

Kapitola 1

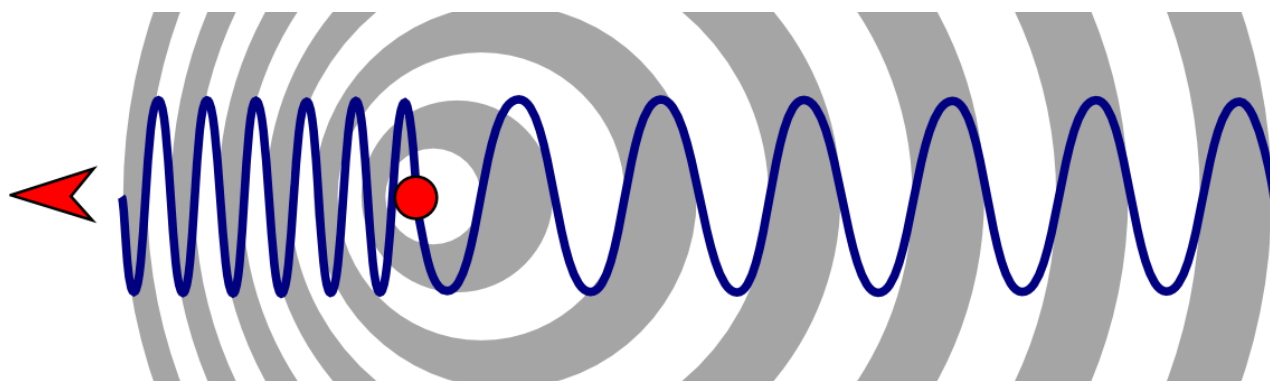
Dopplerov jav v spektroskopii

1.1 Teória okolo Dopplerovho javu

1.1.1 Klasický Dopplerov jav

Dopplerov jav (alebo Dopplerov posun) je jav pri ktorom dochádza k zmene frekvencie a vlnovej dĺžky vlny pre pozorovateľa, ktorý sa pohybuje vzhľadom na zdroj vlnenia. Tento efekt je pomenovaný po rakúskom fyzikovi Christiánovi Dopplerovi¹, ktorý ho opísal v roku 1842.

Doppler prvýkrát spomenul tento jav v jednej zo svojich prác² a o tri roky neskôr jeho hypotézu úspešne otestoval na zvukových vlnách Buys Ballot. Nezávisle od Dopplera objavil Hippolyte Fizeau tento jav pre elektromagnetické vlny v roku 1848, takže vo Francúzsku bol chvíľu jav označovaný ako Doppler-Fizeauov jav, no vo svete sa tento názov neujal, keďže Fizeau bol za Dopplerom 6 rokov pozadu.



Obr. 1.1: Dopplerov jav

Odvodenie: Predstavme si, že máme zdroj, ktorý sa pohybuje smerom k pozorovateľovi rýchlosťou v_z . Takýto zdroj vyžiari vlnu s frekvenciou f_0 a vlnovou dĺžkou λ_0 . Začiatok vlny je vyžiarený v čase $t_0 = 0$ a koniec vlny je vyžiarený v čase $t'_0 = \frac{\lambda_0}{c} = \frac{1}{f_0}$. Ďalej uvažujme, že v čase 0 bola

¹ktorý pracoval ako profesor v Prahe a neskôr aj v Banskej Štiavnici

²"Über das farbige Licht der Doppelsterne und einiger anderer Gestirne des Himmels"

vzdialenosť medzi zdrojom a pozorovateľom d a pozorovateľ sa pohyboval rýchlosťou v_p smerom ku zdroju. Začiatok vlny preto dojde k pozorovateľovi v čase t_1 , pre ktorý platí vzťah

$$d = t_1 c + t_1 v_p \quad (1.1)$$

Koniec vlny dorazí k pozorovateľovi v čase t'_1 , pre ktorý platí rovnica

$$d - t'_0(v_z + v_p) = (t'_1 - t'_0)(c + v_p) \quad (1.2)$$

Rozdielom časov dostaneme periódu vlnenia, ktorá je prevrátenou hodnotou frekvencie.

$$T = t'_1 - t_1 = \frac{d - t'_0 v_z + t'_0 c}{c + v_p} - \frac{d}{c + v_p} = \frac{1}{f_0} \frac{c - v_z}{c + v_p} \quad (1.3)$$

V klasickej fyzike, kedy rýchlosť zdroja a pozorovateľa vzhľadom na okolie sú menšie ako rýchlosť svetla, platí teda vzťah medzi pozorovanou frekvenciou f a emitovanou frekvenciou f_0 vzťah

$$f = \left(\frac{c + v_p}{c - v_z} \right) f_0 \quad (1.4)$$

kde c je rýchlosť vln, v_p je rýchlosť pozorovateľa (ktorá je kladná, keď sa pozorovateľ pohybuje k zdroju a naopak) a v_z je rýchlosť zdroja (ktorá je kladná, keď sa zdroj pohybuje k pozorovateľovi a naopak).

1.1.2 Relativistický Dopplerov jav

V prípade elektromagnetického žiarenia, ktoré je emitované zdrojom pohybujúcim sa rýchlosťou blízkou rýchlosti svetla³ je potrebné započítať efekty dilatácie času.

Odvedenie je podobné tomu klasickému s tým rozdielom, že v tomto prípade nezáleží na tom, či sa pohybuje zdroj alebo pozorovateľ, dôležitá je iba celková vzájomná rýchlosť v . Pridáme preto relativistické efekty a pre frekvenciu dostaneme

$$f = \gamma \left(1 - \frac{v}{c} \right) f_0 = \gamma(1 - \beta) f_0 = f_0 \sqrt{\frac{1 - \beta}{1 + \beta}} = f_0 \sqrt{\frac{1 - \frac{v}{c}}{1 + \frac{v}{c}}} \quad (1.5)$$

1.2 Dopplerovské rozšírenie

Dopplerovské rozšírenie (angl. Doppler broadening) je rozšírenie spektrálnych čiar v dôsledku Dopplerovho javu spôsobené nemonofrekvenčným rozdelením rýchlostí atómov v molekulách. Rôzne rýchlosti emitujúcich častíc spôsobujú rôzny Dopplerov posun, a to vo výsledku spôsobuje rozšírenie. Výsledný profil je známy ako Dopplerovský profil. Časť Dopplerovského rozšírenia, ktorá je spôsobená tepelným pohybom častíc nazývame tepelné Dopplerovské rozšírenie. V takom prípade rozšírenie závisí iba na frekvencii spektrálnej čiary, hmotnosti emitujúcich častíc a ich teplote.

Dopplerovské rozšírenie je popísané pravdepodobnostným rozdelením

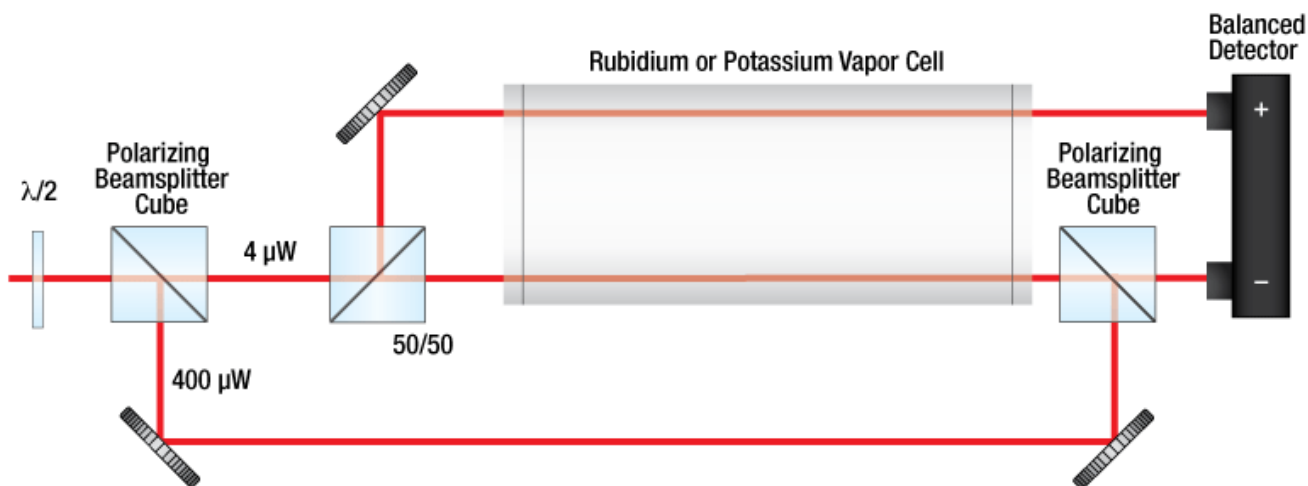
$$P_f(f)df = \sqrt{\frac{mc^2}{2\pi kT f_0^2}} \exp\left(-\frac{mc^2(f - f_0)^2}{2kT f_0^2}\right) df, \quad (1.6)$$

³alebo pozorovateľom pohybujúcim sa takto veľkou rýchlosťou

kde m je hmotnosť emitujúcej častice, f je pozorovaná frekvencia a f_0 je pokojová frekvencia. Toto rozdelenie vzniklo jednoduchým vyjadrením rýchlosti z Dopplerovho javu ako $v = c(\frac{f}{f_0} - 1)$ a dosadením do klasického Maxwellovho rozdelenia.

1.3 Nasýtená absorpčná spektroskopia

Aby sme dokázali určiť skutočnú frekvenciu atómových prechodov bez potreby schladenia vzorky na veľmi nízke teploty, využívame *nasýtenú absorpčnú spektroskopiu*⁴, ktorá je tiež známa pod pojmom *antidopplerovská spektroskopia*⁵. Pri tomto procese ožarujeme atómový plyn laserom s relatívne vysokou frekvenciou. Tento lúč nazývame *pumpovací*⁶. Okrem neho je plyn ožarovaný aj ďalším slabším lúčom s rovnakou frekvenciou. Ten nazývame *snímací lúč*⁷. Snímací lúč je rozdelený na polovice, jedna polovica prejde plynom a zaznamenaná sa, druhá polovica ide v protismere pumpovacieho lúča a následne sa tiež zaznamená. Absorpcia snímacieho lúča je zaznamenávaná na fotodiódu pre rôzne frekvencie lúčov.



Obr. 1.2: Schéma nasýtenej absorpčnej spektroskopie.

Napriek tomu, že lúče majú rovnakú frekvenciu, zasahujú rôzne atómy kvôli tepelnému pohybu. V prípade, že frekvencia lúčov je posunutá k červenej farbe (*red-detuned*) vzhľadom na frekvenciu prechodu atómu, znamená to, že pumpovací lúč bude absorbovaný atómom pohybujúcim sa k zdroju lúčov a snímací lúč bude absorbovaný atómom pohybujúcim sa od zdroja. Ak je frekvencia posunutá k modrej farbe (*blue-detuned*), nastane presný opak.

V prípade, že má laser rezonančnú frekvenciu, oba lúče zasiahnu rovnaké atómy, a to tie, ktoré sa pohybujú kolmo na smer lúčov. V prípade, že uvažujeme aproximáciu atómových prechodov ako

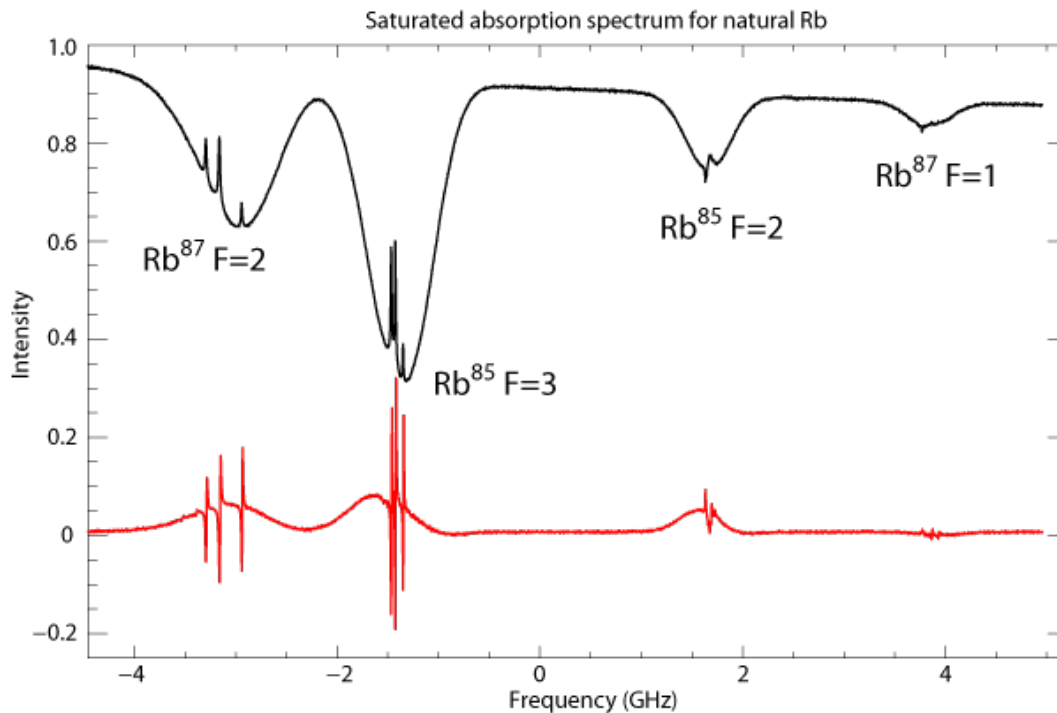
⁴angl. saturation absorption spectroscopy

⁵angl. Doppler-free spectroscopy

⁶angl. pump beam

⁷angl. probe beam

systém s dvomi stavmi, silný pumpovací lúč spôsobí, že mnoho atómov bude v excitovanom stave. Keď je počet atómov v základnom a excitovanom stave približne rovnaký, prechod je nazývaný nasýteným. Keď fotón zo snímacieho lúča prejde plynom, je veľká šanca, že zasiahne atóm, ktorý je excitovaný a dôjde k stimulovanej emisii. Kvôli tomu pri postupnom menení frekvencie lúčov v okolí rezonancie vznikne malá jama v každom z atómových prechodov. Čím je pumpovací lúč silnejší, tým užšiu a hlbšiu jamku dostaneme. Pri perfektných podmienkach môže jamka dosiahnuť tvar prirodzenej šírky prechodu.



Obr. 1.3: Čiernou farbou je znázornené spektrum na výstupe nasýtenej absorpčnej spektroskopie a červenou je spektrum po odčítaní spektra priameho prechodu.

1.4 Využitie metód založených na Dopplerovom posune

Dopplerov jav sa využíva pri určovaní pravdepodobnosti prechodu z dôb života. Pri jadrovej reakcii vznikne excitované jadro v tenkom terčíku. Toto jadro opustí terčík s určitou rýchlosťou, ktorá je daná zo zákona zachovania hybnosti ako

$$v = \frac{v_a m_a}{m_a + M_A} = c \frac{\sqrt{2m_a c^2 E_{kin,a}}}{(m_a + M_A)c^2}, \quad (1.7)$$

kde m_a je hmotnosť nalietajúcej častice, M_A je hmotnosť jadra pred reakciou a $E_{kin,a}$ je kinetická energia nalietajúcej častice. V prípade Coulombovskej excitácie a priamej reakcie je rýchlosť odrazeného jadra závislá na kinematike reakcie.

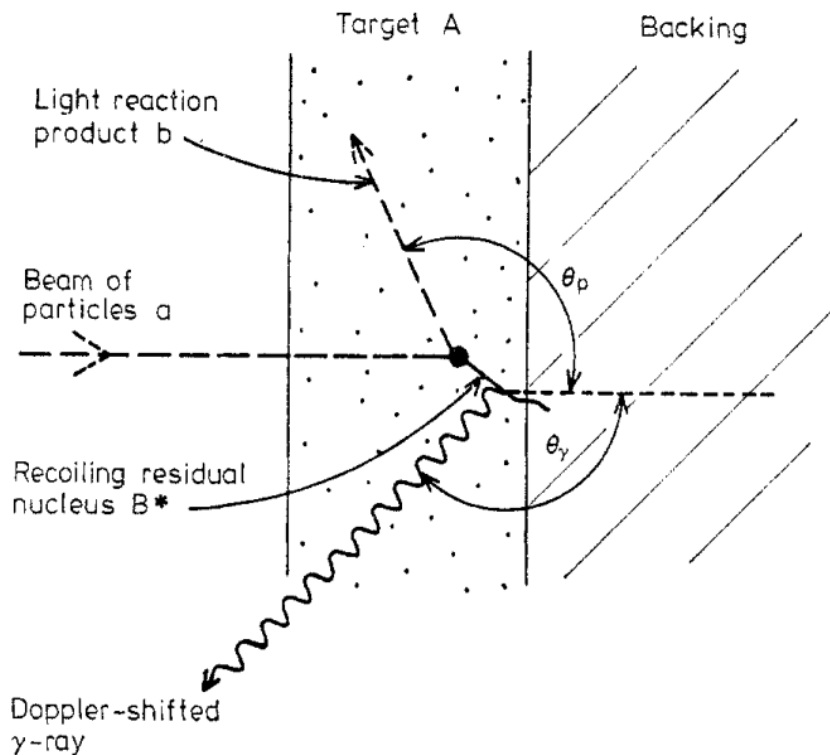
Jadro počas svojho letu vyžiari γ žiarenie, ktorého energia je však Dopplerovsky posunutá práve kvôli pohybujúcemu sa zdroju. Táto posunutá energia je daná vzťahom

$$E_\gamma = E_{\gamma_0} \left(1 + \frac{v}{c} \cos \theta \right), \quad (1.8)$$

kde θ je uhol medzi smerom pohybu jadra a emisiou fotónu.

1.4.1 Metóda zoslabenia Dopplerovho posunu

Na samotné určenie doby života existuje viacero metód. Jednou z nich je metóda zoslabenia Dopplerovho posunu energie γ žiarenia⁸. V tejto priamej metóde je polčas rozpadu excitovaného stavu porovnávaný s časom brzdenia konečného jadra vzniknutého spätným rázom v pevnom alebo plynnom prostredí. Základná metóda je zobrazená na obrázku ??.



Obr. 1.4: Schéma metódy zoslabenia Dopplerovho posunu.

Lúč nalietaajúcich častíc a interaguje s jadrom A . Pri reakcii je emitovaný produkt b a v materiáli terčiku ostane excitované jadro B^* , ktorého polčas rozpadu chceme zmerať. Excitované jadro sa pohybuje v dôsledku spätného rázu s rýchlosťou v_0 a postupne v materiáli spomaľuje. Napokon vyžiari γ žiarenie odpovedajúce strednej dobe života τ pri rýchlosti, ktorá klesla na hodnotu \bar{v} . Hodnotu \bar{v} dokážeme zmerať tak, že zmeriame strednú energiu γ žiarenia ako funkciu θ_γ :

$$\bar{E} = E_0 \left(1 + \frac{\bar{v}}{c} \cos \theta_\gamma \right) \quad (1.9)$$

⁸angl. Doppler-shift attenuation method (DSAM)

Následne určíme faktor zoslabenia $F = \frac{\bar{v}}{v_0}$. Ten porovnáme s teoretickou funkciou $F(\tau)$ a z nej tak dokážeme určiť strednú dobu života. Touto metódou sme schopní merať doby života $\sim 10^{-12} - 10^{-15}$ s.

Túto metódu možno využiť pri viacerých experimentálnych usporiadaniach v závislosti od nalietaujúcich častíc:

1. Záchytové reakcie - jedná sa o záchyt častice (napr. protón alebo α) v jadre a emitácii γ žiarenia. V tomto prípade sa energia nalietajúcej častice sčítava s energiou terčíkového jadra.
2. Reakcie budené ľahkými iónmi - experimentálne najbežnejší spôsob, akým obsadiť najnižšie stavy v jadre s využitím binárnych reakcií vybudovaných ľahkými projektilmi ako p , d , t , τ a α s energiami 3 – 20 MeV. V týchto reakciách vzniká okrem excitovaného jadra aj jedna častica, ktorá je emitovaná (n , p , d alebo α).
3. Reakcie budené ťažkými iónmi - keď ťažký ión bombarduje terčik s energiou prevyšujúcou Coulombovskú bariéru, dochádza k vyparovaniu nukleónov. Pri reakcii $A(xn, yp, z\alpha)B^*$ dôjde k vypareniu x neutrónov, y protónov a z α -častíc v čase kratšom ako 10^{-15} s. To je doprevádzané mnohými dipólovými a kvadrupólovými prechodmi.
4. Inverzné reakcie - jedná sa o reakcie, kedy ľahké častice bombardujeme ťažkými, ako napr. pri skúmaní strednej doby života ^{13}C bola použitá reakcia $^2\text{H}(^{12}\text{C}, p)^{13}\text{C}$.

1.4.2 Teórie zastavenia

Brzdny čas excitovaného jadra v pevnom materiáli definuje časovú škálu pre merania metódou DSAM. Zoslabujúci faktor F môžeme zapísať v tvare

$$F = \frac{\bar{v}}{v_0} = \frac{1}{v_0\tau} \int_0^\infty v(t) \exp(-t/\tau) dt. \quad (1.10)$$

Problémom však je, že nepoznáme, ako jadro spomaľuje, teda funkcia $v(t)$ je pre nás neznámou. Ako prvú aproximáciu môžeme uvažovať, že strata energie bude úmerná rýchlosti excitovaného jadra, teda $dE/dx \propto v$. Táto podmienka sa totiž ukazuje ako veľmi dobrá aproximácia pre brzdné procesy elektrónov v materiáli.

Túto závislosť môžeme sformulovať do tvaru

$$v(t) = v_0 \exp(-t/\alpha), \quad (1.11)$$

kde α je charakteristická konštanta materiálu opisujúca brzdný čas. Dosadením tejto aproximácie do vzťahu (??), dostaneme výraz pre zoslabujúci faktor

$$F = \frac{1}{1 + \tau/\alpha}. \quad (1.12)$$

Tvar γ spektrálnej čiary však tiež dokáže priniesť informáciu o dobe života. Rovniu (??) preto môžeme zapísať do tvaru

$$F = \frac{1}{v_0} \frac{\int_0^{v_0} v \frac{dN(v)}{dv} dv}{\int_0^{v_0} \frac{dN(v)}{dv} dv}, \quad (1.13)$$

kde $N(v)$ je počet jadier, ktoré sa rozpadnú pri rýchlosti v . Keďže vieme, že

$$dN(t) = \frac{1}{\tau} e^{-t/\tau} dt \quad (1.14)$$

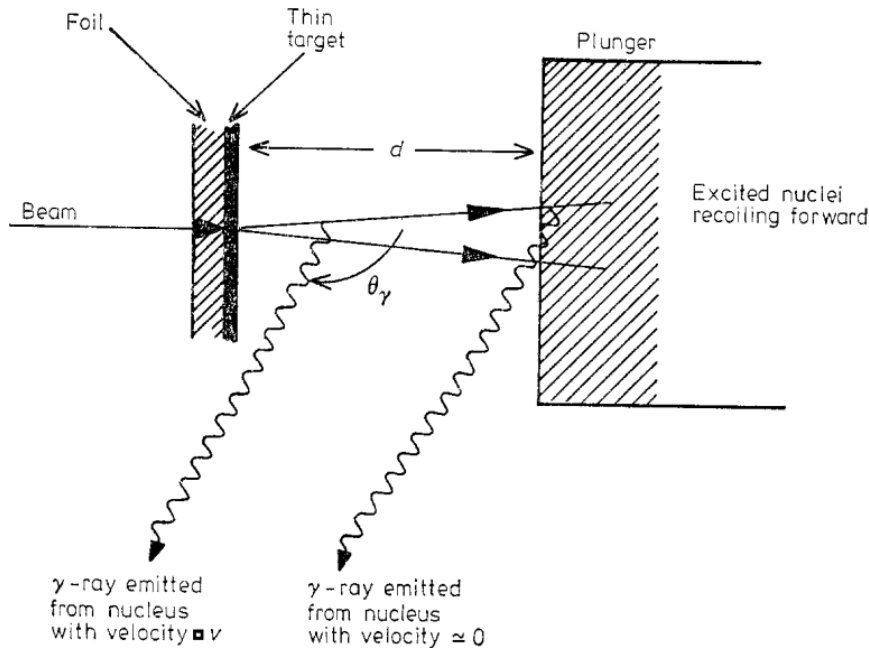
a navyše poznáme funkciu $v(t)$, môžeme si ľahko dopočítať závislosť N na rýchlosti:

$$dN(v) = \frac{\alpha}{v\tau} \left(\frac{v}{v_0} \right)^{\alpha/\tau} dv. \quad (1.15)$$

1.4.3 Metóda vzdialenosti doletu spätného rázu

Ďalšou metódou je metóda vzdialenosti doletu spätného rázu⁹.

My môžeme jadro zastaviť počas jeho letu, a to tak, že mu vo vzdialenosti $d = vt_0$ do cesty postavíme zachytávajúcu fóliu, prezývanú piest (plunger). Tie jadrá, ktoré dorazia na fóliu v excitovanom stave vyžiaria pri zastavení neposunutú γ -linku, zatiaľ čo tie jadrá, ktoré sa rozpadli skôr, vykazujú Dopplerovský posun. Celý proces je znázornený na obr. ??.



Obr. 1.5: Schéma metódy vzdialenosti doletu spätného rázu.

Pomer intenzít γ žiarenia vyžiareného jadrami počas pohybu a zastavenými jadrami je

$$R(d) = \frac{S_\gamma^Z}{S_\gamma^Z + S_\gamma^P}, \quad (1.16)$$

⁹angl. Recoil distance method (RDM)

kde S_γ^Z je intenzita vyžiarená zastavenými atómami a S_γ^P intenzita vyžiarená atómami počas pohybu. Obe intenzity vypočítame ako

$$S_\gamma^P = S(0) \int_0^{t_0} e^{-\frac{t}{\tau}} dt \quad (1.17a)$$

$$S_\gamma^Z = S(0) \int_{t_0}^{\infty} e^{-\frac{t}{\tau}} dt \quad (1.17b)$$

Keď si nakreslíme pomer týchto dvoch intenzít ako funkciu vzdialenosti d , môžeme veľmi ľahko určiť polčas rozpadu excitovaného stavu. Touto metódou je merateľná oblasť dôb života $\tau \sim 10^{-8} - 10^{-12}$ s. Bežné hodnoty d sú v rozmedzí $1 - 0,01$ mm, hrúbka terča $0,7 - 1,5$ μm , hrúbka fólie $5 - 10$ μm , pričom fólia je väčšinou z Au, Ta alebo Bi.