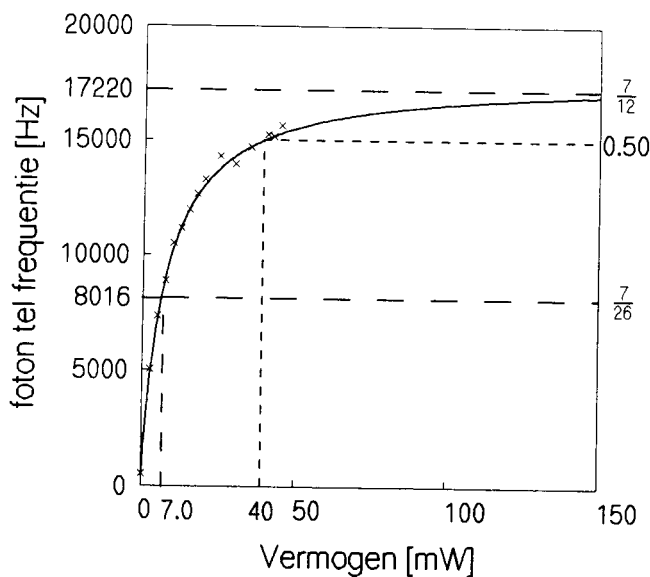


Figuur 6.2: Het aantal metastabielen dat wordt “weggeduwd” als functie van het laservermogen.

6.3 Verzadigingsmeting

Het aantal $\text{Kr}^{**}(\alpha_9)$ -atomen is afhankelijk van het laservermogen (vgl. 2.14). Wanneer we in de stationaire situatie kijken, volgt voor de bezettingsgraad:

$$\frac{N_e}{N} \approx \frac{s}{2 + (\frac{5}{7} + 1)s}. \quad (6.8)$$



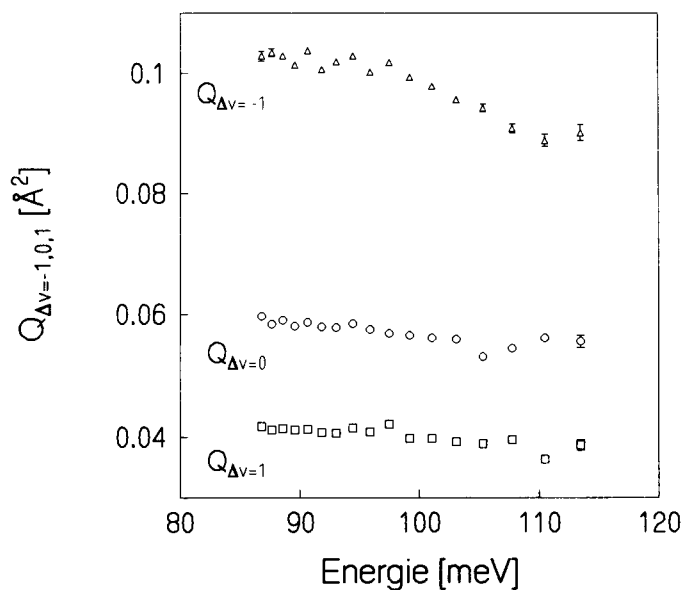
Figuur 6.3: Vermogensafhankelijke fotonenopbrengst.

Als we nu de fotonen van het proces (6.3) meten als functie van het laservermogen, dan moet dit evenredig zijn met formule (6.8). De meting staat gegeven in figuur 6.3. Dit is

gemeten met een continue hoofbundel (zonder chopper), dus geen TOF-meting. De meting is gefit aan de formule (6.8). Als het vermogen heel hoog is en de verzadigingsparameter s nadert naar een hele hoge waarde, dan zit $\frac{7}{12}$ van alle $\text{Kr}^*(^3\text{P}_2)$ in de $\text{Kr}^{**}(\alpha_9)$ -toestand (zie vgl. (6.8)). Dit komt experimenteel overeen met 17220 fotonen/s (zie fig. 6.3). Bij een verzadigingsparameter $s = 1$ zit $\frac{7}{26}$ van alle $\text{Kr}^*(^3\text{P}_2)$ in de $\text{Kr}^{**}(\alpha_9)$ -toestand. Dit komt experimenteel dus overeen met 8016-fotonen/s, dat is bij ≈ 7.0 mW (zie fig. 6.3). Met behulp van deze meting kunnen we het laser Vermogen dus schalen met de verzadigingsparameter (s). Een laser Vermogen van 7.0 mW komt overeen verzadigingsparameter van $s = 1$.

6.4 Werkzamedoorsnede

Met de opstelling die schematisch is getekend in fig. 3.1 en 3.5, zijn nu TOF-metingen gedaan (zie §3.5) met verschillende Δv -filters. Er is gemeten zonder polarising beam-splitter en zonder $\frac{\lambda}{2}$ -plaatje, omdat we geen polarisatie-afhankelijke metingen doen. De laserpolarisatie staat nu evenwijdig aan de hoofbundel (z -richting). Dit is ongeveer 45° ten opzichte van de relatieve botsingssnelheid (\vec{g}), want $v_{N_2} \approx v_{Kr}$. Uit de verschilmetingen van metastabielen met laser-aan en laser-uit (zie tabel 3.1), volgt dat 53% van het totale aantal metastabielen is “weggeduwd” (zie §6.2). Dus ook 53% van alle metastabielen heeft meer dan 44 fotonen geabsorbeerd (vgl. 6.5), dit zijn alle $\text{Kr}^*(^3\text{P}_2)$ -metastabielen van het isotoop $\text{Kr}[84]$. Het laser Vermogen tijdens de meting is 40 mW, dan zit $\approx 50\%$ van alle $\text{Kr}^*(^3\text{P}_2)$ -metastabielen (die resonant zij met het laserlicht) in de $\text{Kr}^{**}(\alpha_9)$ -toestand (zie fig. 6.3). Totaal zit dus $(0.53 \cdot 0.5 =)$ 26.5% van alle metastabielen in de kortlevende toestand.



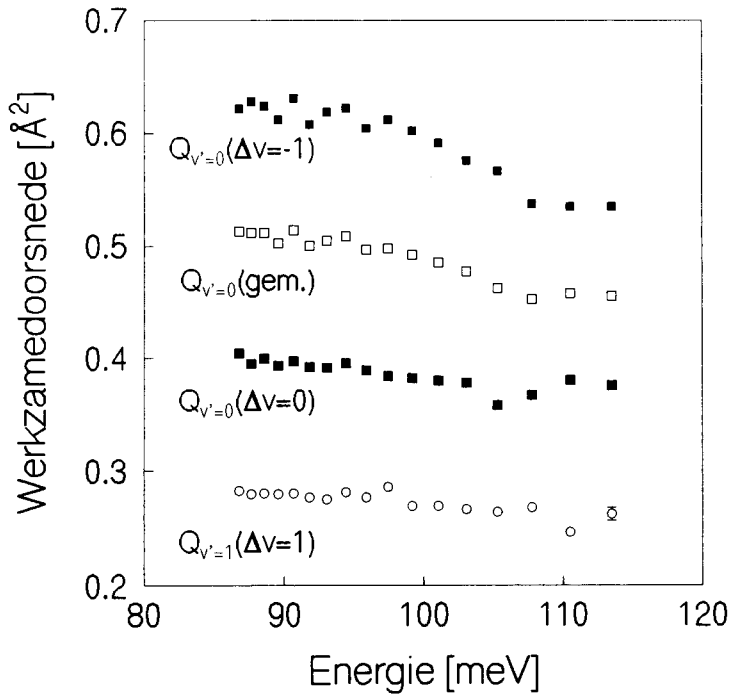
Figuur 6.4: *Energie-afhankelijke werkzamedoorsnede ($Q_{\Delta v=-1,0,1}(E)$), gemeten met de verschillende Δv -filters.*

We gebruiken nu de TOF-meting van de metastabielen (vermenigvuldigd met 0.265 voor het aantal kortlevende Kr^{**}) en de TOF-meting van het fotonensignaal om de $Q_{\Delta v}(E)$ te berekenen (vgl 3.5). De gemeten $Q_{\Delta v}(E)$ staat gegeven in figuur 6.4. We hebben alleen de metingen gegeven met de Δv -filters -1,0,1. Tijdens de metingen met Δv -filters 2 en 3, werden geen fotonen gedetecteerd (zie tabel 3.1). Normaal wordt ook nog een meting gedaan zonder Δv -filter [BOO88, VRE90, AAR91, NIJ92]. Omdat de laser in dit experiment rechtstreeks op de photomultiplier en de filters schijnt, kon niet zonder filter gemeten worden, de photomultiplier raakt dan in verzadiging.

Uit het stelsel vergelijkingen (3.6). volgt:

$$\begin{aligned}
 Q_{\Delta v=-1} &= M_{01}T_{01} Q_{v'=0} + M_{12}T_{12} Q_{v'=1} + M_{23}T_{23} Q_{v'=2} + M_{34}T_{34} Q_{v'=3} + M_{45}T_{45} Q_{v'=4} \\
 Q_{\Delta v=0} &= M_{00}T_{00} Q_{v'=0} + M_{11}T_{11} Q_{v'=1} + M_{22}T_{22} Q_{v'=2} + M_{33}T_{33} Q_{v'=3} + M_{44}T_{44} Q_{v'=4} \\
 Q_{\Delta v=1} &= M_{10}T_{10} Q_{v'=1} + M_{21}T_{21} Q_{v'=2} + M_{32}T_{32} Q_{v'=3} + M_{43}T_{43} Q_{v'=4} \\
 Q_{\Delta v=2} &= M_{20}T_{20} Q_{v'=2} + M_{31}T_{31} Q_{v'=3} + M_{42}T_{42} Q_{v'=4}
 \end{aligned} \tag{6.9}$$

Omdat er geen fotonen werden gemeten met de $\Delta v=2..3$ -filters, kan worden geconcludeerd dat de vibratietoestanden $v' = 2..4$ niet worden bezet. Dit verwachten we ook, want de interne potentiële-energie van het $Kr^{**}(\alpha_9)$ (11.44 eV) plus de maximale kinetische energie (0.115 eV) is net niet genoeg om het $N_2(C, v'=2)$ te exciteren (11.56 eV) [LOF77].

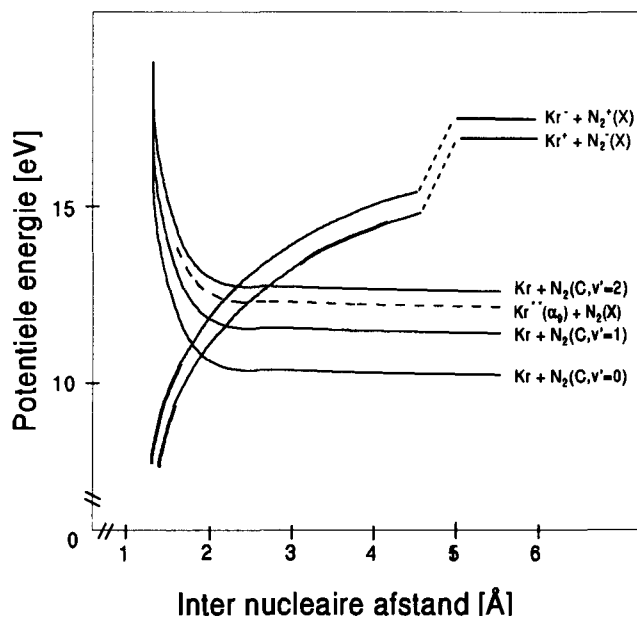


Figuur 6.5: *Energie-afhankelijke werkzamedoorsnede ($Q_{v'=0,1}$) voor het proces: $Kr^{**}(\alpha_9) + N_2(X, v' = 0) \rightarrow Kr(^1S_0) + N_2(C, v'' = 0, 1)$.*

We hebben nu dus drie metingen ($Q_{\Delta v=-1,0,1}$) om twee onbekende op te lossen ($Q_{v'=0,1}$). Uit de $Q_{\Delta v=1}$ -meting, kunnen we direkt de werkzamedoorsnede $Q_{v'=1}$ oplossen (zie vgl

(6.9)). Deze oplossing staat gegeven in figuur 6.5. De twee andere vergelijkingen gebruiken we om $Q_{v'=0}$ op te lossen. Deze twee vergelijkingen zijn onafhankelijk van elkaar, voor elke vergelijking komt er voor $Q_{v'=0}$ een andere oplossing uit. In fig. 6.5 staan de oplossing van $Q_{v'=0}$ die berekend zijn uit de filter metingen $\Delta v=-1$ en $\Delta v=0$, bovendien is de gemiddelde $Q_{v'=0}$ en de oplossing van $Q_{v'=1}$ gegeven. De excitatie naar vibratietoestand $v'=0$ en $v'=1$ zijn exotherm, de potentiële energie worden gedeeltelijk omgezet in kinetische energie. Het maximum van de $Q^{v'}(E)$ -curve ligt bij kinetische energieën lager dan 80 meV. Met de bronnen die we gebruiken kunnen we alleen metastabielen met een hogere kinetische energie maken, vandaar dat we dit maximum niet kunnen meten. Als gevolg hiervan kunnen we deze $Q^{v'}(E)$ -curves niet fitten aan een Landau-Zener model, omdat we hiervoor de plaats van het maximum nodig hebben. Bovendien is het energiegebied dat we gemeten hebben te klein om te fitten aan een Landau-Zener model. Als we de waarde van de werkzamedoorsnede invullen in de "harde bollen"-benadering, dan vinden we $R_c \simeq \sqrt{\frac{Q}{\pi}} \approx 0.4 \text{ \AA}^2$. Dit is erg klein. Het maximum zal waarschijnlijk hoger liggen, bij een lagere energie.

We kunnen de interactiepotentialen van dit excitatie-overdracht proces in eerste instantie wel vergelijken met de interactiepotentialen van $\text{Ar}^* + \text{N}_2(\text{X}, v'=0)$ en met de interactiepotentialen van $\text{Kr}^* + \text{N}_2(\text{X}, v'=0)$ [VRE90]. Hierin wordt uitgegaan van een indirecte overgang via een ionogene-potentiaal. De interactiepotentialen staan dan getekend in figuur 6.6. De crossing radius ligt dan in de orde van 1 á 3 Angström ($R_c \approx 1-3 \text{ \AA}$).



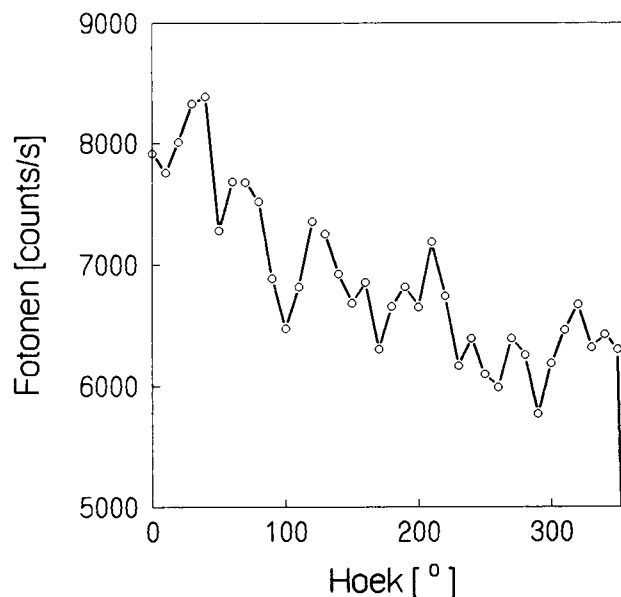
Figuur 6.6: De interactiepotentialen van het excitatieoverdracht proces (6.2).

6.5 Polarisatie-afhankelijkheid

De polarisatie-afhankelijke metingen zijn gedaan met een continue bundel, er zijn dus geen TOF-metingen gedaan. Omdat we in eerste instantie verwachten dat het polarisatie effect niet snelheidsafhankelijk is. Elke keer is de fotonenopbrengst gemeten bij verschillende standen van de laserpolarisatie. Uit vergelijking (5.7) volgt dat we een polarisatie-afhankelijke fotonen opbrengst krijgen volgens:

$$I = I_0 + I_2 \cos(2\beta) + I_4 \cos(4\beta) + I_6 \cos(6\beta) \quad (6.10)$$

De resultaten van de metingen staan gegeven in figuur 6.7. We zien een sterk fluctuerende en steeds afnemende fotonen opbrengst. We zien echter geen polarisatie-afhankelijke bijdrage (I_2 , I_4 of I_6). Als de polarisatie-afhankelijkheid in de meting aanwezig is, dan is ze kleiner dan 10% van I_0 . Het steeds maar afnemende fotonensignaal kan worden verklaard door een afname van de reflectie van het inkoppel-spiegeltje onder het strooicentrum. Het spiegelkje zit namelijk dicht bij een cryoscherm met een temperatuur van 20K. Dit is lager dan de kooktemperatuur van het N_2 , dus als het spiegelkje zo ver afkoelt, kan er N_2 op het spiegelkje vast vriezen. Er komt dan ook bijna geen laserlicht meer door het strooicentrum. Als de cryopomp wordt uitgezet en de opstelling wordt belucht, dan komt er wel weer laserlicht door het strooicentrum. Als alles dan weer wordt afgepompt en we meten opnieuw, is het fotonensignaal weer veel hoger. Door dit effect kan ook de polarisatie van de laserbundel worden verpest, dit is dus ook een mogelijke oorzaak voor het feit dat we geen polarisatie-effect zien.



Figuur 6.7: *Polarisatie-afhankelijke fotonenopbrengst.*

Hoofdstuk 7

Conclusies en aanbevelingen

De bundelfractie van een metastabiele $\text{Xe}^*(^3\text{P}_{0,2})$ -bundel is bepaald door $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ -metastabielen met een diodelaser uit de bundel te pompen. Met behulp van de metastabielen- en fotonen-pompfractie is het vervolgens mogelijk om de bundelfractie te bepalen. De metastabielen worden geproduceerd in een Thermische Metastabielen Bron. De energie van de Xe^* -atomen uit deze bron ligt tussen de 85 meV en 115 meV. De lijnbreedte van de diodelaser is veel groter dan de lijnbreedte van de overgang die gepompt wordt. Daardoor is het effectieve pompvermogen laag en wordt lang niet alle $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ gepompt. Bovendien is het pompproces afhankelijk van de interactietijd van de $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ -atomen met de laserbundel. De langzame metastabielen zien het laserlicht langer, dus worden beter gepompt. De snelheidsafhankelijkheid is evenredig met $e^{-1/v}$. In een klein energiegebiedje (85 - 115 meV) zien we voor de pompfractie van de metastabielen in benadering een afhankelijkheid die omgekeerd evenredig is met de snelheid. Voor lage energieën is echter een (onbekend) energie-afhankelijk effect gezien waardoor de pompfractie van de metastabielen sterk toeneemt naarmate de energie hoger wordt.

Uit de pompfractie-metingen kunnen we niet met zekerheid bepalen of de bundelfractie afhankelijk is van de energie, vanwege de grote statistische fout in het fotonensignaal. In eerste orde is de berekende bundelfractie echter niet energie-afhankelijk in het gemeten energiegebied. De gemeten bundelfractie is 12 ± 41 . De grote fout is het gevolg van de grote relatieve fout die optreedt als we delen door een verschil van twee ongeveer gelijke getallen. Deze bundelfractie komt overeen met de bundelfractie die eerder is afgeschat [NIJ92].

Metastabiele $\text{Kr}^*(^3\text{P}_2)$ -atomen in een metastabiele $\text{Kr}^*(^3\text{P}_{0,2})$ -bundel kunnen met behulp van een hoog vermogen, single mode diodelaser worden geëxciteerd naar de kortlevende $\text{Kr}^{**}(\alpha_9)$ -toestand. Als we deze kortlevende atomen laten botsen met een dwarsbundel van N_2 -moleculen in de grondtoestand, wordt de excitatie energie van het kortlevende Kr^{**} -aatom overgedragen aan het N_2 -molecuul. Zoals verwacht wordt het N_2 -molecuul geëxciteerd naar de $\text{N}_2(\text{C})$ toestand. Het excitatie-overdrachtsproces is exotherm, de N_2 -moleculen worden alleen geëxciteerd naar de vibratieniveaus $v' = 0$ en $v' = 1$ van de $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand. De gemeten werkweddoorneden van deze twee processen zijn respectievelijk $Q_{v'=0}(85 \text{ meV}) = 0.51 \text{ \AA}^2$ en $Q_{v'=1}(85 \text{ meV}) = 0.27 \text{ \AA}^2$. Uit de afname van de

energie-afhankelijke werkzamedoorsnede volgt dat het maximum bij lagere energieën moet liggen. De maximale werkzame doorsnede zal dus hoger zijn dan respectievelijk 0.51\AA^2 en 0.27\AA^2 . Wanneer we het excitatie-overdrachtsproces van $\text{Kr}^{**} + \text{N}_2$ vergelijken met het excitatie-overdrachtsproces van $\text{Ar}^* + \text{N}_2$ en $\text{Kr}^* + \text{N}_2$, dan verwachten we ook een hogere waarde voor de werkzamedoorsnede.

Het verwachte polarisatie-afhankelijke effect hebben we niet kunnen meten waarschijnlijk vanwege het vastvriezen van N_2 -gas op het inkoppelspiegeltje. Daardoor verminderde de reflectiviteit van het inkoppelspiegeltje en werd er minder laserlicht ingekoppeld in het strooicentrum. Waarschijnlijk is de polarisatie van de laserbundel ook niet meer zuiver lineair geweest na reflectie op dit spiegelstukje.

In de toekomst zouden metingen kunnen worden gedaan om excitatie naar de $\text{N}_2(\text{B})$ -toestand te onderzoeken. Er kan dan gebruik worden gemaakt van een optisch filter dat alleen het laserlicht ($\lambda=811\text{ nm}$) blokkeert. Bovendien kan het bovenstaande proces dan ook worden gemeten met alleen dit filter, dit levert een extra controle op de andere Δv -filter metingen. Tenslotte zou nog gekeken kunnen worden naar het excitatie-overdrachtproces van $\text{Ar}^{**} + \text{N}_2$. Mogelijk wordt het N_2 -molecuul toch geëxciteerd naar de $\text{N}_2(\text{C})$ -toestand door een ionogene-potentiaal.

In de toekomst kan waarschijnlijk ook gebruik gemaakt worden van een versmalde diodelase (Grating Feedback). Het laservermogen zit dan binnen een lijnbreedte die zelfs kleiner is dan de lijnbreedte van de overgang. Er kan dus veel effectiever worden gepompt waardoor we meer signaal krijgen in het $\text{Kr}^{**} + \text{N}_2$ botsingsproces. Vooral de bundelfractie kan dan simpel bepaald worden, omdat we met zo'n laser waarschijnlijk alle $\text{Xe}^*(^3\text{P}_2)$ van één bepaald isotoop uit de bundel kunnen pompen. We hoeven dan alleen maar de pompfractie van de metastabielen te meten, om de bundelfractie te berekenen. De fout in de resultaten kan dan drastisch worden verkleind.

Bibliografie

- [AAR91] T.G. Aardema, Afstudeerverslag VDF/NO 91-16, T.U. Eindhoven (1991).
- [BEE92] S.S. Op de Beek, Afstudeerverslag VDF/NO 92-18, T.U. Eindhoven (1992).
- [BEI81] H.C.W. Beijerinck en N.F. Verster, *Physica* **111 C**, blz. 327 (1981).
- [BEI93] H.C.W. Beijerinck, P. v.d. Straten, H. Rudolph, "Laserkoeling in Theorie en praktijk", collegediktaat VDF/NO 93-09, T.U.Eindhoven (1993).
- [BÖH89] W. Böhle, H. Geisen, T. Krümpelman en Ch. Ottinger, *Chem. Phys.* **133**, blz. 313 (1989).
- [BOO88] W. Boom, Afstudeerverslag VDF/NO 88-16, T.U. Eindhoven (1988).
- [BOR71] W.L. Borst, *Rev. Sci. Instr.* **42**, blz. 1543 (1971).
- [CHI79] M.S. Child, "Atom-Molecule Collision Theory", Edited by R.B. Bernstein, Plenum Press, New York, blz. 427 (1979).
- [EMI84] Catalogus "Photomultipliers", Thorn EMI, (1982).
- [HUR90] P.J. van den Hurk, "Diodelasers in atomic beam experiments", Instituut Vervolg Opleidingen, Eindhoven (1990).
- [JAC79] D.A. Jackson, *J. Opt. Soc. Am.*, **69**, No. 4, blz. 503 (1979).
- [KER88] E.R.Th. Kerstel, M.F.M. Janssens, K.A.H. van Leeuwen en H.C.W. Beijerinck, *Chem. Phys.* **121**, blz. 211 (1988).
- [KNO92] R. Knops, Stageverslag VDF/NO 92-14, T.U. Eindhoven (1992).
- [KNO94] R. Knops, Afstudeerverslag VDF/NO 94-08, T.U. Eindhoven (1994).
- [LOF77] A. Lofthus en P.H. Krupenie, *J. Phys. Chem. Ref. Data.* **6**, blz. 226 (1977).
- [MEG92] H.J.L. Megens, "Design of a continuously tunable ...", Instituut Vervolg Opleidingen, Eindhoven (1992).
- [MIL88] P.W. Milonni, J.H. Eberly, "Lasers", John Wiley & Sons (1988).

- [NIJ92] E. van Nijnatten, Afstudeerverslag VDF/NO 92-15, T.U. Eindhoven (1992).
- [NIK68] E.E. Nikitin, "Chemische Elementarprozesse", Springer (1968).
- [STE85] S. Stenholm, "Lasers in applied and fundamental research", Adam Hilger Ltd., Bristol an Boston, blz. 92 (1985).
- [THE81] P.G.A. Theuws, Proefschrift, T.U. Eindhoven (1981).
- [THE82] P.G.A. Theuws, H.C.W. Beijerinck, N.F. Verster, D.C. Schram, J. Phys. E **17**, blz. 573 (1982).
- [VER84] M.J. Verheijen, H.C.W. Beijerinck, L.H.A.M. van Moll, J.P.J. Driessen, N.F. Verster, J. Phys. E **17**, blz. 904 (1984).
- [VLI85] E.J.W. van Vliembergen, Afstudeerverslag VDF/NO 85-17, T.U. Eindhoven (1985).
- [VLI87] E.J.W. van Vliembergen, E.J.D. Vredenbregt, G.H. Kaashoek, J.P.M.J. Jaspar, M.M.M. van Lanen, M.F.M. Janssens, M.J. Verheijen en H.C.W. Beijerinck, Chem. Phys. **114**, blz. 117 (1987).
- [VRE90] E.J.D. Vredenbregt, Proefschrift, T.U. Eindhoven (1990).

Bijlage A

Radiële snelheid

De radiële snelheid bij een avoided crossing wordt bepaald uit de radiële kinetische energie E_r :

$$E_r(R_c) = E - E_\phi(R_c) - (H_c - H_k). \quad (\text{A.1})$$

Hierin is E de totale relatieve kinetische energie op $R = -\infty$ en $E_\phi(R_c)$ de rotationele kinetische energie:

$$L = \mu g b, \quad (\text{A.2})$$

$$E_\phi(R_c) = \frac{L^2}{2\mu R_c^2} = E \left(\frac{b}{R_c} \right)^2, \quad (\text{A.3})$$

H_c is de energie precies tussen de twee potentialen en H_k de energie van het ingangskanaal op $R = -\infty$ (zie fig. 5.1).

We kunnen nu schrijven:

$$E_r(R_c) = E - E \left(\frac{b}{R_c} \right)^2 - (H_c - H_k). \quad (\text{A.4})$$

Als we hierin invullen $v_{rad} = \sqrt{\frac{2E_r}{\mu}}$:

$$v_{rad} = \sqrt{\frac{\left(E - E \left(\frac{b}{R_c} \right)^2 - 2(H_c - H_k) \right)}{\mu}}. \quad (\text{A.5})$$

Bijlage B

C-coëfficiënten

De sommatie van formule (5.6) is uitgevoerd met behulp van het softwarepakket Mathematica[©]. Hieronder staat de berekeningsprocedure:

```
dd/: dd[J_ , M_ , MA_ , nu_ , Theta_ ] :=
  ((-1)^nu*Cos[Theta/2]^((2*J + M) - MA - 2*nu)*
  (-Sin[Theta/2])^(MA - M + 2*nu))/
  ((J - MA - nu)!*((J + M) - nu)!*((nu + MA) - M)!*nu!)

d/: d[J, M, MA, Th] :=
  ((J + M)!*(J - M)!*(J + MA)!*(J - MA!)^(1/2)*
  Sum[dd[J, M, MA, nu, Th], nu, M - MA, Min[J - MA, J + M]]

Qkl/: Qkl[beta, J] := Module[mk, MK, sum,
  sum=0; For[mk=-J, mk<=J, mk++, For[MK=-J, MK<=J, MK++,
  sum=sum+g[Abs[mk]]*d[J, mk, MK, beta]^2*Q[Abs[MK]]]];
  Collect[Collect[Collect[Collect[
  Expand[sum, Trig->True],
  Cos[beta]], Cos[2 beta]], Cos[4 beta]], Cos[6 beta]]]
```

Hierin zijn ingevuld de gereduceerde Wigner-d functies $d_{m_k M_k}^{J_k}(\beta)$. Alle gelijke *cos*-termen zijn bij elkaar opgeteld. Deze termen staan gegeven op de volgende bladzijde voor een $J_k = 3$ -niveau.

$$\begin{aligned}
{}^3C_0 &= \frac{1}{512} * [(136 * g_0 + 156 * g_1 + 120 * g_2 + 100 * g_3) * Q^{|0|} . \\
&\quad + (156 * g_0 + 398 * g_1 + 260 * g_2 + 210 * g_3) * Q^{|1|} . \\
&\quad + (120 * g_0 + 260 * g_1 + 392 * g_2 + 252 * g_3) * Q^{|2|} . \\
&\quad + (100 * g_0 + 210 * g_1 + 252 * g_2 + 462 * g_3) * Q^{|3|}] \\
{}^3C_1 &= \frac{1}{512} * [(156 * g_0 + 54 * g_1 - 60 * g_2 - 150 * g_3) * Q^{|0|} . \\
&\quad + (54 * g_0 + 271 * g_1 - 70 * g_2 - 255 * g_3) * Q^{|1|} . \\
&\quad + (-60 * g_0 - 70 * g_1 + 220 * g_2 - 90 * g_3) * Q^{|2|} . \\
&\quad + (-150 * g_0 - 255 * g_1 - 90 * g_2 + 495 * g_3) * Q^{|3|}] \\
{}^3C_2 &= \frac{1}{512} * [(120 * g_0 - 60 * g_1 - 120 * g_2 + 60 * g_3) * Q^{|0|} . \\
&\quad + (-60 * g_0 + 130 * g_1 - 100 * g_2 + 30 * g_3) * Q^{|1|} . \\
&\quad + (-120 * g_0 - 100 * g_1 + 376 * g_2 - 156 * g_3) * Q^{|2|} . \\
&\quad + (60 * g_0 + 30 * g_1 - 156 * g_2 + 66 * g_3) * Q^{|3|}] \\
{}^3C_3 &= \frac{1}{512} * [(100 * g_0 - 150 * g_1 + 60 * g_2 - 10 * g_3) * Q^{|0|} . \\
&\quad + (-150 * g_0 + 225 * g_1 - 90 * g_2 + 15 * g_3) * Q^{|1|} . \\
&\quad + (60 * g_0 - 90 * g_1 + 36 * g_2 - 6 * g_3) * Q^{|2|} . \\
&\quad + (-10 * g_0 + 15 * g_1 - 6 * g_2 + 1 * g_3) * Q^{|3|}]
\end{aligned} \tag{B.1}$$

Bij excitatie met lineair gepolariseerd licht, geldt $g_3 = 0$. Deze coëfficiënten kunnen we dus in onze situatie verwaarlozen.

Bijlage C

Relatieve fout in bundelfractie

De relatieve fout in de bundelfractie kan worden bepaald uit de meetfout van de signalen van metastabielen (df^*) en fotonen(df):

$$d(f - f^*) = \sqrt{(df)^2 + (df^*)^2} \quad (\text{C.1})$$

$$\frac{dr}{r} = \sqrt{\left(\frac{df^*}{f^*}\right)^2 + \left(\frac{d(f - f^*)}{(f - f^*)}\right)^2} \quad (\text{C.2})$$