

2 Experimenteller Aufbau

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine modulare Hochvakuumapparatur aufgebaut, die die Durchführung von unterschiedlichen Experimenten mit Kohlenstoffclustern in der Gasphase ermöglicht. Die zwei Varianten, die zum einen zur Messung der Mobilität von Kohlenstoffclustern in der Gasphase und zum anderen zur Untersuchung der Ladungstransferreaktion $C_{60} + Na(3p) \rightarrow C_{60}^- + Na^+$ eingesetzt wurden, werden in diesem Kapitel beschrieben. Weitere Varianten, die meist zur Charakterisierung von einzelnen Komponenten des Experimentes dienen, wie etwa der Clusterquelle oder der Ionenoptik, werden an gegebener Stelle vorgestellt. Im ersten Teil dieses Kapitels wird zunächst der Aufbau für die Mobilitätsmessungen beschrieben. Im zweiten Teil wird das Kreuzstrahlexperiment beschrieben, mit dem der Ladungstransfer untersucht wurde. Im dritten Teil wird außerdem der Zweimodenlaser vorgestellt, der zur Anregung des Natriums verwendet wurde.

2.1 Aufbau zur Untersuchung der Mobilität

In diesem Unterkapitel wird der Aufbau beschrieben, wie er zur Bestimmung der Mobilität von Kohlenstoffclusterionen verwendet wurde. Der Vergleich der experimentell bestimmten Mobilität mit theoretisch berechneten Mobilitäten für unterschiedliche Strukturisomere erlaubt es, Aussagen über die Geometrie der beobachteten Cluster zu treffen.

2.1.1 Überblick

In Abb. 2.1 wird eine Übersicht über den experimentellen Aufbau gegeben. In der linken Seite des Bildes ist die Clusterquelle zu sehen. Es handelt sich um eine Düsenstrahlexpansionsquelle nach Smalley [HLM83]. Die Kohlenstoffcluster passieren einen Skimmer und gelangen zwischen die Netze eines linearen Flugzeitmassenspektrometers (im folgenden auch kurz: TOF, *time of flight mass spectrometer*). Mittels eines 90°-Ablenkers können sie an einem Detektor nachgewiesen werden, der sich senkrecht zur Strahlachse befindet. Die Ionenpulse können direkt auf einem Oszilloskop beobachtet werden. Dies erlaubt es, die Clusterquelle einzustellen. Wird der 90°-Ablenker auf Massepotential geschaltet, gelangen die Ionen nach

Passieren eines Massenselektors in eine Ionenoptik, mit der die Cluster abgebremst und durch das Eingangsloch in eine mit Helium gefüllte Driftzelle fokussiert werden. Durch ein schwaches elektrisches Feld werden die Ionen durch die Driftzelle gezogen. Einige der Ionen treten durch das Austrittsloch der Driftzelle in ein Quadrupolmassenspektrometer ein und können dort massenselektiv nachgewiesen werden. Die einzelnen Komponenten werden nun im Detail vorgestellt.

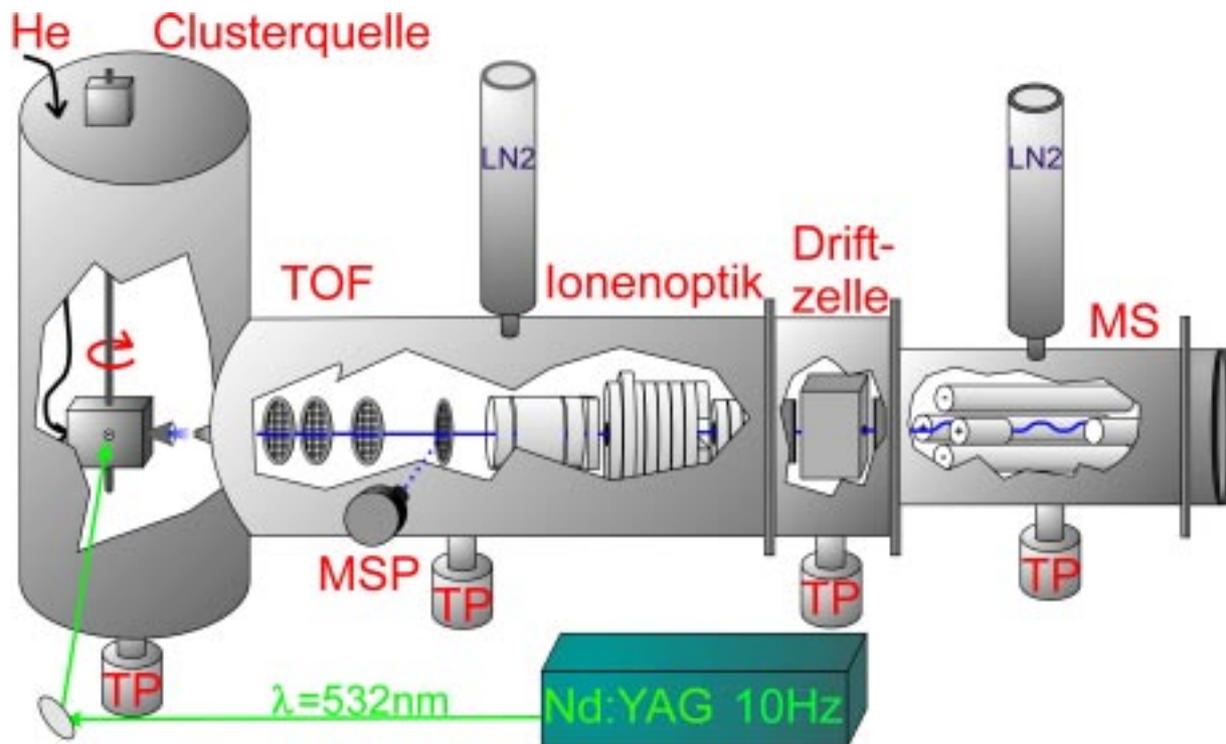


Abb. 2.1: In der linken Seite des Bildes ist die Quellkammer zu sehen, in die die 2. Harmonische ($\lambda = 532 \text{ nm}$) eines Nd:YAG-Lasers auf einen Graphitstab einfokussiert wird. Ein Helimpuls reißt das entstehende Plasma ins Vakuum, es entstehen Kohlenstoffcluster. In der sich anschließenden Kammer in der Bildmitte befindet sich ein Flugzeitmassenspektrometer (TOF). Ein 90° -Ablenker und ein MSP-Detektor erlauben den Nachweis der Clusterionen. Entlang der Strahlachse folgt eine Ionenoptik zum Abbremsen und Fokussieren der Ionen in die Driftzelle, die sich in einer differentiell gepumpten, separaten Kammer befindet. Zum Ionennachweis dient ein Quadrupolmassenspektrometer (MS), das sich in der rechten Kammer befindet. An jeder der vier Kammern befindet sich eine Turbopumpe (TP), an zwei Kammern sind Kühlfallen angebracht (LN2).

2.1.2 Vakuumsystem

Die Apparatur besteht aus insgesamt vier Vakuumkammern, die linear angeordnet sind. Die Quellkammer ist ein modifiziertes KF250 T-Stück und ist fest montiert. Die übrigen Kammern, also die TOF-, die Drift- und die Quadrupolkammer, sind kugelgelagert auf einem Schienensystem verschiebbar aufgebaut. Dies ermöglicht das Öffnen der Apparatur an jeder beliebigen Stelle sowie auch das Herausnehmen oder Hinzufügen von Kammern.

Alle Kammern werden von Turbomolekularpumpen der Firma Balzers evakuiert. An der Quellkammer wird eine TPU 240 Pumpe mit einem Saugvermögen von 300 l/s für Helium in Kombination mit einer Pascal 2015 SD Vorpumpe der Firma Alcatel (15 m³/h Saugvermögen) eingesetzt. An der TOF-Kammer ist es eine TPH 190 Pumpe (160 l/s für Helium, Vorpumpe: Balzers DUO08, 8 m³/h), an der Driftkammer wird eine TMU 260 Pumpe mit einem hohen Kompressionsverhältnis und einer Saugleistung von 300 l/s für Helium mit einer ölfreien Membranpumpe (Balzers MD4 mit 3,3 m³/h Saugvermögen) eingesetzt, für die ein Dauerbetrieb auch bei hohen Drücken bis zu 10⁻³ mbar möglich ist. An der Quadrupolkammer, die das kleinste Volumen hat, wird die größte Pumpe eingesetzt, eine TPH 520 Pumpe mit einem Saugvermögen von 400 l/s für Helium (mit einer Balzers DUO16 Vorpumpe, 16 m³/h). Diese Verteilung der Pumpen ist am günstigsten bei dem hohen Gasballast aus der Driftzelle und aus der Quelle.

Die Driftkammer wird sowohl von der Quadrupol- als auch von der TOF-Kammer durch Druckstufen getrennt. Dabei handelt es sich um Blenden mit jeweils 2 mm großen Öffnungen, die ein differentielles Pumpen der unterschiedlichen Kammern erlauben. Die Blenden sind elektrisch isoliert und können auf Potential gelegt werden, was für die Ionenführung entscheidend ist.

Ohne Gasballast wird so ein Druck von $1 \cdot 10^{-8}$ mbar in der Quadrupolkammer erreicht, in den übrigen Kammern liegt der Druck um $5 \cdot 10^{-7}$ mbar.

Der Druck in der Quellkammer wird mit einem Full-Range-Druckmeßgerät (Balzers, PKR250) bestimmt, an den übrigen Kammern mit Ionisationsmeßröhren (Tectra), die von einem Granville Phillips Controller ausgelesen werden. Der Druck in der Driftzelle wird direkt gemessen, und zwar kapazitiv mit einem ACR262 von Balzers.

In der beschriebenen Konfiguration ist ein Druck bis zu 1 mbar Helium in der Driftzelle erfolgreich realisiert worden. In diesem Fall liegt der (auf Helium korrigierte) Druck in der Quadrupolkammer bei $1 \cdot 10^{-5}$ mbar. Ein höherer Druck sollte nicht im Dauerbetrieb einge-

setzt werden, da dies die Lebensdauer des Detektors am Quadrupol, eines Channeltrons, stark verkürzen würde.

2.1.3 Clusterquelle

Das Herzstück dieses Aufbaus stellt die Kohlenstoffclusterquelle dar. Sie funktioniert nach dem Prinzip der Düsenstrahlexpansion. Diese Art von Quelle wurde auch von Smalley, Kroto und Curl in ihrem Experiment verwendet, das zur Entdeckung der Fullerene führte [KHB85]. Smalley hatte diese Quelle zuvor entwickelt [HLM83] und für Experimente an Siliziumclustern eingesetzt. Im Gegensatz zu den Entdeckern der Fullerene werden die entstehenden Kohlenstoffcluster in dem vorliegenden Experiment jedoch nicht nachionisiert, sondern nur die bereits ionisiert vorliegenden Cluster für die weitere Untersuchung genutzt. Der Vorteil dieser Vorgehensweise liegt darin, daß kein zusätzlicher Ionisationslaser notwendig ist. Außerdem werden die Cluster im Mittel kälter sein, da sie während der Düsenstrahlexpansion abkühlen und nicht mehr durch einen Ionisationslaser aufgeheizt werden. Von Nachteil ist, daß die Signalintensität unter Umständen geringer ist, da die meisten sich bildenden Cluster neutral sind. Negative Clusterionen können jedoch auf diese Weise auch ohne weiteres untersucht werden. Die hier vorgestellten Untersuchungen beschränken sich fast ausschließlich auf positive Cluster, da höhere Signalintensitäten erreicht werden und der Nachweis einfacher ist.

Die Kohlenstoffclusterquelle wurde im Rahmen einer Diplomarbeit konzipiert und aufgebaut [Tha97]. Inzwischen ist die Quelle sehr viel besser charakterisiert worden. Das Studium der Quelle erlaubt auch einige interessante Einblicke in die Eigenschaften sowie den Bildungsmechanismus der Fullerene. Daher wird ein folgendes Kapitel den vielfältigen Untersuchungen der Quelle gewidmet.

Die Quelle funktioniert wie folgt: Ein Laser wird auf einen Graphitstab fokussiert und ablatiert dort Kohlenstoff. Das entstehende heiße Plasma wird von einem Trägergaspuls mitgerissen und expandiert nach Passieren eines Düsenkanals ins Vakuum. Ein gleichzeitig als differentielle Druckstufe dienender Skimmer extrahiert einen Molekularstrahl aus dem expandierenden Gaspuls. Um möglichst stabile Bedingungen zu erreichen, wird der Graphitstab mit Hilfe eines außerhalb der Vakuumkammer angebrachten Schrittmotors (Robotron) gedreht. Der Graphitstab vollzieht eine schraubenförmige Bewegung. Ein Richtungsumschalter ändert die Drehrichtung des Schrittmotors am oberen bzw. unteren Umkehrpunkt. Die effektive Länge des Graphitstabs, von der ablatiert wird, beträgt so etwa 5 cm. Es wird Graphit hoher

Reinheit verwendet (Verunreinigungen < 1 ppm nach Herstellerangaben, EK98 der Firma SGL Carbon). Wie in der Abb. 2.2 angedeutet, ist die Düse mit ihrer Halterung von außen justierbar an drei Punkten befestigt. So ist es möglich, unter Vakuum durch Einstellen der Justierschrauben eine optimale Ausrichtung der Düse zum Skimmer einzustellen. Durch eine Federkupplung ist gewährleistet, daß die translatorische Drehbewegung des Schrittmotors auf den Graphitstab übertragen wird.

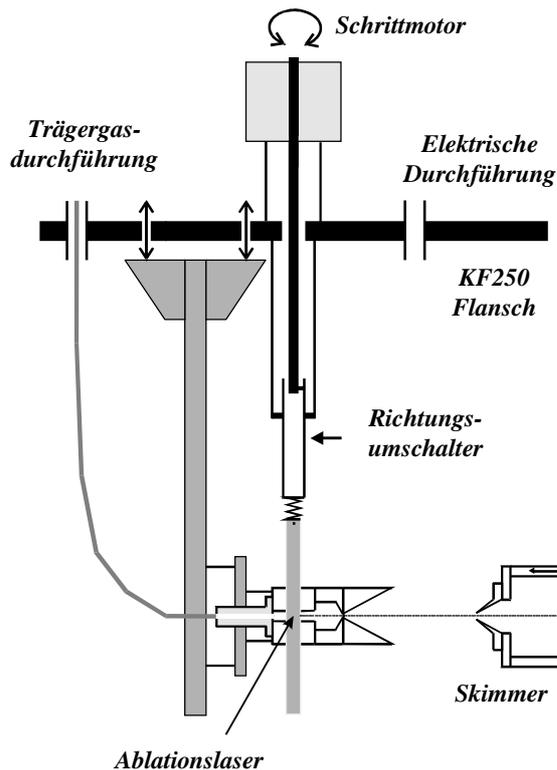


Abb. 2.2: Die Clusterquelle ist komplett an einem KF250-Flansch befestigt aufgebaut und kann von außen mit drei Justierschrauben ausgerichtet werden (durch zwei Doppelpfeile angedeutet). Der Graphitstab wird von einem außen angebrachten Schrittmotor gedreht.

Die Länge des Düsenkanals kann durch zwei Verlängerungsstücke von 15 bzw. 30 mm Länge variiert werden. Die Skimmerposition ist auch darüber hinaus variabel einstellbar (± 50 mm). Der Düsenkanal hat einen Durchmesser von 2 mm, die Verlängerungsstücke haben jeweils einen Durchmesser von 4 mm, der sich jedoch auf 2 mm am Ausgang hin verjüngt. Der Graphitstab ragt ein wenig in den Düsenkanal hinein. Der Lasereinschußkanal ist offen: Eine Glasscheibe belegt sich zu schnell mit Graphit und wird dann durch den fokussierten Laserstrahl angegriffen und erblindet. Auch das Einschußfenster für den Laserstrahl in die Vakuumapparatur wird mit Graphit bedampft und muß in regelmäßigen Abständen gereinigt werden. Der Aufbau des Düsenkanals ist im Detail in Abb. 2.3 zu sehen. Auf die genannten Verlängerungsstücke, die ein vermehrtes Clusterwachstum begünstigen, wurde bei den hier vorgestellten Messungen verzichtet (soweit nicht explizit anders angegeben).

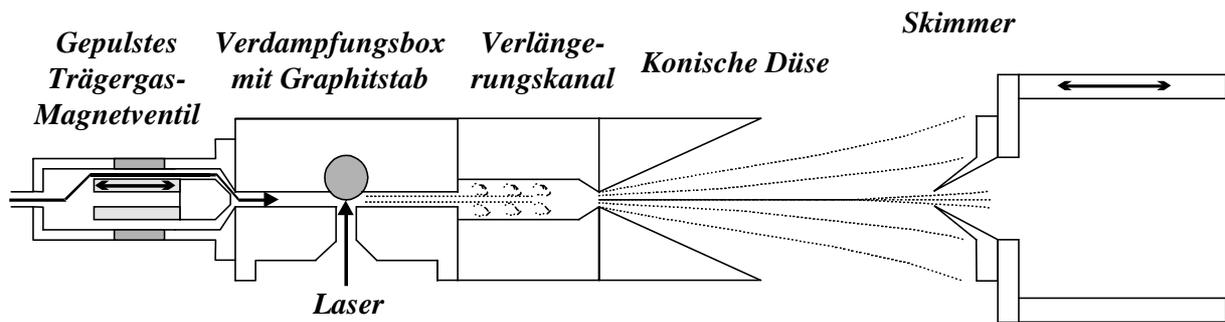


Abb. 2.3: Der Ablationslaser trifft unter einem Winkel von 90° zum Düsenkanal auf den Graphitstab, der ein wenig in den Kanal hineinragt. Das Helium strömt aus dem gepulst arbeitenden Ventil in den Düsenkanal und expandiert ins Vakuum. Der Düsenkanal kann verlängert werden, um ein vermehres Clusterwachstum zu begünstigen. Der Skimmer extrahiert den Molekularstrahl und dient als differentielle Druckstufe.

Es standen Skimmer unterschiedlichen Lochdurchmessers zur Verfügung. Für die vorgestellten massenspektrometrischen Ergebnisse wurde ein Skimmer von 2 mm Lochdurchmesser verwendet. Bei den Mobilitätsmessungen betrug der Lochdurchmesser dagegen 3 mm. Der Abstand von Skimmer und Düse lag zwischen 10 und 50 mm, hat sich aber nicht als ein kritischer Parameter erwiesen.

Der gesamte Aufbau der Quelle hängt an einem KF250 Flansch und ist sehr kompakt. Wartungsarbeiten lassen sich leicht und schnell durchführen, weil dazu einfach der Flansch mit der Quelle aus der Vakuumkammer herausgehoben werden kann.

Für die Ablation wurde vorwiegend die 2. Harmonische ($\lambda=532$ nm) eines Nd:YAG Lasers verwendet. Versuche mit einem Excimer-Laser ($\lambda=308$ nm), der Grundwellenlänge des Nd:YAGs von 1064 nm bzw. der 3. Harmonischen von 266 nm wurden in [Tha97] beschrieben. Bereits Pulsenergien von 1 mJ reichen aus, um Kohlenstoffcluster zu produzieren, optimale Bedingungen findet man – je nach gewünschter Clustergröße – bei etwa 8-10 mJ Pulsenergie. Typische Laserfluenzen liegen in diesem Fall bei $0,5\text{--}1$ J/cm². Das Laserlicht wird mittels einer Linse mit 50 cm Brennweite auf den Graphitstab fokussiert. Mit einem Fernglas kann die Position des Laserflecks beobachtet werden, um die Justage zu erleichtern.

Als Trägergas wurde in der Regel Helium verwendet (mit einer Reinheit von 99,999%). Als Druck wurde meist 1 bar eingestellt. Höhere oder auch niedrigere Drücke können dann zu ähnlichen Ergebnissen führen, wenn die Öffnungszeit der Düse (General Valve) entsprechend verkürzt oder verlängert wird.

Aufgrund des Gasballastes der Quelle ist es nicht möglich, hohe Repetitionsraten zu erreichen. Eine Repetitionsrate von 10 Hz, der maximalen Repetitionsrate des in diesem Experiment eingesetzten Nd:YAG Lasers, war jedoch möglich. Unter Betriebsbedingungen wurde so ein Druck von etwa $8 \cdot 10^{-5}$ mbar in der Querkammer und $1 \cdot 10^{-6}$ mbar in der nachfolgenden Kammer hinter dem Skimmer erreicht.

Die Ansteuerung der einzelnen Komponenten der Quelle sowie der gepulsten Netzspannungen des Flugzeitmassenspektrometers erfolgt durch TTL-Pulse, deren jeweilige Verzögerungszeiten durch eine Verzögerungseinheit eingestellt werden können. In Abb. 2.4 wird schematisch erläutert, in welchem zeitlichen Zusammenhang die einzelnen Verzögerungszeiten zueinander stehen. Die Düse muß als erstes geöffnet werden, da das Trägergas eine gewisse Zeit braucht, um den Graphitstab im Düsenkanal zu erreichen. Der Laserschuß des ablatierenden Lasers erfolgt etwa zu dem Zeitpunkt, an dem der Gaspuls sein Maximum erreicht. Die Hochspannungen an den Netzelektroden des Flugzeitmassenspektrometers werden als letztes getriggert. Dieser Trigger wird auch für das Datenaufnahmesystem verwendet. Typische experimentelle Einstellungen sind angegeben. Im Experiment wurden nur die Verzögerungszeiten der Düsenöffnung und des TOF-Triggers variiert, der Triggerzeitpunkt des Lasers wurde konstant belassen. Wesentlich sind nur die relativen Verzögerungszeiten zwischen Düse und Laser sowie zwischen Laser und dem Abzugspuls am TOF.

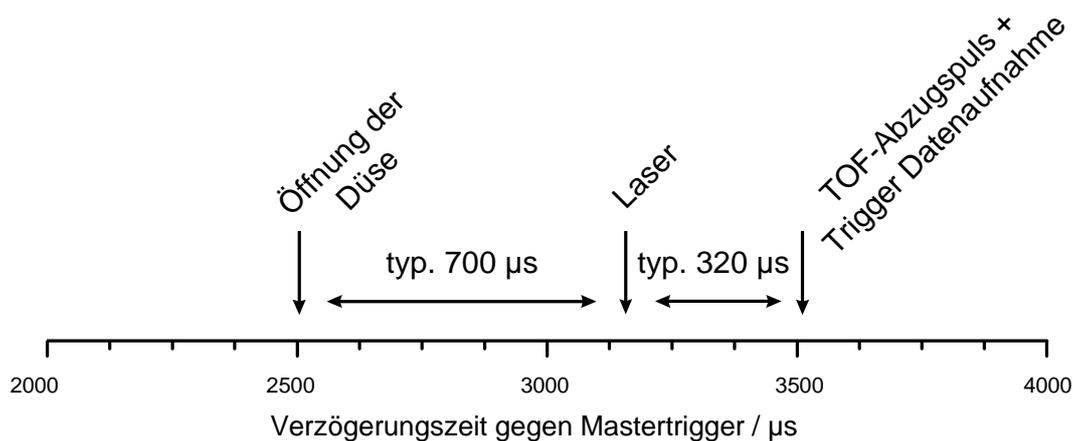


Abb. 2.4: Die Abbildung zeigt schematisch die zeitlichen Abhängigkeiten zwischen den unterschiedlichen Verzögerungszeiten im Experiment (für Helium als Trägergas). Die Verzögerungszeit gegen den Mastertrigger hat keine experimentelle Relevanz und ist nur als Referenz angegeben.

Zwei Parameter der Quelle sind von entscheidender Bedeutung für die entstehende Größenverteilung der Kohlenstoffcluster. Dies ist die Position des ablatierenden Laserpulses auf dem Graphitstab und die Laserfluenz, also die Laserenergie pro Fläche im Fokus. Eine höhere Fluenz begünstigt bei ansonsten konstanten Parametern das Entstehen kleinerer Cluster, eine geringere Fluenz führt zu mehr Fullerenen. Dies wird noch weiter ausgeführt.

Die Stabilität der Quelle wird nach dem Einschalten zunächst von Aufwärmeeffekten des Lasers beeinträchtigt. Außerdem zeigte sich, daß nach dem Einsetzen eines neuen Graphitstabes zunächst die oberste Graphitschicht ablatiert werden muß, bevor ein stabiler Betrieb möglich ist. Die Langzeitstabilität wird durch Graphit- und Rußablagerungen im Düsenkanal sowie an dem Einschußfenster begrenzt. Experimentell beobachtet man auf einer Zeitskala von Stunden eine Verschiebung der mittleren Clustergröße $\langle n \rangle$ zu etwas kleineren Werten hin, die durch Anpassung der Verzögerungszeiten kompensiert werden kann.

Nach einer Betriebsdauer von etwa 30 Stunden empfiehlt es sich, den Düsenkanal und das Einschußfenster zu reinigen. In der Regel hat sich der Düsenkanal zu diesem Zeitpunkt bereits zu einem Drittel mit einer harten Rußablagerung zugesetzt, die – wie ein Lösungsversuch in Toluol ergab – zumindest keine größeren Mengen an Fullerenen enthalten. Beim Arbeiten mit höheren Laserenergien setzt sich der Kanal schneller zu, die eingangs erwähnten 8-10 mJ haben sich als optimaler Kompromiß erwiesen. Das Arbeiten mit höheren Trägergasdrücken als 1 bar führt zu einer wesentlich schnelleren Beschichtung des Einschußfensters, so daß sich eine Reinigung bereits nach kürzerer Betriebsdauer empfiehlt. Dies erklärt sich darin, daß unter diesen Bedingungen auch durch den Lasereinschußkanal eine Düsenstrahlexpansion stattfindet.

2.1.4 Flugzeitmassenspektrometer

Der entscheidende Vorteil eines Flugzeitmassenspektrometers besteht darin, daß in einem Spektrum die gesamte Clusterverteilung erhalten werden kann. Das Quadrupolmassenspektrometer (im folgenden auch kurz: Quadrupol) ist aufgrund seiner geringen maximalen Massengeschwindigkeit dafür ungeeignet. Der Clusterpuls aus der Quelle hat eine zeitliche Länge von Größenordnung $100 \mu\text{s}$, die maximale Scangeschwindigkeit des Quadrupols beträgt 1000 u/s , also $0,1 \text{ u}/100 \mu\text{s}$. Da die Quelle gepulst arbeitet, gelangt bei der Aufnahme eines Massenspektrums mit dem Quadrupol nur ein kleiner Bruchteil der Ionen bis zum Detektor, die meisten Ionen erreichen das Quadrupol zu Zeiten, zu der nur andere Massen durch-

gelassen werden. Trotzdem konnten Massenspektren auch mit dem Quadrupol aufgenommen werden, bei entsprechend längerer Meßzeit (siehe [Neu98]).

Das Flugzeitmassenspektrometer wurde nach dem Prinzip von Wiley und McLaren [WiM55] aufgebaut. Die drei Netzelektroden hatten einen Abstand von 15 mm zwischen den vorderen beiden Netzen und 66 mm zwischen den hinteren beiden Netzen. Das Feld zwischen den hinteren beiden Netzen wurde durch vier Potentialringe homogenisiert. Die Spannungspulse wurden mit Hochspannungsschaltern (Behlke HTS 51) erzeugt.

Für manche Versuche zur Charakterisierung der Quelle wurde ein Ionendetektor direkt in den Strahlengang gebracht. Als Ionendetektor wurde entweder ein MCP (*microchannel plate*) oder ein MSP (*microsphere plate*) verwendet. Details zu den Detektoren können z. B. in [Neu98] oder [Ebe99] gefunden werden. Die Nachweiswahrscheinlichkeit von MCPs für Ionen unterschiedlicher Masse ist z. B. von [Ehl94], [Spr96], [Roh97], [CUH90], [ZMN94] untersucht worden.

Normalerweise aber wurden die Ionen um 90° abgelenkt und von einem Detektor senkrecht zur Ionenstrahlachse nachgewiesen. Als einfache Lösung hat sich für die Ablenkung der Ionen um 90° ein Netz erwiesen, das unter 45° zur Strahlachse geneigt ist und auf ein Potential gelegt wurde, das in etwa der Ionenenergie entsprach. Für Kationen einer mittleren Energie von 1900 eV war dies z. B. 2000 V.

Als entscheidende Verbesserung des bislang beschriebenen Aufbaus hat sich die Verwendung eines zusätzlichen Netzes vor dem TOF erwiesen. Mit Hilfe dieses Extraktionsnetzes, das auf ein konstantes Potential gelegt wurde, konnte der Clusterstrahl nach Passieren des Skimmers räumlich zusammengezogen werden, so daß mehr Cluster zwischen die Abzugsnetze gelangten (zu einer entsprechend früheren Zeit). Für positive Cluster haben sich Extraktionsspannungen von -10 bis -40 V als sinnvoll erwiesen. Ein weiterer positiver Effekt der Vorselektion der Cluster mit Hilfe der Extraktionsspannung liegt darin, daß die Größenverteilung der Cluster, die durch den anschließenden Spannungspuls am TOF abgezogen wurden, gezielt beeinflußt werden konnte. Auf diese Weise war es möglich, die Intensität für eine gegebene Clustergröße erheblich zu steigern – ganz entscheidend für die Messungen der Mobilität mit der Driftzelle.

Das Flugzeitmassenspektrometer erlaubt es außerdem, Cluster eines gegebenen Ladungs- zu Masseverhältnisses q_e/m aus dem Clusterstrahl zu selektieren. Dies geschieht mit Hilfe eines Massenselektors, der sich hinter dem 90° -Ablenknetz befindet. Der Massenselektor besteht

aus zwei Blenden mit jeweils 10 mm Lochdurchmesser, zwischen denen ein Draht gespannt ist. Wird dieser Draht auf ein Potential gelegt, so werden die Ionen aus dem Strahl abgelenkt und gelangen nicht bis zur Driftzelle. Mit Hilfe eines Gegentaktschalters (Eigenbau der Universität Freiburg) kann der Draht kurzzeitig (typisch 1-2 μs lang) auf Massepotential gelegt werden. Während dieser Zeit können Ionen unabgelenkt passieren. Bei geeigneter Wahl der Abzugsspannungen am TOF und der Verzögerungszeit für den Gegentaktschalter können so Ionen nur einer Clustergröße passieren (wenn nur einfach geladene Cluster vorliegen). Die Einstellung läßt sich mit dem Quadrupol kontrollieren.

2.1.5 Quadrupolmassenspektrometer

Für die Messungen wurde ein Quadrupolmassenspektrometer der Firma Extrel eingesetzt (1,2 MHz, 3/8 Zoll). In Abb. 2.5 ist der Aufbau des Quadrupols zu sehen. Als Ionendetektor kam ein Channeltron mit einer Konversionsdynode zum Einsatz.

Zur optimalen Einstellung der Parameter des Quadrupols wurden durch Elektronenstoßionisation Ionen erzeugt und massenselektiv nachgewiesen. Neben der Restgasionisation wurde die Eichsubstanz PFTA (Perfluortributylamin) oder auch C_{60} zur Optimierung der Einstellungen des Quadrupols eingesetzt (vgl. [Neu98], [Ebe99]).

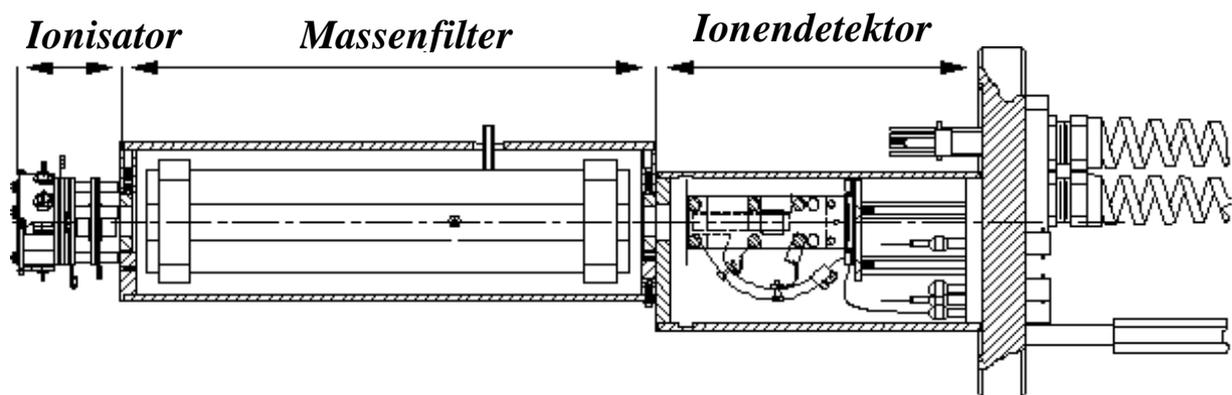


Abb. 2.5: Das Quadrupolmassenspektrometer besteht aus drei Teilen: einem Ionisator, der Elektronenstoßionisation ermöglicht, dem eigentlichen Quadrupolmassenfilter und dem Ionendetektor, einem Channeltron mit einer Konversionsdynode (Zeichnung: Extrel Inc.).

Neben den Einstellungen der Ionenoptik vor dem Quadrupolmassenfilter ist das Bezugspotential des Massenfilters ein wichtiger Parameter. Zur optimalen Massenselektion sollen die Ionen beim Passieren des Massenfilters eine Energie von 5-10 eV haben. Sollen mit dem Quadrupol Ionen nachgewiesen werden, die nicht im Ionisatorbereich durch Stoßionisation erzeugt wurden, so können durch die Anpassung des Bezugspotentials die in der Regel höherenergetischen Ionen abgebremst werden.

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen zur Mobilität von Kohlenstoffclustern und zum Ladungstransfer ist es nicht erforderlich, eine besonders gute Auflösung zu haben. Es ist nur wichtig, die einzelnen Kohlenstoffclustermassen zu trennen. Eine Auflösung der einzelnen ^{13}C -Isotope der Kohlenstoffcluster ist für die gemachten Untersuchungen nicht von Bedeutung.

2.1.6 Ionenoptik

Die Aufgabe der Ionenoptik besteht darin, die Clusterionen abzubremsen und in die Driftzelle hineinzufokussieren. Will man Isomerisierungsreaktionen vermeiden, also Reaktionen, bei denen sich weniger stabile Strukturisomere in stabilere Formen umwandeln, so sollte die Eintrittsenergie der Ionen in die Driftzelle nicht größer als etwa 20 eV sein [JaB92], [HFR94].

In einer ersten Ausbaustufe wurde eine modifizierte Heddlekonfiguration eingesetzt [Hed71]. Für die Zukunft ist eine Anordnung nach Gustafsson und Lindholm vorgesehen [Bat62]. Die unterschiedlichen Anordnungen wurden alle mit dem Simulationsprogramm SIMION 3D (INEL, Idaho) in der aktuellen Version 6.0 untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchung sind bereits ausführlich beschrieben worden [Neu98], so daß an dieser Stelle nur auf die wesentlichen Punkte eingegangen wird. Die Simulationen wurden für das gesamte System von TOF, Ionenoptik und Driftzelle insbesondere auch unter Berücksichtigung der Kammerwände durchgeführt, da eine Vernachlässigung dieser Randbedingungen zu deutlichen Abweichungen führt.

Die Heddlekonfiguration besteht aus einem Doppellinsensystem und ist leicht zu realisieren. Es gibt weniger freie Parameter als in dem Aufbau nach Gustafsson und Lindholm. Der Teleskopaufbau eignet sich aber nicht für die Fokussierung der Ionen, sondern nur zu ihrer Abbremsung. Deshalb wurde das Linsensystem modifiziert, wie es in Abb. 2.1 zu sehen ist. Insbesondere befinden sich hier in der Mitte der Anordnung zwei Ablenkerpaare, also insgesamt vier Metallplatten, die individuell auf unterschiedliches Potential gelegt werden können. Ent-

sprechende Ablenker befinden sich auch direkt im Anschluß an die Abzugsnetze des TOFs. Die Ablenker sind experimentell besonders relevant, in der Simulation spielen sie dagegen eine untergeordnete Rolle.

In Abb. 2.6 wird das Verhalten von Ionen simuliert, die mit einer kinetischen Energie von 200 eV in die Ionenoptik eintreten und auf 20 eV abgebremst werden.

Die Ionenoptik nach Gustafsson und Lindholm besteht aus insgesamt 13 Elementen. Darunter befinden sich auch horizontale und vertikale Ablenker. Nicht alle Elemente werden unabhängig voneinander auf Potential gelegt, einige sind über Spannungsteilerketten miteinander gekoppelt. In der Abb. 2.7 ist zu sehen, wie sich die Flugbahnen der Ionen mit einer kinetischen Energie von 100 eV in dieser Ionenoptik verhalten.

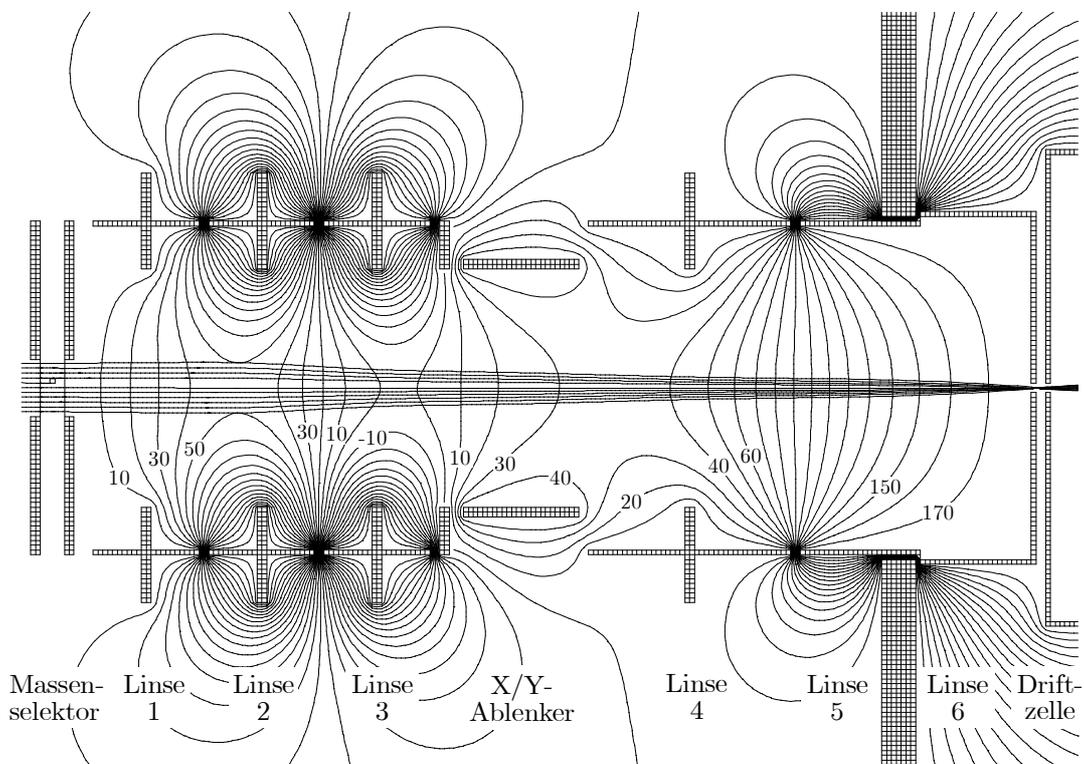


Abb. 2.6: In der SIMION Simulation wird das Verhalten von Ionen gezeigt, die mit einer kinetischen Energie von 200 eV in die Ionenoptik eintreten und auf 10% ihrer ursprünglichen Energie abgebremst werden. Die Potentiale sind wie folgt: Linse 1: 0 V, Linse 2: 200 V, Linse 3: -150 V, X/Y-Ablenker: je auf 50 V hochgelegt, Linse 4: 0 V, Linse 5, 6 und Driftzelleneingang: 180 V. Diese Anordnung wurde während der Mobilitätsmessungen eingesetzt.

Die Ionenflugbahnen im Experiment können nicht direkt beobachtet werden. Einen Hinweis auf die Güte der Potentialeinstellungen gibt allein, ob ein Ionensignal an einem entsprechend platzierten Detektor nachgewiesen werden kann. Um die Ionenoptik zu testen, wurde ein Ionendetektor hinter die Eintrittsblende der Driftzelle positioniert. Auf diese Weise konnte untersucht werden, wie gut die Ionen in die Driftzelle hineinfokussiert wurden. Es hat sich in allen Fällen eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den simulierten Werten und den experimentell gefundenen ergeben.

Ein direktes Messen der Ionenströme, etwa auf der Eintrittsblende der Driftzelle, hat sich leider bei den niederenergetischen Ionen nicht als möglich erwiesen. Die Repetitionsrate von 10 Hz ist dafür zu klein. Eine solche Messung hätte ein komplementäres Vorgehen erlaubt, nämlich die Ionen durch eine Minimierung des Ionenstroms auf der Eintrittsblende in die Driftzelle zu fokussieren.

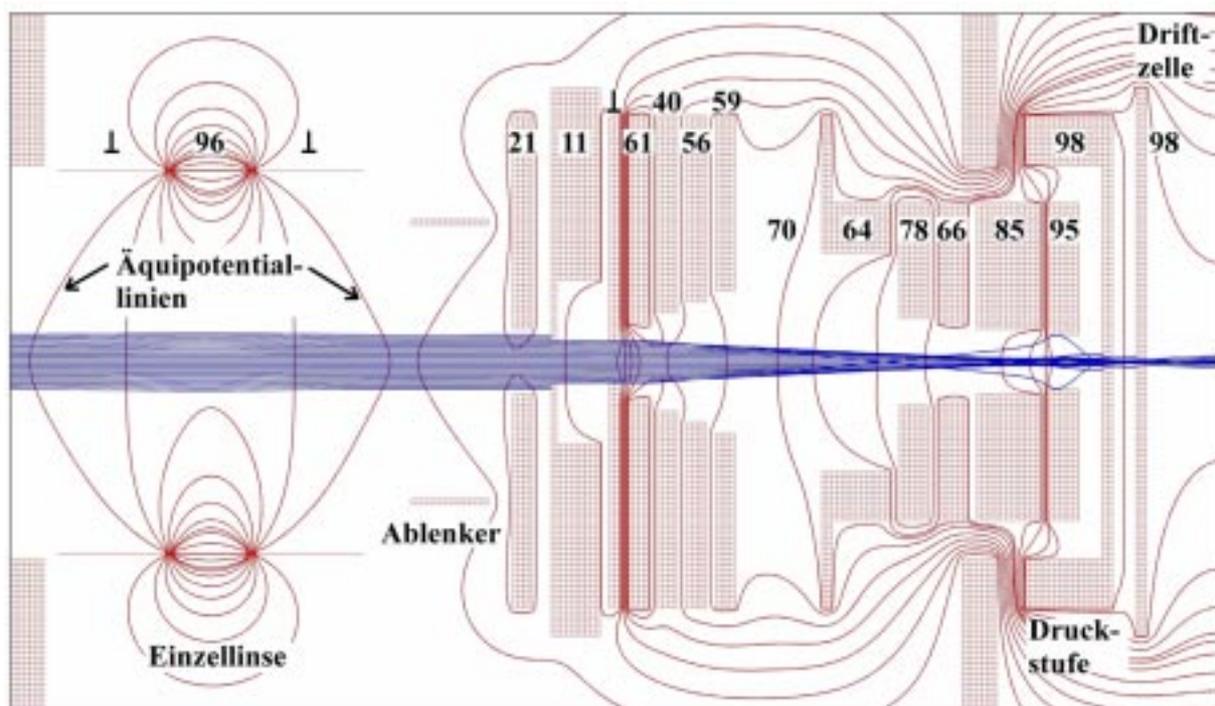


Abb. 2.7: SIMION Simulation von Ionen mit einer Energie von 100 eV in der Abbremsionenoptik nach Gustafsson und Lindholm. Die Ionen werden auf 2% ihrer ursprünglichen Energie abgebremst. Angegeben sind die Potentiale in Volt.

2.1.7 Driftzelle

Die Driftzelle hat eine Gesamtlänge von 10 cm. Sie wurde aus einem Quader gefertigt und ist innen zylindrisch hohl. Zwei Abdeckkappen aus elektrisch isolierendem Material halten die Ein- und die Austrittsblende. Diese sind aus 0,2 mm dünnem Molybdänblech gefertigt; das Eintrittsloch hat 1 mm Durchmesser, das Austrittsloch 0,5 mm. In der Driftzelle befinden sich sechs Potentialringe, die über eine Widerstandskette miteinander verbunden sind. Die Potentialringe werden mit isolierenden Halteringen über Stangen miteinander verbunden. Die Stangen passen in vorgesehene Bohrungen in den Abdeckkappen und werden von außen verschraubt. Die Abdeckkappen werden ebenso wie die Ein- und Austrittsblende mit Gummiringen abgedichtet, so daß die Driftzelle gegen ein Ausströmen von Helium (außer durch das Ein- und Austrittsloch) abgedichtet ist. Zwei mittig angeordnete Schlauchanschlüsse erlauben die Heliumgaszufuhr und das Messen des Drucks in der Driftzelle.

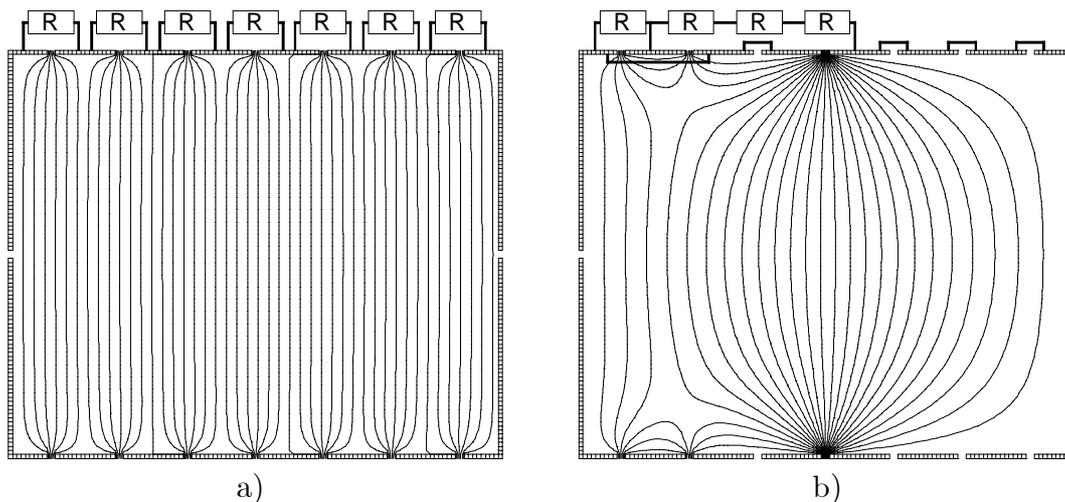


Abb. 2.8: Potentialverlauf in der Driftzelle für zwei unterschiedliche Beschaltungen der Ringelektroden. Im Fall a) wird entlang der Strahlachse ein sehr homogenes Feld erzeugt. In b) wird eine leichte Fokussierung erreicht, die positive Auswirkung auf die Ionenausbeute hat.

Eine Skizze der Driftzelle ist in Abb. 2.8 zu sehen. Es werden zwei Potentialverläufe in der Driftzelle gezeigt. Wie eine Untersuchung mit dem im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Simulationsprogramm SIMION ergeben hat, ist es von Vorteil, die Widerstände nicht ganz symmetrisch zu verteilen, weil dadurch eine leicht fokussierende Linsenwirkung mit positiven Auswirkungen auf die Ionenausbeute erreicht wird [GvH97].

Die Driftzelle wird auf zwei Schienen in der Vakuumkammer befestigt. Die Position wird durch die vier Halteschrauben mit Feingewinde einjustiert. Als Referenz dient dazu ein He-Ne Laserstrahl, der vor dem Einbringen der Driftzelle so justiert wird, daß er auf der durch die beiden Druckstufen festgelegten Strahlachse liegt. Die Driftzelle kann außerdem auf der Seite des Quadrupols mit Hilfe einer Vakuumschiebedurchführung leicht verkippt werden, so daß die Ausrichtung der Driftzelle anhand des Ionensignals noch weiter optimiert werden kann.

Die elektrische Kontaktierung erfolgt mittels zweier Kupferbleche. Auf der Austrittsseite ist ein Kupferblech fest an der Abdeckkappe montiert, auf der Eintrittsseite der Driftzelle dagegen befindet sich die Kontaktierung an der Druckstufe. Auf diese Weise ist es möglich, die Driftzelle reproduzierbar im gleichen Abstand zur Druckstufe einzusetzen. Die Driftzelle befindet sich dann in ihrer Position, wenn das Kupferblech die vordere Eintrittsblende berührt und somit den elektrischen Kontakt herstellt.

Die Reinheit des Gases, durch das die Ionen driften, ist von hoher Bedeutung, da die Cluster sehr reaktiv sind. Für die Versuche wurde deshalb Helium höchster Reinheit verwendet (Helium 6.0 mit einer Reinheit von 99,9999%). Das Helium wird durch ein feines Leckventil eingelassen, das einen konstanten Fluß gewährleistet.

2.1.8 Datenaufnahme

Für die Datenaufnahme wurde entweder ein Speicheroszilloskop (LeCroy 9310) verwendet, das vorwiegend für die Aufnahme der Flugzeitmassenspektren eingesetzt wurde. Außerdem stand ein Vielkanalzähler der Firma FAST zur Verfügung. Die minimale Kanalbreite betrug dabei 125 ns. Der Vielkanalzähler wurde vornehmlich für die Messungen mit dem Quadrupol verwendet. Die Ionensignale wurden dabei am Diskriminatorausgang des Vorverstärkers abgegriffen.

2.1.9 Zusammenfassung der Quellparameter

In diesem Unterkapitel wurde der experimentelle Aufbau beschrieben, wie er für die Messung der Mobilität von Kohlenstoffclustern verwendet wurde. Die Kohlenstoffclusterquelle ist ein wesentliches Element dieser Apparatur. Unterschiedliche Parameter erlauben es, die Clusterverteilung zu beeinflussen. Zunächst einmal ist dies das Trägergas. Verschiedene Gase können verwendet werden, selbst ohne Trägergas können Kohlenstoffcluster produziert werden. Der

Druck des Trägergases kann variiert werden, ebenso die Düsenöffnungszeit. Der Ablationslaser ist von ebenso wichtiger Bedeutung. Hier können die Wellenlänge und die Fluenz variiert werden.

Der Abstand zwischen Düse und Skimmer sowie die Verlängerungsstücke des Düsenkanals bieten weitere Variationsmöglichkeiten. Für den Nachweis der ionisiert vorliegenden Cluster hat sich ein Extraktionsnetz vor dem TOF bewährt.

Welchen Einfluß die einzelnen Quellparameter haben, wird in dem Kapitel über die massenspektrometrischen Untersuchungen der Kohlenstoffcluster behandelt.

2.2 Aufbau zur Untersuchung des Ladungstransfers

Zur Untersuchung der Ladungstransferreaktion $C_{60} + Na(3p) \rightarrow C_{60}^{-} + Na^{+}$ wurde ein Kreuzstrahlexperiment durchgeführt. Die Kohlenstoffclusterquelle entfiel für dieses Experiment. Als C_{60} -Quelle diente ein kleiner Ofen. Außerdem wurde das Quadrupolmassenspektrometer um 90° versetzt, so daß es an der Stelle des MSPs zum Einsatz kam. Der Natriumofen befand sich an der Stelle der Driftzelle. Eine schematische Skizze zeigt Abb. 2.9. Das Natrium wurde in diesem Experiment von einem Zweimodenzlaser angeregt, der im Anschluß genauer beschrieben wird.

Die Kammer mit dem Natriumofen und die Kammer mit dem C_{60} -Ofen sind durch eine eingeschweißte Stahlplatte mit einem zentralen Loch unterteilt. Hierauf wurde eine beheizbare Blende zur Strahlbegrenzung des Natriumstrahls aufgesetzt. Die Quadrupolkammer war durch ein Handventil mit den übrigen Kammern verbunden. So konnte das Quadrupol unter Vakuum belassen werden, während Veränderungen an der Natrium- und Reaktionskammer vorgenommen wurden.

Im Unterschied zu dem vorher diskutierten Aufbau wurde die Natriumkammer von einer Diffusionspumpe (Alcatel Crystal 62, Vorpumpe: Balzers DUO08, $8 \text{ m}^3/\text{h}$) evakuiert. Beim Experimentierbetrieb wurden typisch Drücke von $2 \cdot 10^{-7}$ mbar in der Quadrupolkammer und $9 \cdot 10^{-7}$ mbar in dem Wechselwirkungsbereich erreicht. Der Druck in der Natriumquellkammer lag etwa eine Größenordnung darüber, also bei $9 \cdot 10^{-6}$ mbar.

Als Natriumquelle diente ein Stahlofen mit einer dünnen Lochblende. Der Lochdurchmesser dieser Düse betrug $100 \mu\text{m}$. Wie in Abb. 2.9 zu erkennen ist, befand sich die Lochblende am Ende eines rüsselförmigen Fortsatzes des Ofens. Der Ofen wurde mit Thermocoaxdrähten

beheizt. Um ein Zusetzen der Düse mit Natrium zu verhindern, wurde die Düse mit einem separaten Thermocoaxkabel auf eine ca. 50 °C höhere Temperatur geheizt. Sowohl die Temperatur des Ofens als auch die Temperatur der Düse wurden mit Hilfe von Thermoelementen gemessen. Der Ofen wurde durch Keramiken wärmeisoliert auf eine Stahlplatte geschraubt, die an Halteschienen in der Vakuumkammer befestigt und ausgerichtet werden konnte. In einem Abstand von etwa zwei Zentimetern war der Ofen von einer Kupferkühlschlange umgeben, die mit Wasser gekühlt wurde. Eine Kupferblende mit einem Loch von 10 mm Durchmesser wurde mit flüssigem Stickstoff gekühlt und diente als erste Strahlbegrenzung vor der zweiten Blende. Der Abstand der Düse zur Kupferblende betrug dabei etwa 10 mm, bis zur folgenden Blende weitere 10 mm. Diese beheizbare Blende hatte einen Schlitz von 1 mm Höhe und 3 mm Breite und bestimmte das Strahlprofil in der Reaktionskammer.

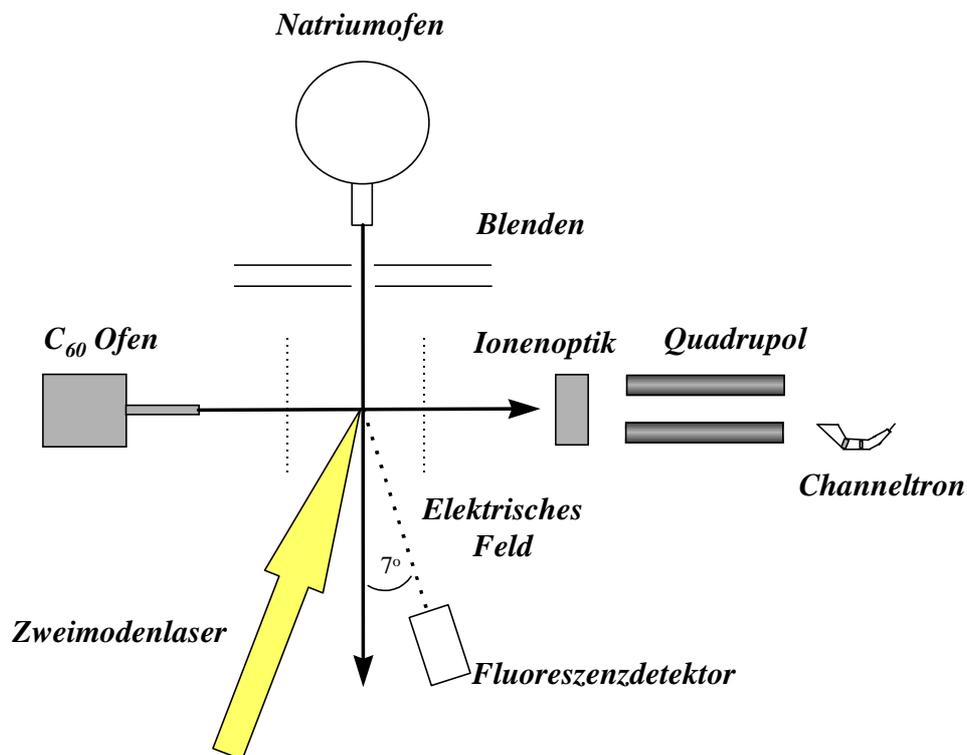


Abb. 2.9: Schematisches Bild des experimentellen Aufbaus. Zu sehen ist ein Schnitt durch die Ebene, die durch den Natrium- und den C₆₀-Strahl definiert ist. Der Zweimodenlaser trifft in Wirklichkeit senkrecht auf die Ebene.

Der verhältnismäßig massive Natriumofen konnte mit Heizströmen von 8 A innerhalb einer Stunde auf Temperaturen von ca. 500 °C geheizt werden. Die Kammerwände der Vakuum-

kammer heizten sich trotz der Kühlung bei längerem Betrieb auf ca. 60 °C auf. Das Abkühlen des Ofens dauerte entsprechend länger.

Der Natriumofen wurde durch den abnehmbaren Bodendeckel befüllt. Die Befüllung wurde unter einer Stickstoffatmosphäre durchgeführt. Eine Füllung reichte für den Betrieb von ca. zwei bis drei Monaten.

Als C₆₀-Quelle diente ein kleiner Ofen mit einem 13 mm langen Rohr von 1,5 mm Durchmesser. Der Abstand des Ofens zum Wechselwirkungsbereich mit dem Natriumstrahl betrug etwa 30 mm. Der Ofen wurde mit Thermocoaxkabeln geheizt, bei Strömen von 1 A wurde innerhalb einer halben Stunde die Arbeitstemperatur von 500 °C erreicht. Das kleine Design des Ofens hat sich bewährt: die Ansprechzeiten des Ofens sind kurz, die Erwärmung der Umgebung ist gering. Eine Kühlung ist nicht nötig gewesen. Um einen besseren Druck zu erreichen, wurde jedoch auch in diesem Bereich eine Kühlfalle eingesetzt.

Der Ofen wurde mit einem C₆₀/C₇₀-Gemisch befüllt, das im Hause nach dem Krätchmer-Huffmann-Verfahren hergestellt und durch Toluol extrahiert worden war. Das Gemisch enthält ca. 90% C₆₀.

Wie aus der Abb. 2.9 ersichtlich, trafen die beiden Molekularstrahlen senkrecht aufeinander. Senkrecht zu der Ebene, die durch den Natrium- und den C₆₀-Strahl definiert wird, wurde der Laserstrahl eingekoppelt, mit dem das Natrium angeregt wurde. Die Wechselwirkungszone wurde von einer Kiste aus μ -Metall umgeben, die quaderförmig aufgebaut war und auf jeder Seite eine mittige Öffnung besaß, so daß die drei Strahlen (Natrium, C₆₀ und Laser) ungehindert passieren konnten. Das Erdmagnetfeld konnte so von ca. 400 mGauß auf ca. 5 mGauß reduziert werden. Innerhalb der Kiste befanden sich zwei Metallnetze, so daß die entstehenden Ionen durch ein elektrisches Feld in Richtung auf das Quadrupol abgezogen werden konnten. Die Feldstärke des statischen elektrischen Feldes betrug 0,14 kV/cm. Eine Einzellinse und Ablenkerplatten ermöglichten ein Fokussieren des Ionenstrahls in das Quadrupol. Der vor dem Quadrupol aufgebaute Ionisator besitzt eine Eintrittsöffnung von 5 mm Durchmesser, durch den der Strahl begrenzt wird. Der Ionisator diente nur zum Einstellen der Parameter des Quadrupols, fand aber während des eigentlichen Experimentes keine Verwendung. Der Abstand des Quadrupols von der Wechselwirkungszone betrug ca. 40 cm. Die Spektren wurden mit dem Speicheroszilloskop (LeCroy 9310) aufgezeichnet.

Ein Plexiglasflansch ermöglichte die Beobachtung der Wechselwirkungszone. Das Fluoreszenzlicht der angeregten Natriumatome wurde von einer Photodiode registriert. Die Photodiode befand sich dabei in einer umgebauten Fotokamera, so daß eine einfache Ausrichtung und Fokussierung auf die Wechselwirkungszone möglich war, indem man durch das Objektiv der Kamera schaute. Wie in Abb. 2.9 zu erkennen ist, befand sich die Photodiode dabei in der durch den Natrium- und C_{60} -Strahl definierten Ebene. Die Photodiode ist unter einem Winkel von 7° zum Natriumstrahl positioniert. So konnte gewährleistet werden, daß das sich auf dem Flansch abscheidende Natrium nicht die Sicht auf den Wechselwirkungsbereich verdeckte. Der Photodiodenstrom wurde von einem Stromvorverstärker (Model 564, HMS) verstärkt und in ein Spannungssignal umgewandelt, das ebenfalls mit dem Speicheroszilloskop aufgezeichnet wurde.

2.3 Der Zweimodenlaser

Wie in der folgenden theoretischen Einführung ausgeführt wird, ist eine nennenswerte Wahrscheinlichkeit für einen Ladungstransfer in dem thermischen Stoßprozeß $C_{60} + Na$ aus energetischen Gründen nur zu erwarten, wenn sich das Natriumatom in seinem ersten angeregten Zustand, dem $3p$ Zustand, befindet. Die Anregung erfolgt mit Hilfe eines Farbstofflasers.

Bei der Anregung des Natriums gibt es jedoch ein grundlegendes Problem: Natrium besitzt einen Kernspin von $I = 3/2$, so daß sich der Grundzustand des Natriums in zwei Hyperfeinstrukturkomponenten aufspaltet. Diese haben den Gesamtdrehimpuls $F = 1$ und $F = 2$. Die beiden Niveaus liegen 1772 MHz auseinander, bei der typischen Linienbreite eines Farbstofflasers von 1 MHz zu weit, um das Pumpen aus beiden Grundzuständen heraus zu erlauben.

Um eine optische Anregung von Atomen mit einem cw-Laser effizient zu erreichen, ist es notwendig, daß die Atome in denselben Grundzustand zurückfallen, aus dem sie gepumpt werden. Man muß also in einem geschlossenen Zyklus arbeiten. Anderenfalls können die Atome nach der Anregung in den anderen Grundzustand zerfallen und nicht mehr von dem Pumplaser erreicht werden. Diese Atome gehen somit für weitere Anregungen verloren. Nach hinreichend langer Pumpdauer kann überhaupt kein Atom mehr angeregt werden, da alle Atome in den „falschen“ Grundzustand umgepumpt worden sind. Aus den genannten Gründen kann beim Anregen von Natriumatomen nie die in einem reinen Zweiniveausystem theoretisch mögliche Anregungswahrscheinlichkeit von 50% erreicht werden.

Im ${}^2P_{3/2}$ Zustand des Natriums gibt es vier Hyperfeinstrukturniveaus mit Gesamtdrehimpuls von $F = 0$ bis $F = 3$. Aufgrund der Auswahlregeln $\Delta F = 0, \pm 1$ erfüllen nur zwei der zehn möglichen Übergänge die Bedingung für zyklisches Pumpen (vgl. Abb. 2.10). Dies sind die Übergänge

(i) $3\ {}^2S_{1/2} (F = 2) \rightarrow 3\ {}^2P_{3/2} (F = 3)$ und

(ii) $3\ {}^2S_{1/2} (F = 1) \rightarrow 3\ {}^2P_{3/2} (F = 0)$.

Alle anderen Übergänge zerfallen auch in den jeweils *anderen* Grundzustand. Diese Atome gehen damit dem Pumpzyklus verloren, weil sie von dem Anregungslaser nicht mehr erreicht werden. Der Übergang (ii) ist weniger gut geeignet, weil es einen anderen angeregten Zustand mit $F = 1$ gibt, der nur 16 MHz entfernt liegt. Bei einer natürlichen Linienbreite von 10 MHz wird es immer Atome geben, die in dieses Niveau angeregt werden und bei einer Abregung in das andere Grundniveau aus dem Pumpzyklus verloren gehen. Dieser Effekt wird durch Doppler- und Sättigungsverbreiterung noch verstärkt.

Aus diesem Grund wird der Übergang (i) der D_2 -Linie des Natriums bei 589,160 nm für den Pumpprozess verwendet. Doch auch für diesen Prozess gibt es Verluste aufgrund der Dopplerverbreiterung durch Übergänge in das andere Grundniveau. Mit einem Einmodenlaser kann man theoretisch 31% Anregungswahrscheinlichkeit erreichen. Dies er-

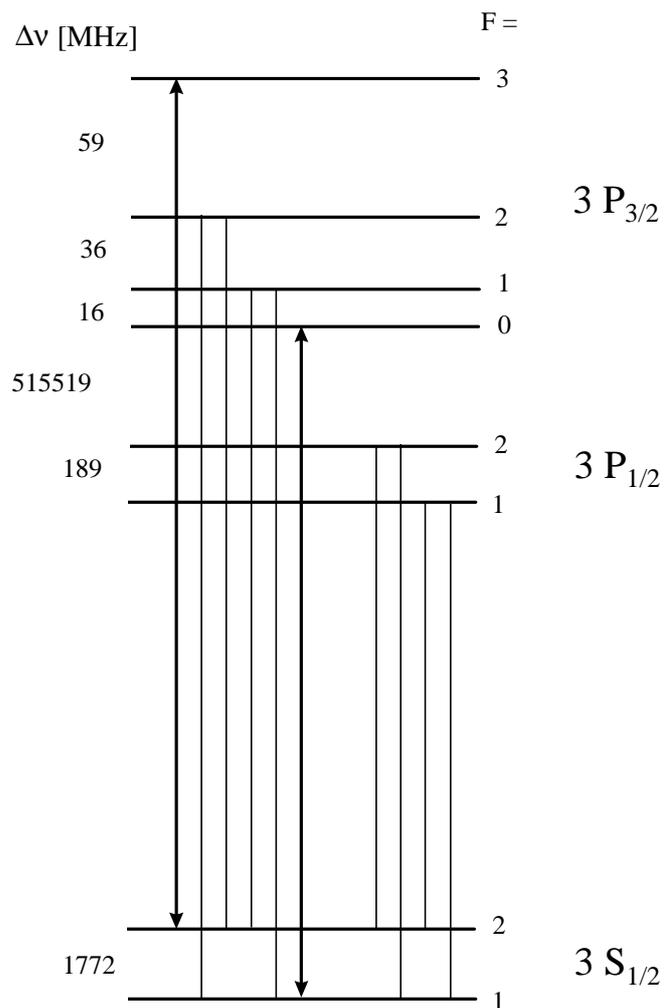


Abb. 2.10: Energietermschema des Natriumatoms. Eingezeichnet sind die zehn möglichen Übergänge zwischen dem Grund- und dem ersten angeregten Zustand. Mit Doppelpfeilen sind die zwei Übergänge gekennzeichnet, die prinzipiell für einen Laserbetrieb in Frage kommen.

rechnet sich leicht, wenn man die $2F + 1$ -fache Entartung der jeweiligen Hyperfeinstrukturniveaus berücksichtigt. Dies führt zu einem Besetzungsverhältnis von 5:3 für die Grundzustände mit $F = 2$ bzw. 1. Davon können optisch maximal 50% angeregt werden. In typischen Atomstrahlexperimenten wechselwirken die Atome etwa $2 \mu\text{s}$ mit dem Laser und durchlaufen in dieser Zeit ungefähr 100 Pumpzyklen. Unter diesen Bedingungen erreicht man eine durchschnittliche Besetzung des angeregten Zustandes von 10-15% [BHM83], [WCR87], [FWR88].

Um eine höhere Anregungswahrscheinlichkeit zu erreichen, muß auch aus dem zweiten Grundzustandsniveau gepumpt werden. Dies kann mit einem zweiten Einmodenlaser geschehen, der auf der entsprechenden Wellenlänge arbeitet. Eine andere Methode besteht darin, einen Laser so zu verändern, daß der normalerweise unerwünschte Zweimodenbetrieb möglich wird. So kann man erreichen, mit nur einem Laser gleichzeitig aus beiden Grundzuständen heraus zu pumpen. Der Laser muß dazu Licht zweier Wellenlängen bei 589 nm emittieren, mit einem Frequenzabstand von 1713 MHz (= 1772 MHz - 59 MHz). Nun gehen Atome aus dem Pumpzyklus nicht mehr aufgrund von Doppler- oder Sättigungsverbreiterung verloren. Theoretisch wird nun eine Anregung von 50% aller Atome erreicht, die maximal mögliche Anregung in einem Zweiniveausystem. Praktisch erreicht man etwa 30-40% Anregung [HBK95], [CHW90].

Worauf bei dem entsprechenden Umbau eines Einmodenlasers zu einem Zwei-Moden-Laser zu achten ist, wurde bereits ausführlich in [Hül89] und [CHW90] beschrieben. Hier soll nur kurz das Funktionsprinzip skizziert werden.

Der Zweimodenlaser beruht auf dem Prinzip des sogenannten Lochbrennens. Die Besetzungsinversion der Farbstoffmoleküle wird in einem linearen Resonator nur an den Stellen „heruntergebrannt“, an denen eine stehende Welle mit der Frequenz ν_1 ihre Bäuche hat. In den Knoten der stehenden Welle bleibt die Besetzungsinversion erhalten. Eine zweite stehende Welle mit der Frequenz $\nu_1 + \Delta\nu$, wobei $\Delta\nu \ll \nu_1$ gelten muß, kann sich auch im Resonator ausbreiten und Licht dieser zweiten Frequenz emittieren, wenn sie ihre Bäuche an den Stellen des aktiven Mediums hat, an denen die Besetzungsinversion noch erhalten ist. Die beiden Moden wechselwirken mit unterschiedlichen Gruppen von Farbstoffmolekülen. Es handelt sich also quasi um zwei unabhängige Laser in einem Resonator. Idealerweise beträgt der Phasenunterschied im aktiven Medium konstant $\pi/2$. In diesem Fall kommt es zu keiner Konkurrenz zwischen den beiden Moden. Funktionieren kann ein Zweimodenlaser nur, wenn das aktive Me-

dium dünn gegenüber der Länge des Resonators ist, denn an den Endspiegeln des Resonators haben beide Wellen Knoten. Diese Bedingung ist in einem Farbstofflaser erfüllt, denn die Dicke des freien Strahls oder der Küvette beträgt in der Regel nur einige zehntel Millimeter, die Resonatorlänge dagegen 0,5 bis 1 m. Bei Gaslasern, bei denen meist das Gas den gesamten Resonator ausfüllt, ist aus diesem Grunde kein stabiler Zweimodenbetrieb möglich.

Für die meisten Anwendungen ist der Zwei- oder Mehrmodenbetrieb aufgrund des Lochbrennens ein störender Effekt. Um ihn zu vermeiden, kann das aktive Medium in die Mitte des Resonators plaziert werden [Pik74]. Eine andere Möglichkeit bieten Ringresonatoren mit umlaufenden Wellen [z. B. Dem93]. Die umlaufenden Wellen nutzen die Besetzungsinversion des aktiven Mediums viel besser aus. Darin resultiert der höhere Wirkungsgrad von Ringlasern gegenüber Lasern mit linearen Resonatoren.

Betrachten wir nun zwei Frequenzen ν_1 und ν_2 mit der Differenz $\Delta\nu = |\nu_1 - \nu_2|$ in einem Resonator mit der Länge L . Der Abstand des dünnen aktiven Mediums zum näherliegenden Endspiegel sei b . Um einen stabilen Zweimodenbetrieb mit einem bestimmten Modenabstand $\Delta\nu$ zu ermöglichen, muß ein linearer Laser folgende Bedingungen erfüllen:

- (1) Der Phasenunterschied der beiden Wellen, nachdem sie die Strecke b durchlaufen haben, muß $\pi/2$ betragen. Nur dann treten die beiden Moden nicht miteinander in Wettbewerb um die besetzungsinvertierten Farbstoffmoleküle. Daraus folgt die Bedingung:

$$\Delta\nu = \frac{1}{2} \cdot m \cdot \frac{c}{2b} \quad (2.1)$$

wobei c die Lichtgeschwindigkeit ist und m eine ungerade Zahl.

- (2) Beide Wellen müssen Vielfache des freien Spektralbereichs des Resonators sein. Folglich gilt das auch für den Abstand der beiden Wellen $\Delta\nu$. Damit lautet die Bedingung:

$$\Delta\nu = n \cdot \frac{c}{2L} \quad (2.2)$$

wobei n diesmal ganzzahlig ist. Der Faktor $1/2$ in Gleichung 1 gegenüber Gleichung 2 stammt daher, daß der Phasenunterschied zwischen den beiden stehenden Wellen im ersten Fall $\pi/2$ betragen muß, im zweiten dagegen über die Resonatorlänge ein Phasenunterschied von π aufgesammelt werden muß.

Die Gleichungen (2.1) und (2.2) lassen sich umformen:

$$b = \frac{m \cdot c}{4} \cdot \Delta\nu \quad m = 1, 3, 5, \dots \quad (2.3)$$

$$L = \frac{n \cdot c}{2} \cdot \Delta\nu \quad n = 1, 2, 3, \dots \quad (2.4)$$

Für den gewünschten Modenabstand von 1713 MHz errechnet man:

$$b = m \cdot 4,38 \text{ cm} \quad m = 1, 3, 5, \dots \quad (2.5)$$

$$L = n \cdot 8,76 \text{ cm} \quad n = 1, 2, 3, \dots \quad (2.6)$$

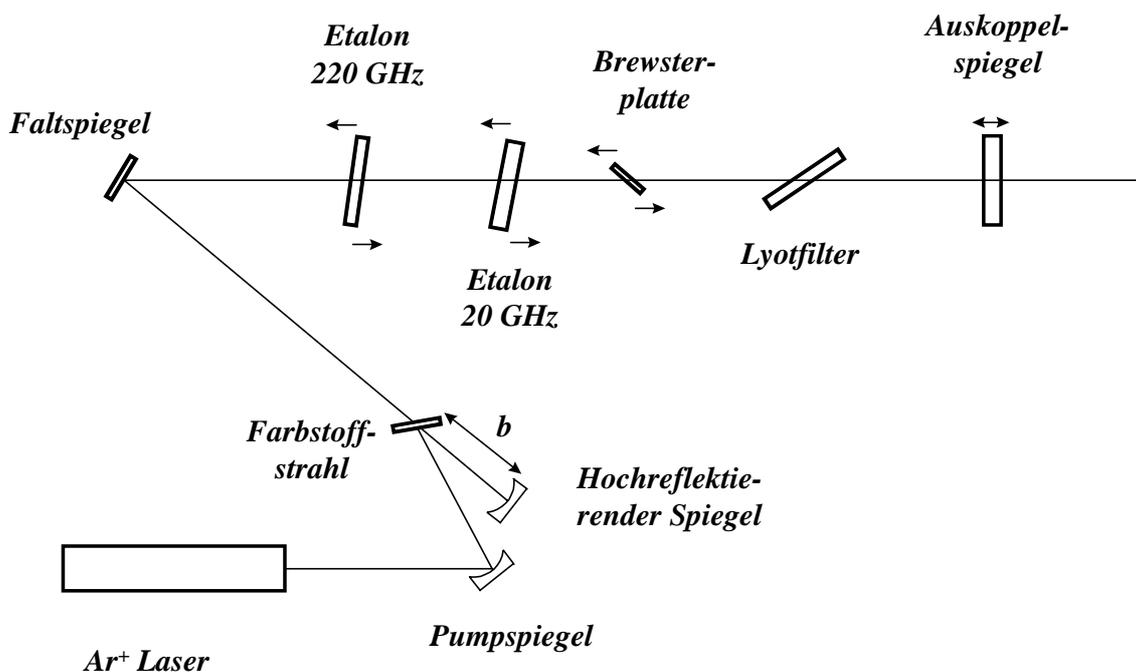


Abb. 2.11: Schematisches Bild des Zweimodenlasers.

In einem Zweimodenlaser müssen also sowohl die Resonatorlänge als auch der Abstand des einen Endspiegels (und somit auch des anderen) zum aktiven Medium auf den gewünschten Modenabstand abgestimmt werden. Die absolute Lage der beiden Moden muß jedoch durch weitere frequenzselektive Elemente festgelegt werden. Dazu dienen ein Lyotfilter und zwei Etalone. Der Aufbau wird in Abb. 2.11 gezeigt.

Der Lyotfilter besteht aus drei doppelbrechenden Quarzplatten, die entlang ihrer optischen Achse geschnitten sind, und im Brewsterwinkel in den Strahl gebracht werden. Der Lyotfilter ist um eine Oberflächennormale drehbar, wodurch eine Wellenlänge mit den geringsten Verlusten ausgewählt werden kann. Der Lyotfilter dient dabei zur groben Selektion des Wellenlängenbereichs. Die Bandbreite des Lasers wird durch den Einsatz des Lyotfilters auf etwa $\frac{1}{4}$ Å (20 GHz) eingeengt.

Die weitere Einengung der Wellenlänge erfolgt über leicht verkippbare Etalons, also planparallele Glasplatten. Es werden zwei Etalons eingesetzt: ein dickes Etalon mit einem freien Spektralbereich von 20 GHz und ein dünnes Etalon mit einem freien Spektralbereich von 220 GHz, das das Anschwingen von dritten Moden neben den beiden gewünschten verhindert.

Es ist klar, daß die Transmissionsverluste eines Zweimodenlasers größer sind als die eines Einmodenlasers, da nicht beide Moden unter einem Maximum der Transmissionskurve liegen können. Eine optimale Abstimmung ist erreicht, wenn beide Moden gleichstark sind.

Die Wellenlänge und die Modenstruktur des Lasers wurden gleichzeitig während der Messung mit einem Burleigh Wellenmeter (WA4500) gemessen. In Abb. 2.12 ist ein typisches Spektrum zu sehen, das die Zweimodenstruktur zeigt.

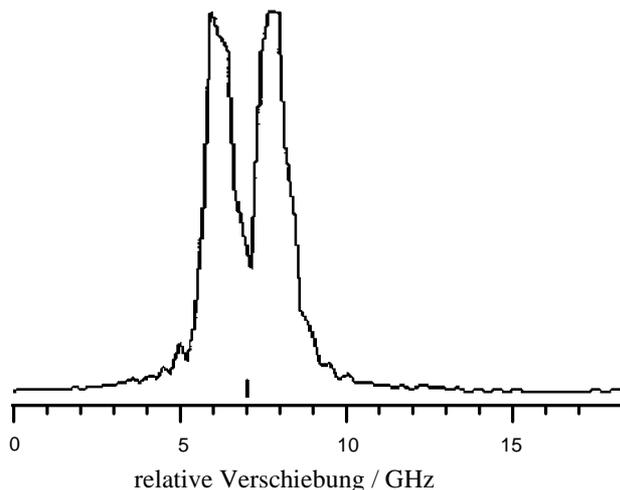


Abb. 2.12: Die Zweimodenstruktur des Lasers hat einen Modenabstand von 1,7 GHz. Das Spektrum wurde mit einem Fabry-Perot-Interferometer mit einem freien Spektralbereich von 20 GHz aufgenommen.