Erzeugung intensiver Lyman-Alpha (121.6 nm) - Strahlung durch optisch nichtlineare Prozesse

Hans J. Langer

IPP 1/185 Januar 1981

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR PLASMAPHYSIK

8046 GARCHING BEI MÜNCHEN

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR PLASMAPHYSIK

GARCHING BEI MÜNCHEN

Erzeugung intensiver Lyman-Alpha (121.6 nm) - Strahlung durch optisch nichtlineare Prozesse

Hans J. Langer

IPP 1/185 Januar 1981

Die nachstehende Arbeit wurde im Rahmen des Vertrages zwischen dem Max-Planck-Institut für Plasmaphysik und der Europäischen Atomgemeinschaft über die Zusammenarbeit auf dem Gebiete der Plasmaphysik durchgeführt.

IPP 1/185 Hans J. Langer Erzeugung intensiver Lyman-Alpha (121.6 nm)-Strahlung durch optisch nichtlineare Prozesse Januar 1981 (in German)

Abstract

Lyman alpha resonance fluorescence in atomic hydrogen is a promising method to measure the local density and temperature of neutrals in fusion plasmas. This requires, however, a powerful, tunable narrow-band vacuum UV source in the Lyman alpha resonance regime of atomic hydrogen at 121.567 nm.

With coherent light sources in the visible it has recently become possible by means of optically nonlinear processes in rare gases and metal vapour-rare gas systems to gain access to the vacuum UV range beyond the absorption limit of nonlinear crystals at 200 nm. The high qualities afforded by coherent light sources in the visible, such as narrow line width, small divergence and wide tuning range, can be extended to the VUV range by frequency tripling and difference or sum frequency generation. The spectral power densities here are orders of magnitude higher than those of synchrotrons or those of thermal sources hitherto available for spectroscopy in the VUV.

Effective generation of the third harmonic calls for phase matching of the fundamental and harmonic waves in the nonlinear system. This is achieved by exact setting of the partial pressures in a gas mixture if the refractive index of one gas is smaller at the harmonic than at the fundamental wavelength. The VUV radiation yield is essentially governed by the absorption cross-section of the nonlinear medium at these wavelengths. It is particularly large, however, for atoms with two-photon-resonant intermediate levels.

The aim of this study is to choose optically nonlinear systems suitable for producing intense Lyman alpha radiation, quantitatively investigate them and experimentally determine the maximum attainable conversion efficiency.

Theoretical analysis of frequency tripling shows that beryllium atoms are ideally suited to Lyman alpha generation owing to the location of their energy levels. However, producing the necessary homogeneous vapour pressures involves major technical problems since liquid

beryllium is very aggressive and beryllium dust highly toxic. For this reason krypton, which can be phase-matched with argon at 364.8 nm and 121.6 nm because of its dispersion, was used as nonlinear medium for most of the experimental investigations. The absence of two-photon resonance means, though, that the value of the nonlinear susceptibility $\chi_T^{(3)}(3\omega)$, which is decisive for conversion, is much smaller than for beryllium. Since, however, with non-resonant frequency tripling in krypton it is possible to work with much higher densities and laser intensities, the conversion efficiency for the two media in the small-signal range are comparable.

The central process limiting conversion efficiency, in both resonant and non-resonant frequency tripling, is the destruction of phase matching at high input intensities. In the non-resonant case this is due to the intensity dependence of the refractive indices (Kerr effect), in the resonant case to the change in the population of the atomic levels caused by two-photon absorption. Quantatitative analysis of these processes calls for a knowledge of the atomic susceptibilities.

For Be these values were calculated in Coulomb approximation and optimization of the frequency tripling was done numerically. It is accordingly possible to achieve conversion efficiencies of 10^{-3} exactly at the two-photon resonance at input intensities of 10^8 W/cm^2. At higher input intensities the conversion can be further improved if the laser frequency is tuned close to the resonance since the two-photon absorption cross-section near the resonance decreases more strongly than the susceptibility $\chi_T^{(3)}(3\omega)$ relevant for conversion. The theoretical limit is then in the per cent range and is essentially governed by the value of the ionization cross-section from the excited 2s3s level.

For the limiting case of non-resonant frequency tripling it was possible for the first time to derive an analytical approximation for focused light with allowance for the Kerr effect which allows, on the one hand, experimental determination of the nonlinear susceptibilities of Kr and, on the other, optimization of the Kr/Ar system. Furthermore, the influence of intensity fluctuations on the third harmonic generation that is exerted by the multi-mode structure of the laser radiation was investigated. The calculation shows that conversion with the laser used here is a factor of 6 as high as that with a single-frequency laser, and the relative fluctuations from shot to shot are smaller than 15 %.

All experiments were conducted with a frequency-doubled, ruby-laser-pumped dye laser system which could be tuned between 362.3 nm and 367.3 nm. The values of the nonlinear susceptibilities of krypton could be determined to 5th order of the perturbation calculation from the density and intensity dependences of the Lyman alpha radiation generated in pure krypton, and hence it was possible to give the optimum value for the product of the density, intensity and confocal parameter in a Kr/Ar mixture. With allowance for pressure broadening of the Kr resonance line at 123.85 nm the optimum Kr pressure is 1.5×10^3 torr. The density dependence of the threshold intensity for laser-induced gas breakdown leads to an intensity of 5×10^9 W/cm^2 in the focus. With the laser system used here this affords a maximum conversion of 1.5×10^{-4} at the optimum Kr/Ar mixture ratio of 2.17. At peak input intensities of 3 MW this is equivalent to a Lyman alpha power of 420 W or 2.6×10^{12} photons per 10 ns pulse. Numerical extrapolation of these measuring results shows that at higher input powers the maximum conversion efficiency can be further improved. The limit imposed by the self-focusing of the system is at about 10^{-3} for input powers of 10 MW.

For the experiments with beryllium it was essential to develop a chemically stable furnace in which Be vapour with a pressure of 10 torr can be produced at temperatures of up to 1800° C. Once this technological problem had been mastered it was already possible in a non-optimized configuration to achieve a conversion efficiency of 3×10^{-4}. Up to the highest input intensities of 5×10^8 W/cm^2 no saturation behaviour of the VUV signal was observed. This corresponds to the result of the numerical model calculation. It should accordingly also be possible to enhance the conversion efficiency to over 10^{-3} by improving the Be furnace, even at input intensities of a few MW. It would then also be possible with dye lasers at 364.8 nm which are pumped with a commercial excimer laser to produce Lyman alpha pulses of a few kW with repetition frequencies of up to 50 Hz. Such a Lyman alpha source would then allow scattering experiments to be conducted on large fusion plasmas.

Zusammenfassung

Die Lyman-Alpha-Resonanzfluoreszenz an atomarem Wasserstoff ist ein erfolgversprechendes Verfahren, die Neutralgasdichte und -temperatur in Fusionsplasmen lokal aufgelöst zu messen. Voraussetzung dafür ist jedoch eine intensive, schmalbandige und abstimmbare Vakuum-UV-Quelle im Bereich der Lyman-Alpha-Resonanz von atomarem Wasserstoff bei 121.567 nm.

Ausgehend von kohärenten Lichtquellen im Sichtbaren ist es in jüngster Zeit gelungen, mittels optisch nichtlinearer Prozesse in Edelgasen und Metalldampf-Edelgassystemen den Vakuum-UV-Bereich jenseits der Absorptionsgrenze von nichtlinearen Kristallen bei 200 nm zu eröffnen. Durch Frequenzverdreifachung und Differenz- oder Summenfrequenzerzeugung können die im Sichtbaren erreichten hohen Qualitäten der kohärenten Lichtquellen, wie kleine Linienbreiten, geringe Divergenz und weite Abstimmbarkeit in den Bereich des VUV übertragen werden. Die spektralen Leistungsdichten liegen dabei um Größenordnungen über denen von Synchrotrons oder denen von thermischen Quellen, die bisher zur Spektroskopie im VUV zur Verfügung stehen.

Zur effektiven Erzeugung der 3. Harmonischen ist die Phasenanpassung von Grund- und Oberwelle im nichtlinearen System Voraussetzung. Man erzielt dies durch genaues Einstellen der Partialdrücke in einem Gasgemisch, falls der Brechungsindex eines Gases bei der Harmonischen kleiner ist als bei der Fundamentalwelle. Die Ausbeute an VUV-Strahlung wird dann wesentlich bestimmt durch den Absorptionsquerschnitt des nichtlinearen Mediums bei diesen Wellenlängen. Sie ist jedoch besonders groß bei Atomen mit 2-Photonen-resonanten Zwischenniveaus.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit war nun, die zur Erzeugung intensiver Lyman-Alpha-Strahlung geeigneten optisch nichtlinearen Systemen auszuwählen, diese quantitativ zu untersuchen und experimentell den maximal erreichbaren Konversionsgrad zu bestimmen.

Eine theoretische Analyse der Frequenzverdreifachung zeigt, daß sich Berylliumatome

aufgrund der Lage ihrer Energienieveaus ideal zur Lyman-Alpha-Erzeugung eignen. Allerdings bereitet die Herstellung der erforderlichen homogenen Dampfdrücke sehr große technische Schwierigkeiten, da flüssiges Beryllium sehr aggressiv und Berylliumstaub sehr giftig ist. Für den größten Teil der experimentellen Untersuchungen wurde daher Krypton als nichtlineares Medium verwendet, das aufgrund seiner Dispersion sich bei 364.8 nm und 121.6 nm ebenfalls mit Argon phasenanpassen läßt. Die fehlende 2-Photonen-Resonanz bedeutet zwar, daß der Betrag der für die Konversion entscheidenden nichtlinearen Suszeptibilität $\chi_T^{(3)}(3\omega)$ sehr viel geringer ist als bei Beryllium. Da man bei der nichtresonanten Frequenzverdreifachung in Krypton jedoch mit wesentlich höheren Dichten und Laserintensitäten arbeiten kann, erzielt man in beiden Medien vergleichbare Konversionen im Kleinsignalbereich.

Der zentrale Prozeß bei der Begrenzung der Konversion, sowohl bei der resonanten, als auch bei der nichtresonanten Frequenzverdreifachung, ist die Zerstörung der Phasenanpassung bei hohen Eingangsintensitäten. Im nichtresonanten Fall geschieht dies durch die Intensitätsabhängigkeit der Brechungsindices (Kerr-Effekt), im resonanten durch Änderung der Besetzung der atomaren Niveaus durch die 2-Photonen-Absorption. Die quantitative Analyse dieser Prozesse setzt die Kenntnis der atomaren Suszeptibilitäten voraus.

Für Be wurden diese Werte in Coulomb-Näherung berechnet und die Optimierung der Frequenzverdreifachung numerisch durchgeführt. Danach lassen sich exakt auf der 2-Photonen-Resonanz bei Eingangsintensitäten von 10^8 W/cm^2 Konversionsraten von 10^{-3} erreichen. Bei höheren Eingangsintensitäten ist die Konversion weiter zu steigern, wenn man die Laserfrequenz neben die Resonanz abstimmt, da der 2-Photonen-Absorptions-Querschnitt neben der Resonanz stärker abnimmt als die für die Konversion relevante Suszeptibilität $|\chi_T^{(3)}(3\omega)|$. Die theoretische Grenze liegt dann im Prozentbereich und wird wesentlich durch den Wert des Ionisationsquerschnitts aus dem angeregten 2s3s-Niveau bestimmt.

Für den Grenzfall der nichtresonanten Frequenzverdreifachung wurde erstmals eine analytische Näherung für fokussiertes Licht unter Berücksichtigung des Kerr-Effektes abgeleitet, die einerseits die experimentelle Bestimmung der nichtlinearen Suszeptibilitäten von Kr gestattet, und andererseits die Optimierung des Kr/Ar-Systems ermöglichte. Außerdem wurde der durch die Multimode-Struktur der Laserstrahlung bedingte Einfluß von Intensitätsfluktuationen auf die Erzeugung der 3. Harmonischen

untersucht. Die Rechnung zeigt, daß die Konversion bei dem hier verwendeten Laser um einen Faktor 6 höher ist als bei Verwendung eines Monofrequenz-Lasers, und die relativen Schwankungen von Schuß zu Schuß kleiner sind als 15 %.

Alle Experimente wurden mit einem frequenzverdoppelten, Rubinlaser gepumpten Farbstofflasersystem durchgeführt, das zwischen 362.3 nm und 367.3 nm abgestimmt werden konnte. Aus der Dichte- und Intensitätsabhängigkeit der in reinem Krypton erzeugten Lyman-Alpha-Strahlung konnten die Werte der nichtlinearen Suszeptibilitäten von Krypton bis zur 5. Ordnung der Störungsrechnung bestimmt und damit der optimale Wert für das Produkt aus Dichte, Intensität und konfokalem Parameter in einer Kr/Ar-Mischung angegeben werden. Unter Berücksichtigung der Druckverbreiterung der Kr-Resonanzlinie bei 123.85 nm ist der optimale Kr-Druck $1.5 \cdot 10^3$ Torr. Die Dichteabhängigkeit der Schwellintensität für laserinduzierten Gasdurchbruch führt zu einer Intensität im Fokus von $5 \cdot 10^9$ W/cm^2. Mit dem hier verwendeten Lasersystem erzielt man dann maximal eine Konversion von $1.4 \cdot 10^{-4}$ bei dem optimalen Kr/Ar-Mischungsverhältnis von 2.17. Bei Spitzeneingangsleistungen von 3 MW entspricht dies einer Lyman-Alpha-Leistung von 420 W bzw. 2.6×10^{12} Photonen pro 10 ns-Puls. Die numerische Extrapolation dieser Meßergebnisse zeigt, daß bei höheren Eingangsleistungen die maximale Konversion weiter gesteigert werden kann. Die Grenze, die durch die Selbstfokussierung des Systems gegeben ist, liegt bei etwa 10^{-3} bei Eingangsleistungen von 10 MW.

Entscheidend für die Experimente mit Beryllium war die Entwicklung eines chemisch stabilen Ofens, in dem bei Temperaturen bis 1800° C Be-Dampf mit einem Druck von 10 Torr erzeugt werden kann. Nach Überwindung dieses technologischen Problems konnte bereits in einer nichtoptimierten Anordnung eine Konversion von 3×10^{-4} erzielt werden. Bis zu den höchsten Eingangsintensitäten von 5×10^8 W/cm^2 war kein Sättigungsverhalten des VUV-Signals zu erkennen. Dies entspricht dem Ergebnis der numerischen Modellrechnung. Hiernach sollte auch eine Steigerung der Konversion bis über 10^{-3} durch eine Verbesserung des Be-Ofens, selbst bei Eingangsleistungen von einigen MW möglich sein. Dann wären allerdings auch mit Farbstofflasern bei 364.8 nm, die von einem käuflichen Excimerlaser gepumpt würden, Lyman-Alpha-Pulse von einigen kW mit Wiederholfrequenzen von bis zu 50 Hz möglich. Mit einer solchen Lyman-Alpha-Quelle könnten dann Streuexperimente an großen Fusionsplasmen durchgeführt werden.

Inhaltsverzeichnis

I. Einleitung 1

II. Lyman-Alpha-Resonanzfluoreszenz als Plasmadiagnostik 3

III. Theorie

1. Allgemeine Beschreibung der Frequenzverdreifachung 4
2. Wahl des nichtlinearen Mediums 10
3. Grenzen der Konversion 13
4. Analytische Näherung für nichtresonante Frequenzverdreifachung unter Berücksichtigung des Kerr-Effekts 20
5. Einfluß der Multimode-Struktur der Laserstrahlung 26

IV. Experimenteller Aufbau

1. Das Laser-System 29
2. Die Frequenzverdopplung 31
3. Die Kryptonzelle 32
4. Der Berylliumofen 33

V. Experimentelle Ergebnisse

1. Bestimmung der nichtlinearen Suszeptibilitäten von Kr 35
2. Optimierung der Lyman-Alpha-Erzeugung in Kr 41
3. Phasenanpassung in Hochdruck Kr/Ar-Gemischen 45
4. Ergebnisse der Frequenzverdreifachung in Be 49

VI. Schlußbemerkung 51

Anhang 52

Literaturverzeichnis 57

1. Einleitung

Die nichtlineare Optik hat es ermöglicht, den Spektralbereich der kohärenten Lichtquellen wesentlich zu erweitern /1,2/. Mittels optisch nichtlinearer Prozesse in Gasen /3/ und in Metalldampf-Edelgassystemen /4/ ist es gelungen, den Bereich jenseits der Absorptionsgrenze von nichtlinearen Kristallen, die bei etwa 200 nm liegt, zu erschließen. Zwar gibt es im VUV Bereich ($\lambda < 200$ nm) in jüngster Zeit auch leistungsstarke Excimer-Laser, aber diese Systeme haben große Linienbreiten (> 0.1 nm) und sind nur beschränkt abstimmbar /5/. Für Anwendungen, bei denen es auf kleine Linienbreiten und auf breite Durchstimmbarkeit ankommt, wie z.B. bei der Atom- und Molekülspektroskopie /6/, sind die Excimer Laser daher nur bedingt geeignet. Hier erweisen sich optisch nichtlineare Prozesse, wie die Frequenzverdreifachung ($\omega_3 = \omega_1 + \omega_1 + \omega_1$), die Summenfrequenz- ($\omega_3 = 2\omega_1 + \omega_2$) bzw. die Differenzfrequenzerzeugung ($\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$) als vorteilhaft. Mit diesen Methoden können die im Sichtbaren erreichten guten Eigenschaften der durchstimmbaren Laser, wie kleine Linienbreiten, geringe Divergenz und weite Abstimmbarkeit, in den Bereich des VUV übertragen werden. Damit ist es heute möglich, den Bereich von 100 - 200 nm nahezu lückenlos zu überdecken /2/. Die spektralen Leistungsdichten liegen dabei um Größenordnungen über denen von Synchrotrons /7/ oder von Hochdruckentladungslampen /8/, die bisher zur Spektroskopie im VUV herangezogen wurden.

Ein wichtiger Spektralbereich im VUV ist das Gebiet um die Wasserstoff-Lyman-Alpha-Linie bei 121.567 nm. Wegen der Bedeutung des atomaren Wasserstoffs in der Atomphysik, der Astrophysik und der Plasmaphysik sind in letzter Zeit, vor allem nach der Entwicklung leistungsstarker Farbstofflaser im Bereich der dreifachen Lyman-Alpha-Wellenlänge /9, 10, 11/, zahlreiche Versuche unternommen worden, intensive Lyman-Alpha-Strahlung durch Frequenzverdreifachung zu erzeugen. Entscheidend für die Anwendung ist dabei der Leistungskonversionsgrad, mit dem die UV- und die VUV-Strahlung umgewandelt werden kann.

Bei den ersten Versuchen erreichten Batishche et al. /12/ in Kr eine Konversion von lediglich 10^{-8}. McIlrath et al. /13/ erhöhten die Konversion in reinem Kr auf 10^{-5}. Daneben gab es Versuche, 2-Photonen-Resonanzen in Metalldämpfen zur Lyman-Alpha-Erzeugung auszunutzen. Wallace et al. /14/ erzielten in Mg-Dampf eine Konversion von nur 6×10^{-7} und McIlrath et al. /15/ in Be 3×10^{-7} durch Ausnutzung der ungünstigen 2s3d-Resonanz. In keiner dieser Veröffentlichungen findet sich eine Analyse der die Konversion begrenzenden Prozesse.

Die vorliegende Arbeit untersucht erstmals quantitativ die für die Lyman-Alpha-Erzeugung relevanten optisch nichtlinearen Prozesse. Sie zeigt, daß die bisher erreichte Konversion von 10^{-5} in reinem Kr durch die Intensitätsabhängigkeit der Brechungsindices begrenzt ist. Die Phasenanpassung in Hochdruck Kr/Ar-Gemischen führt, der Theorie entsprechend, zu einer Steigerung der Konversion auf 1.4×10^{-4} /16/. Die numerische Optimierung der 2-Photonen-resonanten Frequenzverdreifachung in Be-Dampf resultiert in der Erkenntnis, daß sich dieses optisch nichtlineare Medium ideal zur Erzeugung intensiver Lyman-Alpha-Strahlung eignet. Dies bestätigen auch Experimente, die bereits in einer nicht optimierten Anordnung eine Konversion von $3 \cdot 10^{-4}$ ergeben /17/.

Im folgenden Abschnitt II wird die Bedeutung intensiver Lyman-Alpha-Strahlung für die Plasmaphysik kurz erläutert. Abschnitt III beschreibt dann die Theorie der Frequenzverdreifachung, zeigt den Einfluß der verschiedenen optisch nichtlinearen Prozesse auf und nennt Kriterien für die Wahl des nichtlinearen Mediums. Die Grenzen der Lyman-Alpha-Erzeugung in Be werden anhand numerischer Rechnungen konkret dargestellt und die optimalen Parameter angegeben. Für den Grenzfall der nichtresonanten Frequenzverdreifachung wird eine analytische Näherung abgeleitet, die einerseits die experimentelle Bestimmung der nichtlinearen Suszeptibilitäten von Kr gestattet, und andererseits die Optimierung des Kr/Ar-Systems ermöglicht. Ferner diskutiert die Arbeit den Einfluß von Intensitätsfluktuationen, die durch die Multimode-Struktur der Laserstrahlung bedingt sind. Nach der Beschreibung des experimentellen Aufbaus im Abschnitt IV gelangen im Abschnitt V die Ergebnisse der Experimente und der Vergleich mit der Theorie zur Darstellung.

II. Lyman-Alpha-Resonanzfluoreszenz als Plasmadiagnostik

In einem magnetisch eingeschlossenen Fusionsplasma findet durch Diffusion zum Plasmarand ein ständiger Verlust von geladenen Teilchen statt. Im stationären Fall wird dieser Teilchenverlust durch ständige Ionisation neutralen Wasserstoffs ausgeglichen. Kennt man neben dem Elektronendichteprofil, das i.a. durch Thomsonstreuung gemessen wird, auch das Neutralgasdichteprofil, kann man die Ionisationsrate als Funktion des Ortes angeben und damit die Teilcheneinschlußzeit bzw. den Teilchendiffusionskoeffizienten als Funktion des Ortes bestimmen. Neben der Bestimmung der Teilcheneinschlußzeit als Funktion des Radius könnte aus dem radialen Neutralgasdichteprofil auch die Eindringtiefe des neutralen Wasserstoffs bei Gaseinlaß gemessen und die damit verbundene Frage nach dem Aufbau hochdichter Tokamakplasmen beantwortet werden. Außerdem könnte die Heizung durch Neutralteilcheninjektion genauer studiert werden.

Bisher stehen zur Messung des Neutralgasdichteprofils nur indirekte und daher relativ ungenaue Meßverfahren zur Verfügung, die teilweise bei großen Tokamak-Experimenten (z.B. JET) gar nicht einsetzbar sind /18/. Im Gegensatz dazu kann durch Messung der Lyman-Alpa-Resonanzfluoreszenz die Dichte der Wasserstoffatome im Grundzustand lokal gemessen werden. Daneben könnte man durch Abtasten des Dopplerprofils der Resonanzfluoreszenz mit einer abstimmbaren und schmalbandigen Lyman-Alpha-Quelle direkt die Temperatur des Neutralgases und die Neutralteilchenflüsse im Plasma messen.

Voraussetzung für ein Lyman-Alpha-Streuexperiment ist jedoch eine leistungsstarke Lyman-Alpha-Quelle, die nach Möglichkeit schmalbandig und abstimmbar sein sollte. Wegen der starken Hintergrund-Strahlung des Plasmas sind bei Impulslängen von typisch 10 ns Leistungen von 10 - 100 kW bei 121.6 nm erforderlich /19/. Diese Anforderungen gehen weit über das bisher in diesem Spektralbereich erreichte hinaus /13/.

Ein Ziel der vorliegenden Arbeit ist deshalb die Beantwortung der Frage: Sind optisch nichtlineare Prozesse überhaupt geeignet, die geforderten Lyman-Alpha-Leistungen zu erzeugen?

III. Theorie

1. Allgemeine Beschreibung der Frequenzverdreifachung

Aus den Maxwellgleichungen erhält man für die Wechselwirkung einer ebenen elektromagnetischen Welle mit einem homogenen und isotropen Medium die Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik /21/

$$\frac{d\hat{E}_q(t)}{dz} = i\,\frac{2\pi(q\omega)^2}{c^2\cdot k_q\cdot A_q(r,z)}\cdot \vec{P}_q^{NL}(t,\vec{r})\cdot e^{-ik_q\cdot z} - \frac{\sigma^{(1)}(q\omega)\cdot N}{2}\hat{E}_q(t); \quad (1)$$

$$q = 1,3 .$$

Dabei sind $\vec{E}_q(t,\vec{r}) = \hat{E}_q(t)\cdot A_q(r,z)\cdot e^{ik_q z}$ und $P_q^{NL}(t,\vec{r})$ die Fourierkomponenten des elektrischen Feldes und der nichtlinearen Polarisation beim q-fachen der Frequenz ω. Die Definition des Wellenvektors $k_q = n_q\cdot\frac{q\omega}{c}$ enthält den linearen Brechungsindex n_q. Alle übrigen Phasen sind in der komplexen Amplitude $\hat{E}_q(t)\cdot A_q(r,z)$ enthalten, wobei $\hat{E}_q(t)$ den zeitabhängigen und $A_q(r,z)$ den ortsabhängigen Anteil beschreibt. N ist die Teilchendichte des nichtlinearen Mediums und

$$\sigma^{(1)}(q\omega) = \frac{4\pi(q\omega)}{c}\cdot \mathrm{Im}\,\chi^{(1)}(q\omega) \quad (2)$$

der 1-Photonenabsorptionsquerschnitt bei der Frequenz $q\omega$. $\mathrm{Im}\,\chi^{(1)}(q\omega)$ ist der Imaginärteil der linearen Suzeptibilität

$$\chi^{(1)}(q\omega) = \sum_k \frac{|\mu_{k0}|^2}{\hbar(\omega_{k0} - q\omega)} . \quad (3)$$

μ_{ko} ist das Dipolmatrixelement des Übergangs zwischen den Zuständen $|o\rangle$ und $|k\rangle$ und $\omega_{ko} = \Omega_{ko} - i\Gamma_{ko}$ ist die entsprechende komplexe Übergangsfrequenz mit der Linienbreite Γ_{ko}. Im Falle der Frequenzverdreifachung und bei Beschränkung auf die 3. Ordnung Störungsrechnung erhält man für die nichtlinearen Polarisationen /21/

$$\vec{P}_1^{NL} = \frac{N}{4}\left\{3\chi_T^{(3)}(3\omega)\cdot\vec{E}_3\cdot\vec{E}_1^*\vec{E}_1^* + \chi_S^{(3)}(\omega)\cdot\vec{E}_1|\vec{E}_1|^2 + \chi_S^{(3)}(3\omega,\omega)\cdot\vec{E}_1|\vec{E}_3|^2\right\}$$

$$\vec{P}_3^{NL} = \frac{N}{4}\left\{\chi_T^{(3)}(3\omega)\cdot\vec{E}_1\cdot\vec{E}_1\cdot\vec{E}_1 + \chi_S^{(3)}(3\omega)\cdot\vec{E}_3|\vec{E}_3|^2 + \chi_S^{(3)}(3\omega,\omega)\cdot\vec{E}_3\cdot|\vec{E}_1|^2\right\} \qquad (4\,a)$$

Im Falle der Kleinsignalnäherung $(|E_3|^2 \ll |E_1|^2)$, die für die Beschreibung der Prozesse in der vorliegenden Arbeit ausreichend ist, gilt

$$\vec{P}_1^{NL} \simeq \frac{N}{4}\cdot\chi_S^{(3)}(\omega)\cdot\vec{E}_1|\vec{E}_1|^2$$

$$\vec{P}_3^{NL} \simeq \frac{N}{4}\left\{\chi_T^{(3)}(3\omega)\cdot\vec{E}_1\cdot\vec{E}_1\cdot\vec{E}_1 + \chi_S^{(3)}(3\omega,\omega)\cdot\vec{E}_3|\vec{E}_1|^2\right\} \qquad (4\,b)$$

Der Betrag der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi_T^{(3)}(3\omega)$ ist dabei für die Erzeugung der 3. Harmonischen verantwortlich.

Die Realteile der nichtlinearen Suszeptibilitäten $\chi_S^{(3)}(\omega)$ und $\chi_S^{(3)}(3\omega,\omega)$ beschreiben die Intensitätsabhängigkeit der Brechungsindices n_q (Kerr-Effekt) nach

$$n_q^2 - 1 = 4\pi N\cdot\mathcal{R}e\begin{cases}\chi^{(1)}(\omega) + \frac{1}{4}\chi_S^{(3)}(\omega)|E_1|^2, & q = 1;\\ \chi^{(1)}(3\omega) + \frac{1}{4}\chi_S^{(3)}(3\omega,\omega)|E_1|^2, & q = 3;\end{cases} \qquad (5)$$

Der Imaginärteil von $\chi_S^{(3)}(\omega)$ bestimmt mit

$$\sigma^{(2)}(\omega) = \frac{\pi \cdot \omega}{c} \, \mathrm{Im}\, \chi_S^{(3)}(\omega) \cdot |\vec{E}_1|^2 \tag{6}$$

den 2-Photonen-Absorptionsquerschnitt $\sigma^{(2)}(\omega)$, und der Imaginärteil von $\chi_S^{(3)}(3\omega,\omega)$ beschreibt den Verstärkungskoeffizienten g für stimulierte Raman-Streuung nach

$$g = \frac{3\pi\omega}{c} \, \mathrm{Im}\, \chi_S^{(3)}(3\omega,\omega) \cdot |\vec{E}_1|^2 . \tag{7}$$

Nach der Störungstheorie /22,42/ sind die Gleichungen für die nichtlinearen Suszeptibilitäten in guter Näherung gegeben durch

$$\chi_T^{(3)}(3\omega) \simeq \frac{1}{\hbar^3} \sum_{lmn} \frac{\mu_{ol}\,\mu_{lm}\,\mu_{mn}\,\mu_{no}}{(\omega_{lo}-\omega)(\omega_{mo}-2\omega)(\omega_{no}-3\omega)} \tag{8 a}$$

$$\chi_S^{(3)}(\omega) \simeq \frac{1}{\hbar^3} \sum \frac{\mu_{ol}\,\mu_{lm}\,\mu_{mn}\,\mu_{no}}{(\omega_{lo}-\omega)(\omega_{mo}-2\omega)(\omega_{no}-\omega)} \tag{8 b}$$

$$\chi_S^{(3)}(3\omega,\omega) \simeq \frac{1}{\hbar^3} \sum \frac{\mu_{ol}\,\mu_{lm}\,\mu_{mn}\,\mu_{no}}{(\omega_{lo}-3\omega)(\omega_{no}-3\omega)} \left\{ \frac{1}{(\omega_{mo}-4\omega)} + \frac{1}{(\omega_{mo}-2\omega)} \right\} \tag{8 c}$$

μ_{jk} sind die Dipolmatrixelemente und $\omega_{jk} = \Omega_{jk} - i\Gamma_{jk}$ die Übergangsfrequenzen der Atome des nichtlinearen Mediums und ω ist die eingestrahlte Laserfrequenz. Da für ein gegebenes Medium die Dipolmatrixelemente konstante Größen sind, kann durch geeignete Wahl der Laserfrequenz ω die für die Frequenzverdreifachung verantwort-

liche Suszeptibilität $\chi_T^{(3)}(3\omega)$ resonant erhöht werden. Dabei ist aber zu bedenken, daß Resonanzen bei $\omega = \Omega_{\ell o}$ bzw. $3\omega = \Omega_{no}$ (siehe Gl. (2,3)) zur Absorption der Grundwelle bzw. der erzeugten 3. Harmonischen führt, da diese Übergänge dipol-erlaubt sind. Eine Erhöhung der 3. Harmonischen tritt jedoch auf, wenn die eingestrahlte Laserfrequenz auf die halbe Frequenz eines 2-Photonen-erlaubten Übergangs Ω_{mo} abgestimmt wird /23/. Bei sehr hohen Eingangsintensitäten $\Phi_1 = \frac{c}{8\pi}|\vec{E}_1|^2$ wird nach Gl. (6) jedoch die 2-Photonen-Absorption wirksam und die Konversion $\eta = \frac{\Phi_3}{\Phi_1}$ wieder beschränkt. (Im Einzelfall muß dann der Gültigkeitsbereich der Störungsrechnung überprüft werden).

In der Nähe der 2-Photonen-Resonanz gilt mit $\Delta = \Omega_{mo} - 2\omega$ und $\Gamma = \Gamma_{mo}$ nach Gl. (8 a - c)

$$|\chi^{(3)}|^2 = \underbrace{\left(\chi_{NR}^{(3)} + \frac{\Delta}{\Delta^2+\Gamma^2}\chi_R^{(3)}\right)^2}_{\mathrm{Re}\,\chi^{(3)}} + \underbrace{\left(\frac{\Gamma}{\Delta^2+\Gamma^2}\chi_R^{(3)}\right)^2}_{\mathrm{Im}\,\chi^{(3)}} \qquad (9)$$

$\chi_{NR}^{(3)}$ ist dabei die Dreifachsumme ohne den resonanten Term $\sum_{m \neq r}$ und $\chi_R^{(3)}$ die restliche Zweifachsumme multipliziert mit dem Resonanznenner $(\Delta - i\Gamma)$. Der Einfluß der 2-Photonen-Absorption, bestimmt durch $\mathrm{Im}\,\chi_f^{(3)}(\omega)$, wird deshalb durch geringes Verstimmen der Laserfrequenz ω von der Resonanz wieder reduziert. Dies geschieht, ohne eine wesentliche Verringerung von $|\chi_T^{(3)}(3\omega)|$ und damit der Ausbeute an Strahlung der 3. Harmonischen zu bewirken. Eine nahe 2-Photonen-Resonanz ist deshalb immer von Vorteil für die Frequenzverdreifachung bzw. die Summenfrequenzerzeugung $(\omega_3 = 2\omega_1 + \omega_2)$. Sind die Frequenzen ω_1 und ω_2 nahezu gleich, wie in dem später beschriebenen Fall der Lyman-Alpha-Erzeugung in Be, gilt für die Summenfrequenzerzeugung der gleiche Formalismus wie für die Frequenzverdreifachung, auf den sich die Arbeit im folgenden beschränkt.

Zu der 2-Photonen-Absorption ist noch anzumerken, daß der Betrag des Imaginärteils der dafür verantwortlichen nichtlinearen Suzeptibilität $\chi_f^{(3)}(\omega)$ natürlich möglichst

gering sein sollte. Das ist der Fall, wenn möglichst wenig Zwischenniveaus des nichtlinearen Mediums im Bereich der Laserfrequenz ω liegen.

Lösungen des Differentialgleichungs-Systems in Gl. (1,4 b) finden sich in der Literatur für verschiedene Fälle. Der übersichtlichste ist sicher der für vernachlässigbare 1- bzw. 2-Photonenabsorption, also $\sigma^{(2)} \cdot N \cdot L \ll 1$; $\sigma^{(1)}(q\omega) \cdot N \cdot L \ll 1$; $q = 1,3$; mit der Voraussetzung parallelen Lichts, d. h. A(r,z) = 1 in Gl. (1). Für die Konversion gilt dann

$$\eta = \Lambda^2 \cdot \left(\frac{\sin(\Delta k L/2)}{\Delta k \cdot L/2} \right)^2 \tag{10}$$

mit

$$\Lambda = 12\omega \left(\frac{\pi}{c}\right)^2 |\chi_T^{(3)}(3\omega)| \cdot N \cdot \Phi_1 \cdot L \tag{10 a}$$

wobei L die Länge des nichtlinearen Mediums ist. Ist die Differenz der Wellenvektoren der Fundamentalwelle und der 3. Harmonischen

$$\Delta k = \frac{3\omega}{c}(n_1 - n_3) = 0 \tag{11}$$

ist die Konversion optimal, d.h.

$$\eta_0 = \Lambda^2 . \tag{12}$$

In der Praxis wird Phasenanpassung ($\Delta k = 0$) erreicht durch Gasgemische /2/. Beispielsweise ist wegen der $5s4p^5$-Resonanz in Krypton bei 123.58 nm der Brechungsindex bei 121.6 nm geringer als bei 364.8 nm /13/. Durch Mischung von Krypton mit Argon, das bis 106.6 nm normal-dispersiv ist, läßt sich durch geeignetes Einstellen der Partialdrücke $\Delta k = 0$ bei 364.8 nm und 121.6 nm erreichen (siehe Fig. 1).

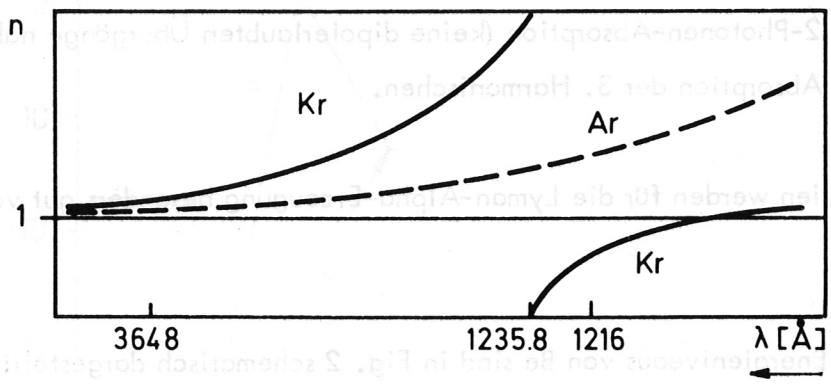

Fig. 1: Verlauf der Brechungsindices von Kr und Ar in Abhängigkeit der Wellenlänge λ

Die Vernachlässigung der Absorption der erzeugten 3. Harmonischen $(\sigma^{(1)}(3\omega) = 0)$ ist für viele Fälle unrealistisch, da die erzeugte VUV-Strahlung bereits im Absorptionskontinuum der meisten Elemente liegt. Für $\sigma^{(1)}(3\omega) = \sigma_3 \neq 0$ ergibt sich nach /24/

$$\eta_0 = \Lambda^2 \cdot \left(\frac{1 - \exp(-\sigma_3 \cdot NL/2)}{\sigma_3 \cdot NL/2} \right)^2 , \qquad (13)$$

d.h. die Konversion wird für $\sigma_3 \cdot N \cdot L \gtrsim 1$ drastisch verringert gegenüber dem absorptionsfreien Fall.

2. Wahl des nichtlinearen Mediums

Faßt man die Ergebnisse des vorigen Abschnitts kurz zusammen, so gibt es drei Kriterien, nach denen ein nichtlineares Medium für die Frequenzverdreifachung ausgewählt werden sollte:

(1) Eine nahe 2-Photonen-Resonanz
(2) Eine geringe 2-Photonen-Absorption (keine dipolerlaubten Übergänge nahe $\hbar\omega$)
(3) Eine geringe Absorption der 3. Harmonischen.

Diese drei Kriterien werden für die Lyman-Alpha-Erzeugung besonders gut von Beryllium erfüllt.

Die wichtigsten Energieniveaus von Be sind in Fig. 2 schematisch dargestellt.

Kriterium (1) wird durch die $2s^2$-2s3s-Resonanz erfüllt, die mit 54677.2 cm^{-1} (d.h. 2 Photonen der Wellenlänge 365.783 nm) im Abstimmbereich des bereits entwickelten Farbstofflaser-Systems /9/ liegt. Der nach Kriterium (2) geforderte Abstand des virtuellen Zwischenniveaus bei der Laserfrequenz ω = 27419.8 cm^{-1} zum $2s^2$-2s2p-Resonanz-Niveau bei 42565.3 cm^{-1} ist sehr groß. Daher ist ein kleiner 2-Photonen-Absorptions-Querschnitt zu erwarten.

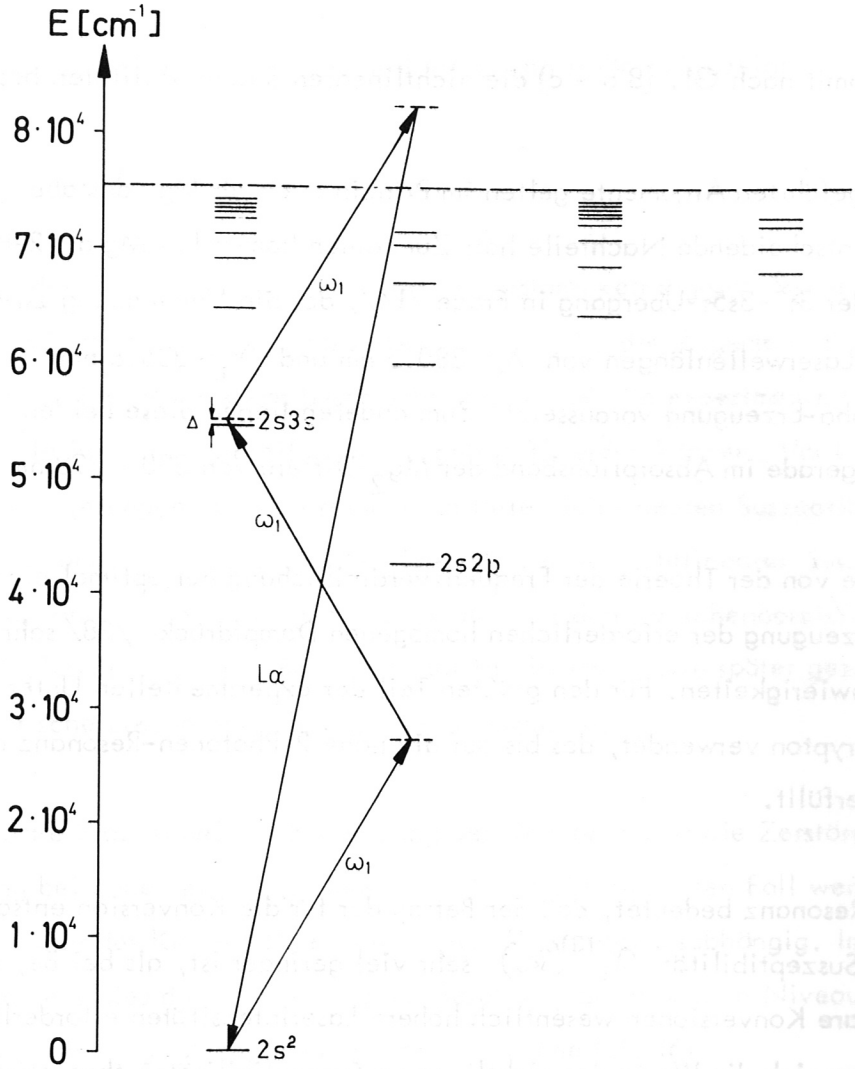

Fig. 2: Schema der Lyman-Alpha-Erzeugung in Beryllium

Die Lyman-Alpha-Frequenz liegt mit 82259.3 cm^{-1} deutlich über der Ionisationsgrenze von Be bei 75192.3 cm^{-1}. Der nach /25/ abgeschätzte Ionisationsquerschnitt von $\sigma_3 \simeq 4 \cdot 10^{-19} cm^2$ ist relativ gering und erfüllt auch Kriterium (3). (Der Wert für σ_3 konnte auch durch die in Abschnitt III.4 beschriebenen Experimente bestätigt werden.)

Außerdem lassen sich die Dipolmatrixelemente von Be - übrigens wie die aller Alkali- und Erdalkalielemente /26/ - ausgezeichnet in Coulomb-Näherung be-

rechnen und damit nach Gl. (8 a - c) die nichtlinearen Suszeptibilitäten bestimmen.

Die für Be aufgeführten Argumente gelten im Prinzip auch für Mg, das aber gegenüber Be zwei entscheidende Nachteile hat: Zum einen kommt bei Mg als 2-Photonen-Resonanz nur der $3s^2$-3s5s-Übergang in Frage /14/, der die Verwendung zweier verschiedener Laserwellenlängen von $\lambda_1 = 380.5$ nm und $\lambda_2 = 336.6$ nm zur Lyman-Alpha-Erzeugung voraussetzt. Zum anderen liegen diese beiden Wellenlängen gerade im Absorptionsband der Mg_2-Dimere von 300 - 390 nm /27/.

Obwohl sich Be von der Thoerie der Frequenzverdreifachung her optimal eignet, bereitet die Erzeugung der erforderlichen homogenen Dampfdrücke /28/ sehr große technische Schwierigkeiten. Für den größten Teil der experimentellen Untersuchungen wurde daher Krypton verwendet, das bis auf die nahe 2-Photonen-Resonanz die Auswahlkriterien erfüllt.

Die fehlende Resonanz bedeutet, daß der Betrag der für die Konversion entscheidenden nichtlinearen Suszeptibilität $\chi_T^{(3)}(3\omega)$ sehr viel geringer ist, als bei Be, und daher für vergleichbare Konversionen wesentlich höhere Laserintensitäten erforderlich sind. Außerdem lassen sich die Werte der nichtlinearen Suszeptibilitäten theoretisch nur sehr ungenau abschätzen, da die Dipolmatrixelemente unbekannt sind. In der Literatur finden sich lediglich Oszillatorstärken von Resonanzübergängen aus dem Grundzustand /29/ und ganz speziellen angeregten Niveaus /30/. Außerdem ist bei den schweren Edelgasen der Beitrag des Kontinuums wesentlich höher als der der Resonanzniveaus. Die Werte der nichtlinearen Suzeptibilitäten, deren Kenntnis eine Voraussetzung für die Optimierung eines optisch nichtlinearen Systems ist, wurden deshalb im Falle von Kr experimentell bestimmt (siehe Abschnitt V.1.). Voraussetzung für die Auswertung der Messung war die Ableitung einer analytischen Näherung der Lösung des Differentialgleichungssystem nach Gl. (1,4 b) für fokussiertes Licht unter Berücksichtigung des Kerr-Effektes.

Zunächst wird jedoch im nächsten Abschnitt der Einfluß der die Konversion begrenzenden

Prozesse am Beispiel der Frequenzverdreifachung in Be aufgezeigt.

3. Grenzen der Konversion

Selbst für den Fall ebener Wellen gibt es bislang keine geschlossene analytische Lösung des Differentialgleichungssystems, Gl.(1,4), die allgemein die Grenzen eines optisch nichtlinearen Systems beschreibt und aus der die experimentellen Parameter für optimale Frequenzverdreifachung abgeleitet werden können. Vor kurzem ist es Puell et al. gelungen, für den resonanten (alle nichtlinearen Suszeptibilitäten imaginär) /31/ und den nichtresonanten Grenzfall (alle nichtlinearen Suszeptibilitäten reell) /32/ analytische Lösungen anzugeben. Für den Zwischenbereich, der für die Lyman-Alpha-Erzeugung in Be interessant ist, ist man - wie später gezeigt wird - auf die numerische Lösung der Gleichungen angewiesen.

Der zentrale Prozess bei der Begrenzung der Konversion ist die Zerstörung der Phasenanpassung bei hohen Eingangsintensitäten. Im nichtresonanten Fall werden die Brechungsindices wegen des Kerr-Effektes (siehe Gl. (5)) intensitätsabhängig. Im resonanten Fall geschieht dies durch Änderung der Besetzung der atomaren Niveaus durch die intensitätsabhängige 2-Photonen-Absorption (siehe Gl. (6)).

Stellt man das System für eine bestimmte Intensität der Fundamental- bzw. Oberwelle durch geeignete Wahl der Partialdrücke auf $\Delta k = 0$ ein (siehe Abschnitt III.1.), so ändert sich Δk, wenn sich $\Phi_1(z)$ und/oder $\Phi_3(z)$ ändert. Das System kann nun auf einen optimalen Wert $\Delta k_0 \neq 0$ "vorgespannt" werden, der abhängt von der Eingangsintensität $\Phi_1 = \Phi_1(0)$ und dem Produkt $N \cdot L$ aus Dichte und Länge des nichtlinearen Mediums. Bei diesem optimalen Wert Δk_0 ergibt sich dann die optimale Konversion η_0 des Systems.

Für die Lyman-Alpha-Erzeugung in Be wurde diese Optimierung numerisch nach dem von Puell et al. entwickelten Modell /31/ durchgeführt, das sich bei der Beschreibung

von Experimenten zur resonanten Frequenzverdreifachung in Sr/Xe- und Mg/Kr-Gemischen bereits bewährt /31,33/. Diesem Modell liegt das in Fig. 3 gezeigte Termschema zugrunde. Die 2-Photonen-Absorption führt zur Besetzung des Niveaus $|2\rangle$, das zunächst spontan über das Zwischenniveau $|3\rangle$ wieder in den Grundzustand $|1\rangle$ zerfällt. Ist $\tau_2 > \tau_3$, baut sich mit der Zeit eine Überbesetzung in Niveau $|2\rangle$ auf, was zu stimulierter Emission von $|2\rangle$ nach $|3\rangle$ führt, wie in Sr beobachtet wurde /31/.

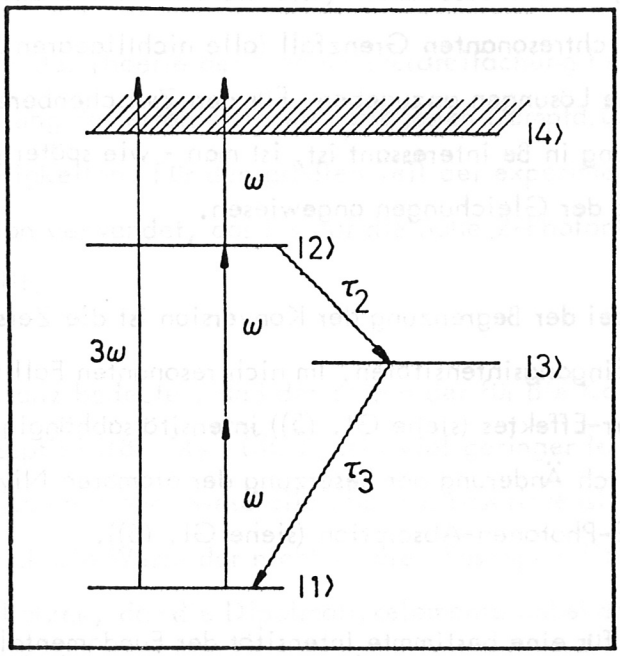

Fig. 3: Termschema zur numerischen Optimierung resonanter Frequenzverdreifachung

Die Anregung ins Kontinuum $|4\rangle$ wird vorläufig vernachlässigt. Die Besetzungsänderungen werden über ein Ratengleichungssystem berechnet, wobei die intensitätsabhängige Linienverbreiterung ("power broadening") und Änderung der Brechungsindices berücksichtigt werden. Zusätzlich wird die 1-Photonen-Absorption vom Grund-

zustand ins Kontinuum in Betracht gezogen, jedoch wird die Stark-Verschiebung der atomaren Niveaus des nichtlinearen Mediums vernachlässigt. Dies ist aufgrund der im allgemeinen wesentlich größeren Laserlinienbreite zulässig.

Simultan zu den Ratengleichungen wird das Differentialgleichungssystem nach Gl. (1,4) gelöst. Die dafür nötigen Suszeptibilitäten von Be werden dabei nach Gl. (3) und Gl. (8 a - c) mit den in Coulomb-Näherung berechneten Dipolmatrixelementen /22/ bestimmt. Die Werte der Suszeptibilitäten sind in Tab. 1 dargestellt.

Berechnete nichtlineare Suszeptibilitäten 3. Ordnung von Be

Suszeptibilität in esu	resonanter Anteil $\chi_R^{(3)}$ ($\Gamma = 1.0\ cm^{-1}$)	nichtresonanter Anteil $\chi_{NR}^{(3)}$
$\chi_T^{(3)}(3\omega)$	-2.1×10^{-32}	1.2×10^{-36}
$\chi_S^{(3)}(\omega)$	4.7×10^{-31}	-3.8×10^{-35}
$\chi_S^{(3)}(3\omega,\omega)$	1.9×10^{-33}	6.1×10^{-36}

Berechnete lineare Suszeptibilitäten von Be

Zustand	$\chi^{(1)}(\omega)$ in esu	$\chi^{(1)}(3\omega)$ in esu
$\|1\rangle$: $2s^2$	9.7×10^{-24}	-2.1×10^{-24}
$\|2\rangle$: 2s3s	-6.8×10^{-24}	-8.0×10^{-25}
$\|3\rangle$: 2s2p	-2.3×10^{-23}	1.2×10^{-24}

Mit einer maximalen erreichbaren Be-Dichte von $N = 5 \times 10^{16}\ cm^{-3}$, die durch die thermische Stabilität des Ofens bedingt ist, und einer effektiven Linienbreite des Übergangs $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ von $0.6\ cm^{-1}$ ($\simeq$ Dopplerbreite) ergibt sich für verschiedene Verstimmungen von der Resonanz $\Delta = \Omega_{r_0} - 2\omega$ die in Fig. 4 dargestellte optimale Konversion η_0 bei der jeweils optimalen Länge L_0 der Dampfzone für verschiedene Eingangsintensitäten Φ_1. Den jeweils optimalen Wert Δk_0 entnimmt man Fig. 5.

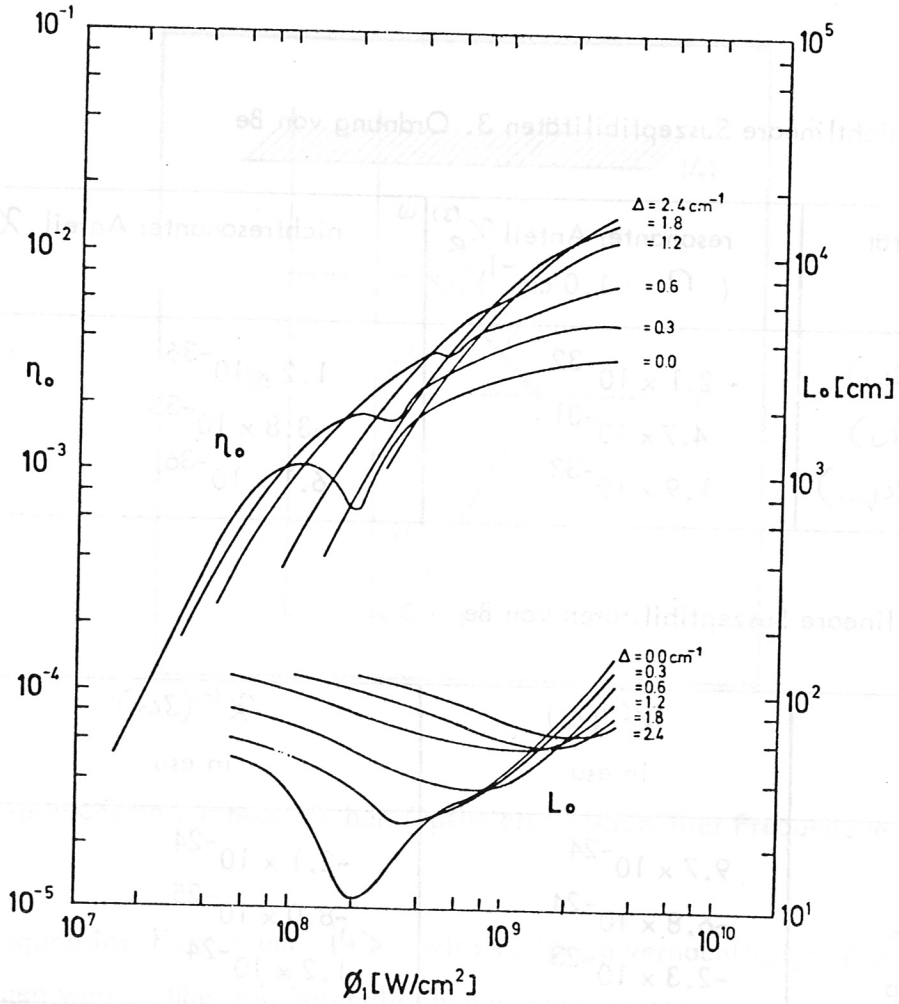

Fig. 4: Optimale Konversion η_0 und optimale Länge L_0 als Funktion der Eingangsintensität Φ_1

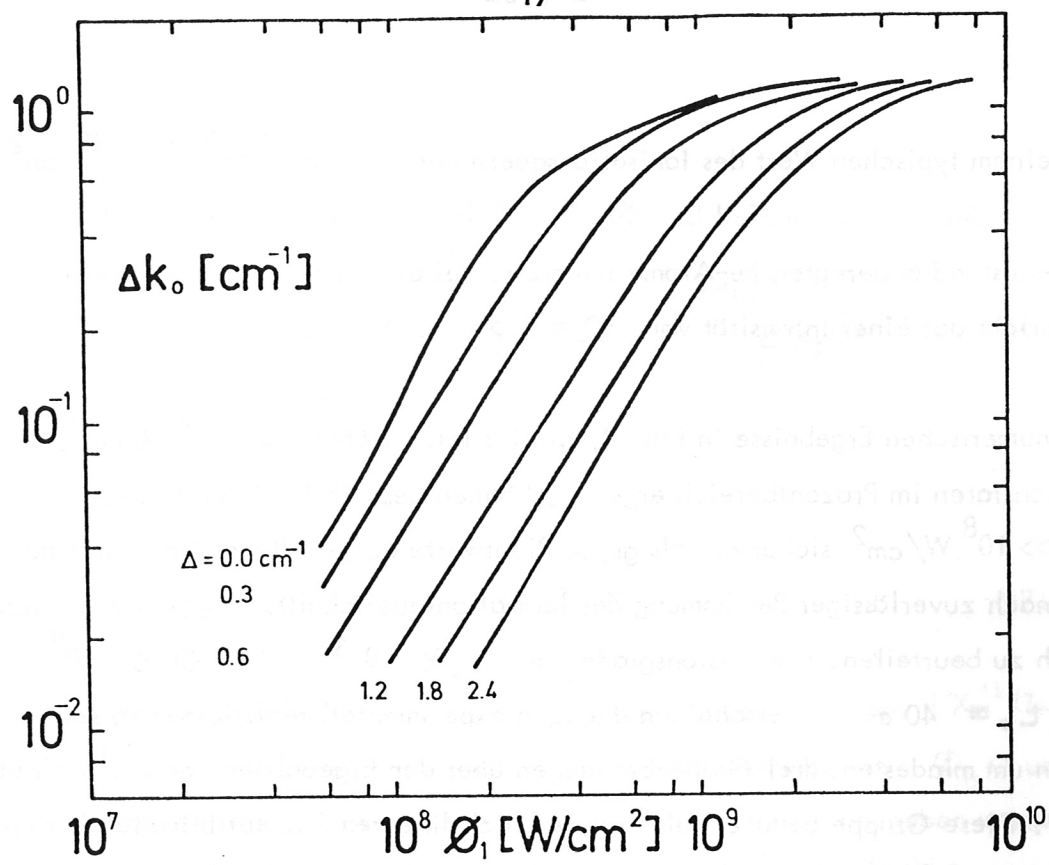

Fig. 5: Optimale Vorspannung Δk_0 als Funktion der Eingangsintensität Φ_1

Exakt auf der Resonanz $(\Delta=0)$ steigt die optimale Konversion η_0 zunächst proportional Φ_1^2 an, entsprechend der Kleinsignaländerung in Gl. (12). Die einsetzende 2-Photonen-Absorption führt dann zu einem Zwischenmaximum von $\eta_0 = 10^{-3}$ bei $\Phi_1 \simeq 10^8 \frac{W}{cm^2}$. Für $\Phi_1 \gtrsim 2\cdot 10^8 \frac{W}{cm^2}$ bleicht das System bezüglich der 2-Photonen-Absorption aus und η_0 steigt weiter mit Φ_1 an. Wie Fig. 4 zeigt, ist es in diesem Intensitätsbereich jedoch sinnvoller, die Laserfrequenz ω neben die Resonanz abzustimmen, denn der 2-Photonen-Absorptions-Querschnitt $\sigma^{(2)}(\omega)$ nimmt nach Gl. (6,9) neben der Resonanz stärker ab als die für die Konversion relevante Suszeptibilität $|\chi_T^{(1)}(3\omega)|$. Dabei darf nicht vergessen werden, daß bisher die Ionisation aus dem angeregten 2s3s -Niveau vernachlässigt wurde. Die Ionisationsrate $\frac{dN_{ion}}{dt}$ ist

$$\frac{dN_{ion}}{dt} = \sigma_{ion}(3s)\cdot N_{3s}\cdot\frac{\Phi_1}{\hbar\omega}. \qquad (14)$$

Mit einem typischen Wert des Ionisationsquerschnitts $\sigma_{ion}(3s) \simeq 10^{-19}$ cm^2 /25/ werden im Resonanzfall bei $\Phi_1 \cdot \tau = 2.5$ J/cm^2 bereits die Hälfte der in den 2s3s-Zustand angeregten Be-Atome ionisiert. Bei einer Laserpulsdauer von 10 ns entspricht das einer Intensität von $\Phi_1 = 2.5 \times 10^8$ W/cm^2.

Die numerischen Ergebnisse in Fig. 4, die für Intensitäten $\Phi_1 = 10^9$ W/cm^2 Konversionsraten im Prozentbereich ergeben, können deshalb für Intensitäten $\Phi_1 \gg 10^8$ W/cm^2 sicher nur als grobe Richtwerte aufgefaßt werden, und sind erst nach zuverlässiger Bestimmung des Ionisationsquerschnitts $\sigma_{ion}(3s)$ realistisch zu beurteilen. Konversionsgrade von $\eta_0 \gtrsim 10^{-3}$ bei $\Phi_1 \gtrsim 10^8$ W/cm^2 und $L_0 \simeq 40$ cm erscheinen dagegen experimentell realisierbar zu sein, und lägen um mindestens drei Größenordnungen über den Ergebnissen von McIlrath et al. /14/. Diese Gruppe benutzte die von den nichtlinearen Suszeptibilitäten her ungünstigere 2s3d-Resonanz und hatte vor allem Probleme mit der chemischen Stabilität ihres Be-Ofens. In Abschnitt III.4. wird gezeigt, wie man diese technischen Schwierigkeiten überwinden und dadurch die Ausbeute an Lyman-Alpha-Strahlung ganz erheblich steigern kann.

Experimentell bedeutsam ist allerdings auch der nichtresonante Grenzfall, wie die Ergebnisse der Lyman-Alpha-Erzeugung in Kr zeigen (Abschnitt V). Die für die Frequenzverdreifachung optimalen Parameter und Grenzen des nichtlinearen Systems können für diesen Fall in analytischer Form angegeben werden /32/.

Die in /32/ angegebenen Gleichungen, im wesentlichen die Lösungen elliptischer Integrale, lassen sich für den hier zutreffenden Fall stark vereinfachen. Da die Kerr-Suszeptibilität $\Delta\chi_S^{(3)} = \chi_S^{(3)}(\omega) - 2\chi_S^{(3)}(3\omega,\omega)$ groß ist gegen die konversionsbestimmende Suszeptibilität $\chi_T^{(3)}(3\omega)$ gilt

$$\eta_0^{max} = \left(\frac{16|\chi_T^{(3)}(3\omega)|}{|\Delta\chi_S^{(3)}|} \right)^{2/3} \qquad (15)$$

bei

$$(N \cdot \Phi_1 \cdot L)_{opt} = \frac{1}{12\omega\left(\frac{\pi}{c}\right)^2 |\chi_T^{(3)}(3\omega)|} \left(\frac{16|\chi_T^{(3)}(3\omega)|}{|\Delta\chi_S^{(3)}|}\right)^{1/3} \tag{16}$$

und

$$\Delta k_0 = -6\omega\left(\frac{\pi}{c}\right)^2 \cdot \Delta\chi_S^{(3)} \cdot N \cdot \Phi_1 \tag{17}$$

Man sieht, daß nur durch Kenntnis der nichtlinearen Suszeptibilitäten $|\chi_T^{(3)}(3\omega)|$ und $\Delta\chi_S^{(3)}$ die Grenzen und die experimentellen Parameter wie Φ_1, N und L für die optimale Frequenzverdreifachung eines Systems angegeben werden können. Mangels der nahen 2-Photonen-Resonanz ist jedoch $|\chi_T^{(3)}(3\omega)|$ wesentlich kleiner als beispielsweise bei Be. Das kann nach Gl. (17) im Falle von Kr teilweise durch wesentlich höhere Dichten, bzw. durch höhere Laserintensitäten kompensiert werden, da die Ionisationsquerschnitte (bei Kr für die nichtresonante 5-Photonen - Ionisation) wesentlich geringer sind als in quasi resonanten Medien /34/.

Im Allgemeinen muß noch beachtet werden, daß für sehr hohe Eingangsleistungen $W_1 > W_{cr}$ mit

$$W_{cr} = \frac{(1.22 \cdot \lambda)^2 \cdot c}{128\pi \cdot N \cdot \chi_S^{(3)}(\omega)} \tag{18}$$

die Differentialgleichung (1), Ausgangspunkt der Betrachtungen, wegen Selbstfokussierung des nichtlinearen Mediums /35/ ihre Gültigkeit verliert /21/. In den hier beschriebenen Experimenten spielt dieser nichtlineare Effekt jedoch keine

Rolle, wie in Abschnitt V.1. noch gezeigt wird.

Hohe Intensitäten erreicht man bei vorgegebener Leistung am einfachsten durch Fokussierung der Laserstrahlung. Gl. (10 - 17) gelten allerdings nur für paralleles Licht. Im folgenden Abschnitt wird deshalb ein Formalismus entwickelt, der die nichtresonante Frequenzverdreifachung allgemein, d.h. unter Berücksichtigung des Kerr-Effekts, für den experimentell relevanten Fall fokussierten Lichts beschreibt, und gestattet, mit einem einfachen Verfahren die benötigten nichtlinearen Suszeptibilitäten eines Mediums zu messen.

4. Analytische Näherung für nichtresonante Frequenzverdreifachung unter Berücksichtigung des Kerr-Effekts

Die Fourierkomponente des elektrischen Feldes bei der Frequenz $q\omega$ ist $\vec{E}_q(\vec{r},t) = \hat{E}_q(t) \cdot A_q(r,z) \cdot e^{ik_q \cdot z}$. Im Gegensatz zu parallelem Licht $(A_q(r,z)=1)$ ist bei fokussiertem Licht die z-Abhängigkeit der Amplitude von vornherein zu berücksichtigen. Für einen Gaußschen Strahl gilt nach /21/

$$A_q(r,z) = \frac{\exp(-k_q r^2/(b_q + i2z))}{(1 + i2z/b_q)} \tag{19}$$

mit dem konfokalen Parameter b_q

$$b_q = 2k_q \cdot r_{oq}^2 \tag{20}$$

Beim Radius r_{oq} ist die Intensität in der Fokustaille auf den 1/e-ten Teil abgesunken. Die Lösung der Differentialgleichung (1,4) läßt sich dann in integraler Form darstellen. Für die Intensitäskonversion $\eta = \frac{\Phi_3}{\Phi_1}$ gilt dann in Analogie zu Gl. (12)

$$\eta = \Lambda_f^2 \tag{21}$$

mit

$$\Lambda_f = 12\omega \left(\frac{\pi}{c}\right)^2 |\chi_T^{(3)}(3\omega)| \cdot N \cdot \Phi_1 \cdot b_1 \cdot |\mathcal{J}_\gamma(z_1, z_2, b_1, \Delta k)| \qquad (21\ a)$$

Das Phasenintegral $|\mathcal{J}_\gamma|$ ist dabei gegeben durch

$$\mathcal{J}_\gamma = \frac{1}{2b_1} \int_{-z_1}^{z_2} dz \, \frac{\exp\{i(\Delta k z + 2\gamma \cdot \mathrm{arctg}(2z/b))\}}{(1 + i2z/b)^2} \qquad (22)$$

mit dem Beitrag vom Kerr-Effekt

$$\gamma = 3\omega \left(\frac{\pi}{c}\right)^2 \cdot \Delta\chi_s^{(3)} \cdot N \cdot \Phi_1 \cdot b_1 \, . \qquad (23)$$

z_1 ist der Abstand vom Eintrittsfenster der Gaszelle zum Fokus, z_2 der vom Fokus zum Austrittsfenster, d.h. $z_1 + z_2$ ist die Länge L des nichtlinearen Mediums.

Wie die Lösung des Phasenintegrals $|\mathcal{J}_\gamma|$ im Anhang zeigt, lassen sich unter bestimmten Annahmen analytische Näherungen angeben, die für die Interpretation der Kr-Experimente wichtig sind.

Zunächst stellt sich ganz allgemein die Frage: Wie hängt bei gegebener Eingangsleistung die optimale Konversion η_0 vom Grad der Fokussierung ab? Ein Maß für die Fokussierung ist die Größe $\frac{b_1}{L}$, wobei der konfokale Parameter b_1 nach seiner Definitionsgleichung /36/

$$r_q^2 = r_{0q}^2 \left(1 + \left(\frac{2z}{b_q}\right)^2\right) \qquad (25)$$

einer effektiven Fokuslänge entspricht. Die numerische Lösung von $|\mathcal{J}_\gamma|$ als Funktion von $\frac{b_1}{L}$ zeigt (siehe Anhang), daß $\frac{b_1}{L} \lesssim 0.1$ eine optimale Fokussierung ist. Für abnehmendes $\frac{b_1}{L}$ nimmt in diesem Bereich $|\mathcal{J}_\gamma|^{max}$ nur unwesentlich zu. Anschaulich heißt das, daß bei stärkerer Fokussierung die Intensität Φ_1 im Fokus zwar immer höher, die effektive Länge b_1 des nichtlinearen Mediums aber immer kürzer wird.

Unter der Annahme vernachlässigbaren Kerr-Effekts $(\gamma = 0)$ läßt sich das Phasenintegral, wie erstmals von Ward und New gezeigt /37/, analytisch nähern zu

$$\mathcal{J}_0 = \pi \left(\frac{b_1 \Delta k}{2}\right) e^{-\frac{b_1 \Delta k}{2}} \quad , \Delta k > 0 \, . \tag{26}$$

Das Maximum von $\mathcal{J}_0$, das bei parallelem Licht $(b_1 \to \infty)$ bei $\Delta k_0 = 0$ liegt, ist bei $\Delta k_0 = \frac{2}{b}$, da es im Bereich des Fokus durch Beugungseffekte zur Phasenanomalie kommt. Dieser Effekt wird ausführlich diskutiert bei Born und Wolf /38/.

Die Tatsache, daß optimale Frequenzverdreifachung in fokussiertem Licht bei $\Delta k > 0$ auftritt, ermöglicht die Messung der nichtlinearen Suszeptibilitäten in einem reinen Gas, falls nach Gl. (11) für dieses Gas die Bedingung $n_1 - n_3 > 0$ für den relevanten Spektralbereich erfüllt ist. Nach Abschnitt II.1 ist das für die Lyman-Alpha-Erzeugung in reinem Kr der Fall. Die Konversion ist dann nach Gl. (21)

$$\eta = \left(6\pi\omega \left(\frac{\pi}{c}\right)^2 |\chi_T^{(3)}(3\omega)| \cdot N \cdot \Phi_1 \cdot b_1\right)^2 (b_1 \Delta k)^2 \cdot e^{-b_1 \Delta k} \tag{27}$$

Da nach Gl. (5,11)

$$\Delta k = \frac{6\pi\omega}{c} \Delta\chi^{(1)} \cdot N \tag{28}$$

mit

$$\Delta\chi^{(1)} = \chi^{(1)}(\omega) - \chi^{(1)}(3\omega) \tag{29}$$

ergibt sich die optimale Konversion η_0 für $\frac{d\eta}{dN} = 0$ bei der optimalen Dichte

$$N_0 = \frac{2}{\frac{3\pi\omega}{c} b_1 \cdot \Delta\chi^{(1)}} \tag{30}$$

zu

$$\eta_0 = 0.3\left(6\pi\omega\left(\frac{\pi}{c}\right)^2 |\chi_T^{(3)}(3\omega)| \cdot N_0 \cdot \Phi_1 \cdot b_1\right)^2 \tag{31}$$

Bei geringem Einfluß des Kerr-Effekts $(|\gamma|<1)$ gilt nach den Rechnungen im Anhang, daß $\mathcal{J}_\gamma^{max} \simeq \mathcal{J}_0^{max}$ und $\Delta k_0(\gamma) \simeq \Delta k_0(\gamma=0) - \frac{3}{b_1} \cdot \gamma$.

Damit ist

$$\eta_0(\gamma) \simeq \eta_0 \tag{32}$$

bei

$$N_0 = \frac{2}{\frac{3\pi\omega}{c} \cdot b_1 \left\{\Delta\chi^{(1)} + \frac{3\pi}{c} \cdot \Delta\chi_S^{(3)} \cdot \Phi_1\right\}} \tag{33}$$

Daher können aus der Intensitätsabhängigkeit der optimalen Dichte $N_0(\Phi_1)$ die Suszeptibilitäten $\Delta\chi^{(1)}$ und $\Delta\chi_S^{(3)}$ und aus $\eta_0(\Phi_1)$ die Suszeptibilität $\chi_T^{(3)}(3\omega)$ bestimmt werden. Nach dieser Messung im Kleinsignalbereich kann dann über Gl. (15 - 17) direkt auf die Grenzen des nichtlinearen Systems bzw. die Bedingungen für optimale Frequenzverdreifachung geschlossen werden. Für Intensitäten $\Phi_1 > \frac{\Delta\chi^{(1)}}{\frac{3\pi}{c}\Delta\chi_S^{(3)}}$ erreicht die optimale Konversion η_0 im reinen Gas nach Gl. (31,33) den Sättigungswert

$$\eta_0^{SAT} = 0{,}3\left(\frac{4\pi}{3}\cdot\left|\frac{\chi_T^{(3)}(3\omega)}{\Delta\chi_S^{(3)}}\right|\right)^2 \tag{35}$$

Für $|\Delta\chi_S^{(3)}| > |\chi_T^{(3)}(3\omega)|$ ist η_0^{SAT} kleiner als der theoretische Grenzwert η_0^{max} für Gasgemische in Gl. (15). Zur Steigerung der Konversion in Kr verwendet man daher Kr/Ar-Gemische. Dann ist

$$\Delta k = \frac{6\pi\omega}{c} N_{Kr}\,\Delta\chi_{Kr}\left(1 + R\cdot\frac{\Delta\chi_{Ar}}{\Delta\chi_{Kr}}\right) \tag{36}$$

mit dem Mischungsverhältnis $R = \frac{N_{Ar}}{N_{Kr}}$. Die optimale Konversion ergibt sich dann für $\frac{d\eta}{dR} = 0$ bei dem optimalen Mischungsverhältnis R_0

$$R_0 = \left(\frac{\Delta k_0(\gamma)}{\frac{12\pi\omega}{c}\cdot N_{Kr}\cdot\Delta\chi_{Kr}} - 1\right)\cdot\frac{\Delta\chi_{Kr}}{\Delta\chi_{Ar}} \tag{37}$$

zu

$$\eta_0 = \left(12\,\omega\left(\frac{\pi}{c}\right)^2 |\chi_T^{(3)}(3\omega)|\cdot N_{Kr}\cdot\Phi_1\cdot b_1\right)^2\cdot|\eta_\gamma^{max}|^2 \tag{38}$$

Wie die Rechnung im Anhang zeigt, ist auch für den Fall mit großem Kerr-Effekt ($|\gamma|>1$)

$$|\eta_\gamma^{max}|^2 \simeq 1 \tag{39}$$

Damit ist nach den Gl. (10,15,16) die maximal erreichbare Konversion für fokussiertes Licht gleich der für paralleles Licht, d.h.

$$\eta_0^{max} \simeq \left(16 \cdot \left|\frac{\chi_T^{(3)}(3\omega)}{\Delta\chi_S^{(3)}}\right|\right)^{2/3} \tag{40}$$

bei

$$(N \cdot \Phi_1 \cdot b_1)_{opt} \simeq \frac{1}{12\omega\left(\frac{\pi}{c}\right)^2 |\chi_T^{(3)}(3\omega)|}\left(16 \cdot \left|\frac{\chi_T^{(3)}(3\omega)}{\Delta\chi_S^{(2)}}\right|\right)^{1/3} \tag{41}$$

und dem optimalen Mischungsverhältnis R_0.

Kurz zusammengefaßt gilt für fokussiertes Licht:

(1) Bei konstanter Eingangsleistung ist die Fokussierung optimal bei $\frac{b_1}{L} \lesssim 0.1$

(2) Für $|\gamma|<1$ lassen sich aus $\eta_0(\Phi_1)$ und $N_0(\Phi_1)$ die Suszeptibilitäten $\Delta\chi^{(1)}, \Delta\chi_S^{(2)}, \chi_T^{(3)}(3\omega)$ experimentell bestimmen.

(3) Die durch den Kerr-Effekt begrenzte maximale Konversion eines nichtresonanten Mediums ist gleich der für paralleles Licht.

Entspricht die Intensitätsverteilung $\Phi_1(r,z)$ zwar der in einem Gaußschen Strahl, ist aber nicht beugungsbegrenzt wie bei einem TEM_{00}-Mode, so können für einen

nach Gl. (25) experimentell bestimmten konfokalen Parameter b_1 und der Intensität $\Phi_1 = \frac{W_1}{\pi r_{01}^2}$ ebenfalls die Gl. (30 - 41) übernommen werden, wie experimentelle Untersuchungen an Mg/Kr-Gemischen gezeigt haben /33/. Berechnet man dagegen den Wert für b_1 nach Gl. (20) (beugungsbegrenzt), kann das zu gravierenden Fehlern bei der Bestimmung der Intensität Φ_1 und damit des Absolutwertes der Suszeptibilität führen.

5. Einfluß der Multimode-Struktur der Laserstrahlung

Bei optisch nichtlinearen Prozessen ist es wegen der beugungsbegrenzten Divergenz sinnvoll, Laser zu verwenden, die in der transversalen Grundmode schwingen. Die weitere Beschränkung auf nur eine Längsmode bedeutet häufig einen Verlust an Laserleistung. Deshalb wird hier der Fall mehrerer Längsmoden theoretisch untersucht.

Die gleichzeitige Emission verschiedener Longitudinalmoden mit zufallsverteilten Phasen in einem Laserstrahl führt zu zeitlichen Intensitätsfluktuationen. Diese beeinflussen die Konversion bei optisch nichtlinearen Prozessen /39/. Für die zeitabhängige Amplitude der Fourierkomponente des elektrischen Feldes $\hat{E}_1(t)$ gilt

$$\hat{E}_1(t) = \sum_k E_{1k} \cdot e^{i(\varphi_k - \omega_k \cdot t)} , \tag{42}$$

wobei der Index k für die verschiedenen Longitudinalmoden steht. φ_k und ω_k sind die Phase bzw. die Frequenz der k-ten Mode. Ein Detektor mit der Fläche F und der Zeitkonstante T mißt am Ort z = 0 die zeitlich gemittelte Intensität

$$\overline{\Phi}_1 = \frac{c}{8\pi} \frac{1}{T} \int_0^T dt \, |\hat{E}_1|^2 . \tag{43}$$

Ist die Zeitkonstante des Detektors größer als der inverse Modenabstand $(T \gg (\omega_k - \omega_{k'})^{-1})$ und das ist für unser Experiment der Fall, dann gilt

$$\overline{\Phi_1} = \frac{c}{8\pi} \sum_k |E_{1k}|^2 . \tag{44}$$

Die gemessene Intensität der q-ten Harmonischen $\overline{\Phi_q}$ ist dann nach Gl. (1) proportional zur q-ten Potenz der zeitlich gemittelten Intensität der Fundamentalwelle d.h.

$$\overline{\Phi_q} = g^{(q)} \cdot \mathcal{C} \cdot \overline{\Phi_1}^{\,q} \tag{45}$$

mit der Intensitätskorrelationsfunktion $g^{(q)}$

$$g^{(2)} = \frac{\overline{\Phi_1^{\,q}}}{\overline{\Phi_1}^{\,q}} \tag{46}$$

und der Proportionalitätskonstante $\mathcal{C}$

$$\mathcal{C} = \left(\frac{2\pi (q\omega)^2}{c^2 \cdot k_q} \cdot \frac{N}{2^{q-1}} \cdot \chi^{(q)}(q\omega) \right)^2$$

$\overline{\Phi_1}^{\,q}$ ist nach Gl. (32) von den Phasen φ_k der einzelnen Moden unabhängig. $\overline{\Phi_1^{\,q}}$ hängt jedoch von den φ_k ab, variiert daher von Schuß zu Schuß und ist immer größer als $\overline{\Phi_1}^{\,q}$, d.h. die Konversion der Frequenzverdreifachung ist um den Faktor $g^{(3)}$ höher als im bisher beschriebenen Singlemode-Fall. Bei zufälliger Phasenverteilung ergibt sich für viele Schüsse ein Mittelwert $\langle g^{(q)} \rangle$ mit einer Schwankungsbreite $\Delta g^{(q)}$. In /40/ ist die Berechnung der Korrelationsfunktion dargestellt. Für die Frequenzverdreifachung (q = 3) ergibt sich für N Moden gleicher Intensität

$$\langle g^{(3)} \rangle = 6 - \frac{9}{N} + \frac{4}{N^2} \tag{47}$$

und aus numerischen Rechnungen

$$\left(\frac{\Delta g^{(3)}}{\langle g^{(3)}\rangle}\right)^{max} \simeq 0.15 \tag{48}$$

bei N = 30, d.h. $\Delta\lambda$ = 0.015nm. Für N $\gg$ 30 ist

$$\Delta g^{(3)} = \sqrt{\frac{3}{5N}} \tag{49}$$

Dieses Ergebnis zeigt, daß für die Frequenzverdreifachung ein Multimodelaser besser geeignet ist als einer, der nur auf einer Längsmode schwingt. Die Schwankungsbreite in der Konversion ist bereits bei 30 Moden kleiner als 15 % und nimmt weiter mit steigender Modenzahl ab. Im Falle der Lyman-Alpha-Resonanzstreuung an einer stark dopplerverbreiterten Linie bedeutet dies eine Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses /40/.

Der Einfluß verschiedener Transversalmoden auf $g^{(3)}$ ist unwesentlich. Es wird deshalb hier auf die unübersichtliche Rechnung verzichtet. Die Transversalmoden wirken sich jedoch über ihre verschiedenen konfokalen Parameter b_{nem} durch eine Verschmierung des Konversionsmaximus bei der optimalen Teilchendichte N_o in Gl. (30) aus /41/. Diese Tatsache wird bei der Interpretation der Meßergebnisse im übernächsten Abschnitt noch näher erläutert.

IV. Experimenteller Aufbau

Der Aufbau für die Lyman-Alpha-Erzeugung durch nichtresonante Frequenzverdreifachung in Krypton ist in Fig. 6 schematisch dargestellt. Die wesentlichen Komponenten sind das Rubinlaser-gepumpte Farbstofflaser-System /9/, der optisch nicht-

lineare Kristall zur Frequenzverdopplung und die Kryptonzelle für die Frequenzverdreifachung. Zur Untersuchung der quasiresonanten Frequenzverdreifachung in Berylliumdampf wird die Kryptonzelle durch einen Beryllium-Ofen ersetzt. Die einzelnen Komponenten werden im folgenden ausführlicher beschrieben.

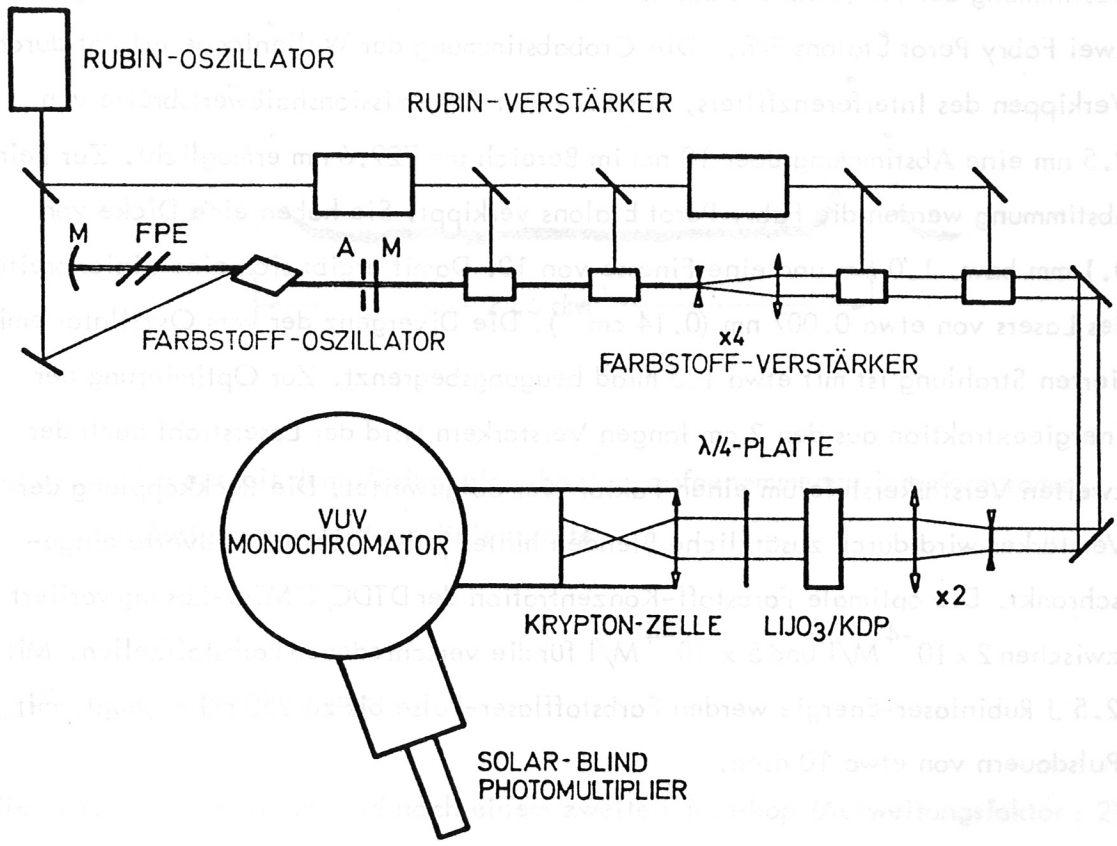

Fig. 6: Experimenteller Aufbau zur Lyman-Alpha-Erzeugung in Kr

1. Das Laser-System

Das Farbstofflaser-System besteht aus einem longitudinal gepumpten Oszillator und vier transversal gepumpten Verstärkerstufen. Der halbsphärische Oszillator-Resonator wird durch zwei dielektrische Spiegel M gebildet mit den Krümmungsradien R = 1 m und R = ∞ und den Reflexionsgraden 99.7 % und 65 %. Die 2 cm lange Farbstoff-

zelle ist unter dem Brewster Winkel im Resonator angeordnet, um die Verluste für linear polarisiertes Licht zu minimalisieren. Das Anschwingen höherer Transversalmoden als der TEM_{oo}-Grundmode wird durch Einsetzen der Modenblende A mit einem Durchmesser von 0.7 mm verhindert. Zur Einengung der Linienbreite und zur Abstimmung der Frequenz des Lasers dient ein Interferenzfilter in Verbindung mit zwei Fabry Perot Etalons FPE. Die Grobabstimmung der Wellenlänge erfolgt durch Verkippen des Interferenzfilters, das bei einer Transmissionshalbwertsbreite von 2.5 nm eine Abstimmung über 10 nm im Bereich um 729.6 nm ermöglicht. Zur Feinabstimmung werden die Fabry Perot Etalons verkippt. Sie haben eine Dicke von 0.1 mm bzw. 1.0 mm und eine Finesse von 10. Damit ergibt sich eine Linienbreite des Lasers von etwa 0.007 nm (0.14 cm^{-1}). Die Divergenz der vom Oszillator emittierten Strahlung ist mit etwa 1.3 mrad beugungsbegrenzt. Zur Optimierung der Energieextraktion aus den 2 cm langen Verstärkern wird der Laserstrahl nach der zweiten Verstärkerstufe um einen Faktor vier aufgeweitet. Die Rückkopplung der Verstärker wird durch zusätzliche Blenden hinter jeder Farbstoff-Küvette eingeschränkt. Die optimale Farbstoff-Konzentration der DTDC/DMSO-Lösung variiert zwischen 2×10^{-4} M/l und 5×10^{-4} M/l für die verschiedenen Farbstoffzellen. Mit 2.5 J Rubinlaser-Energie werden Farbstofflaser-Pulse bis zu 250 mJ erzeugt, mit Pulsdauern von etwa 10 nsec.

Die Wellenlänge des Lasers wird mit einem optischen Vielkanalysator (PAR-1205) in Verbindung mit einem Gitterspektrographen kontrolliert, der anhand des Emissionsspektrums einer He/Ne-Spektrallampe geeicht ist. Zur Bestimmung der Linienbreite wird dem Spektrographen ein Fabry Perot Interferometer vorgesetzt. Das Ringsystem wird dann durch den Spektrographen auf das Vidicontarget des Vielkanalanalysators abgebildet. Ein typisches Spektrum ist in Fig. 7 gezeigt. Die Energiemessung der Strahlung erfolgt durch ein Kalorimeter (Scientec 38-0101). Aus dem mit einer PIN-Diode (HP 1107) gemessenen Zeitverlauf des Laserpulses wird dann seine Leistung bestimmt. Die radiale Intensitätsverteilung und die Divergenz des Laserstrahls werden über die Abhängigkeit der Transmission vom Durchmesser einer Blende im Fokus einer 100 cm-Linse gemessen.

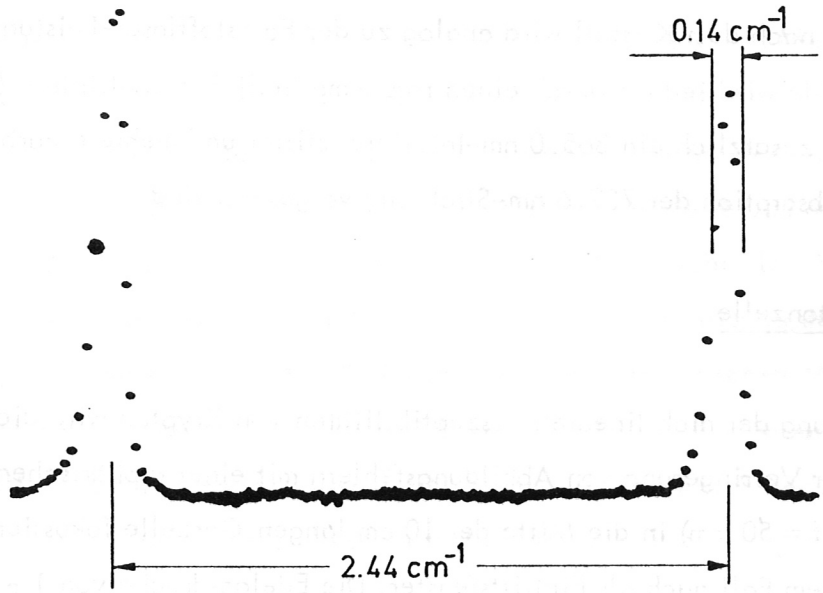

Fig. 7: Teil eines mit dem Vielkanalanalysator aufgenommenen Interferogramms zur Bestimmung der Laserlinienbreite

2. Die Frequenzverdopplung

Die 729.6 nm-Strahlung wird nach einem zweiten Teleskop (Aufweitungsfaktor : 2) in einem 5 mm langen $LiJO_3$-Kristall mit Konversionsgraden bis 12 % frequenzverdoppelt. Die $LiJO_3$-Kristalle werden bei höherer Intensität nach einigen Schüssen zerstört. Durch die Verwendung von 2 cm langen KDP-Kristallen konnte die Zerstörung vermieden werden, allerdings bei einem etwas geringeren Konversionsgrad von knapp 10 %. Die relativ geringen Kristallängen erweisen sich in Übereinstimmung mit der Theorie als optimal, wenn man die Wirkung der endlichen Divergenz und Linienbreite auf die Phasenanpassung durch Doppelbrechung berücksichtigt. Außerdem spielt der Wiederabbau der 2. Harmonischen bei den erzeugten UV-Intensitäten in Gegenwart des Feldes der Fundamentalwelle bereits eine Rolle. Die

UV-Leistung nach dem Kristall wird analog zu der Farbstofflaser-Leistung gemessen. Die PIN-Diode wird jedoch durch einen rotunempfindlichen Multiplier (S-5-Kathode) ersetzt, dem zusätzlich ein 365.0 nm-Interferenzfilter und mehrere Farbfilter (Schott BG38) zur Absorption der 729.6 nm-Strahlung vorgesetzt sind.

3. Die Kryptonzelle

Zur Bestimmung der nichtlinearen Suszeptibilitäten von Krypton wird die 364.8 nm-Strahlung zur Verringerung von Abbildungsfehlern mit einer asphärischen Linse (Brennweite f = 50 mm) in die Mitte der 10 cm langen Gaszelle fokussiert. Die Linse dient in diesem Fall auch als Eintrittsfenster. Die Edelgasdrücke von 1 - 10^3 Torr, wie sie für Messungen an reinem Kr benötigt werden, mißt ein Kapazitäts-Manometer (MKS-Baratron). Für die Messungen mit Kr/Ar-Gemischen wird der Gaszelle eine hochdruckfeste Edelgasmischapparatur vorgesetzt, die im wesentlichen aus einer hochvakuumdichten Gasumwälzpumpe besteht. Die für diese Untersuchungen notwendigen Drücke bis zu 10^4 Torr werden von einer piezoresistiven Kistler-Sonde gemessen. Zur Bestimmung der Phasenanpassung bei größerem konfokalen Parameter b_1 wird statt der 5 cm-Linse eine ebene Quarzplatte als Eintrittsfenster verwendet und die entsprechende Linse so justiert, daß der Fokus wieder im Zentrum der Kryptonzelle liegt.

Die VUV-Strahlung mißt man mit einem Solarblind-Photomultiplier (EMR 541G-0918) hinter einem Seya-Namioka-Monochromator. Mehrere mattgeschliffene MgF_2-Platten dienen als Abschwächer. Die Transmission des Systems kann durch Veränderung des Abstands der Mattscheiben zu einer Blende variiert werden.

Die absolute Lyman-Alpha-Leistung wird bestimmt, indem man den Monochromator durch zwei schmalbandige Lyman-Alpha-Interferenzfilter bekannter Transmission ersetzt und den Eichwert des Multipliers benutzt. Der Unterdrückungsfaktor der Inter-

ferenzfilter für die 364.8 nm-Strahlung reicht jedoch nicht aus, um kleinere Konversionsraten als 10^{-7} zu messen. Die Unterscheidung der 3. Harmonischen von der verbleibenden 364.8 nm-Untergrundstrahlung ist möglich, indem man vor die Kryptonzelle eine $\lambda/4$-Platte setzt. Diese erlaubt ohne Änderung der Strahlgeometrie den Wechsel von linear zu zirkular polarisiertem Licht. Die Frequenzverdreifachung zirkular polarisierten Lichts ist jedoch wegen Verletzung der Auswahlregel für Dipolübergänge ($\Delta m = 0, \pm 1$) in inversionssymmetrischen Medien wie einatomigen Gasen nicht möglich. Bei hohen Drücken ($> 10^3$ Torr) wird wegen der extremen Druckverbreiterung der Resonanzlinie bei 123.58 nm die Absorption der Lyman-Alpha-Strahlung in Kr bedeutend /53/. Diese wird stationär mit einer Hinteregger-Lampe /44/ gemessen.

4. Der Berylliumofen

Wegen der erforderlichen Be-Dampfdrücke liegt die Arbeitstemperatur des Ofens im Bereich von 1500 - 1800°C. Deshalb mußten zum Ofenbau hochtemperaturfeste Materialien verwendet werden. Ein Querschnitt der Anordnung ist in Fig. 8 gezeigt.

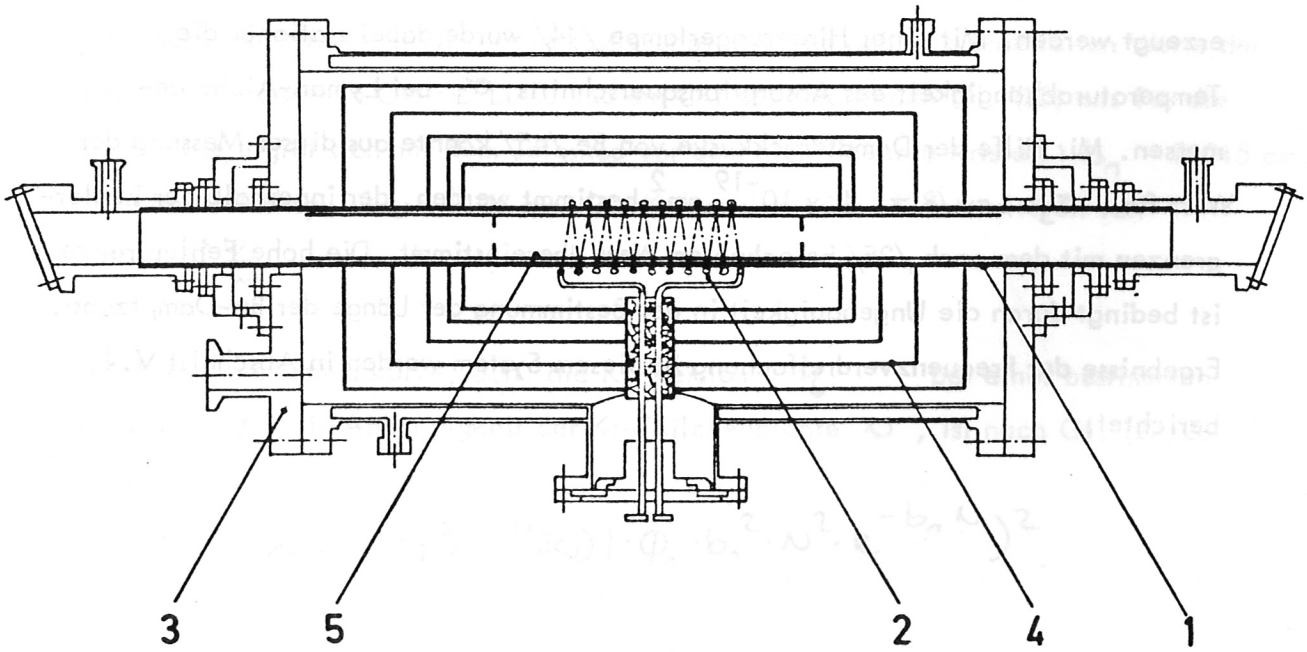

Fig. 8: Schematischer Aufbau des Be-Ofens

Das Tantal-Rohr (1) wird induktiv geheizt. Die wassergekühlte Kupferspule (2) kann maximal 20 kW bei 200 kHz auf das Ta-Rohr übertragen. Dieses sitzt in einem doppelwandigen Hochvakuumkessel (3) und ist, wie die Stutzen für Ein- und Austrittsfenster über Vitonringe gedichtet. Alle Dichtringe, sowie der gesamte Hochvakuum-Kessel werden wassergekühlt. Zur Verringerung der Strahlungsverluste dienen fünf Molybdän-Abschirmbleche (4) . Zusätzlich wurde die Kupferspule vergoldet, um die Absorption zu verringern.

Der Heatpipe-Betrieb nach herkömmlichen Verfahren /28/ - das Ta-Rohr ist dabei mit feinem Maschengitter aus Metalldrähten als Docht ausgekleidet - war nicht möglich. In Zusammenarbeit mit dem MPI für Metallforschung wurde festgestellt, daß sich oberhalb 1400°C alle hochschmelzenden Metalle in flüssigen Beryllium lösen. Deshalb wurde das Ta-Rohr innen mit Al_2O_3-Keramik (5) ausgekleidet und zur Wärmeisolation an den beiden Enden der 20 cm langen Heizzone mit je fünf Keramik- bzw. blanken Molybdän-Blenden versehen. Die Temperatur des Ta-Rohres wird über ein W/Rh-Thermoelement, bzw. mittels eines Pyrometers bestimmt.

In dieser Anordnung konnten Be-Dichten von bis zu 5×10^{16} cm^{-3} ($\hat{=}$ 10 Torr) erzeugt werden. Mit einer Hintereggerlampe /44/ wurde dabei stationär die Temperaturabhängigkeit des Absorptionsquerschnitts σ_3 bei Lyman-Alpha gemessen. Mit Hilfe der Dampfdruckkurve von Be /45/ konnte aus dieser Messung der Wert für σ_3 zu $(8 \pm 4) \times 10^{-19}$ cm^2 bestimmt werden, der innerhalb der Fehlergrenzen mit dem nach /25/ berechneten Wert übereinstimmt. Die hohe Fehlergrenze ist bedingt durch die Ungenauigkeit in der Bestimmung der Länge der Be-Dampfzone. Ergebnisse der Frequenzverdreifachung in diesem System werden in Abschnitt V.4. berichtet.

V. Experimentelle Ergebnisse

Für eine quantitative Analyse der verschiedenen, die Konversion beeinflussenden optisch nichtlinearen Prozesse werden die entsprechenden nichtlinearen Suszeptibilitäten von Krypton experimentell bestimmt. Die Werte der gemessenen Suszeptibilitäten gestatten dann eine Angabe der maximal möglichen Konversion dieses Systems und die Optimierung der experimentellen Parameter für die Lyman-Alpha-Erzeugung in Kr/Ar-Gemischen. Auf diese Weise wird im Experiment die Konversion in Übereinstimmung mit der Theorie gegenüber der bisher in reinem Kr gemessenen von 10^{-5} um mehr als eine Größenordnung auf 1.4×10^{-4} gesteigert.

1. Bestimmung der nichtlinearen Suszeptibilitäten von Kr

Kennt man den konfokalen Parameter b_1 und die Intensität Φ_1 im Fokus des Laserstrahls, kann man nach dem in Abschnitt III.4. abgeleiteten Formalismus die nichtlinearen Suszeptibilitäten von Kr messen.

Zur Bestimmung von b_1 mißt man die radiale Intensitätsverteilung und die Divergenz des Laserstrahls am Ort der Fokussierungslinse und paßt die ermittelten Werte der Strahldurchmesser am Ort der Linse und am Ort des Fokus nach Gl. (25) an. Für die 5 cm-Linse ergibt sich mit dem Teleskop vor dem nichtlinearen Kristall $b_1 = 0.015$ cm, ohne das Teleskop $b_1 = 0.06$ cm. Die Konversion wird bei Intensitäten von $10^9 - 10^{11} \frac{W}{cm^2}$ untersucht.

Die Phasenanpassungskurve, d.h. die Konversion η bei einer bestimmten Intensität Φ_1 in Abhängigkeit der Kr-Teilchendichte N, ist nach Gl. (27,28)

$$\eta \sim \left(|\chi_T^{(3)}(3\omega)| \cdot \Phi_1 \cdot b_1^2 \cdot N^2 \cdot e^{-b_1 N}\right)^2 .$$

Sie hat ein Maximum bei der optimalen Teilchendichte $N_0(\Phi_1)$, aus der nach Gl. (33) der Wert der Suszeptibilitäten

$$\Delta\chi^{(1)} + \frac{3\pi}{c}\Delta\chi_s^{(3)}\Phi_1 = \frac{2}{\frac{3\pi\omega}{c} b_1 \cdot N_0(\Phi_1)}$$

folgt. Aus der Konversion η_0 bei der Teilchendichte N_0 ergibt sich nach Gl. (31,47)

$$|\chi_T^{(3)}(3\omega)| = (0.6\cdot\eta_0)^{1/2}\left(6\pi\omega\left(\frac{\pi}{c}\right)^2\cdot N_0\cdot\Phi_1\cdot b_1\right).$$

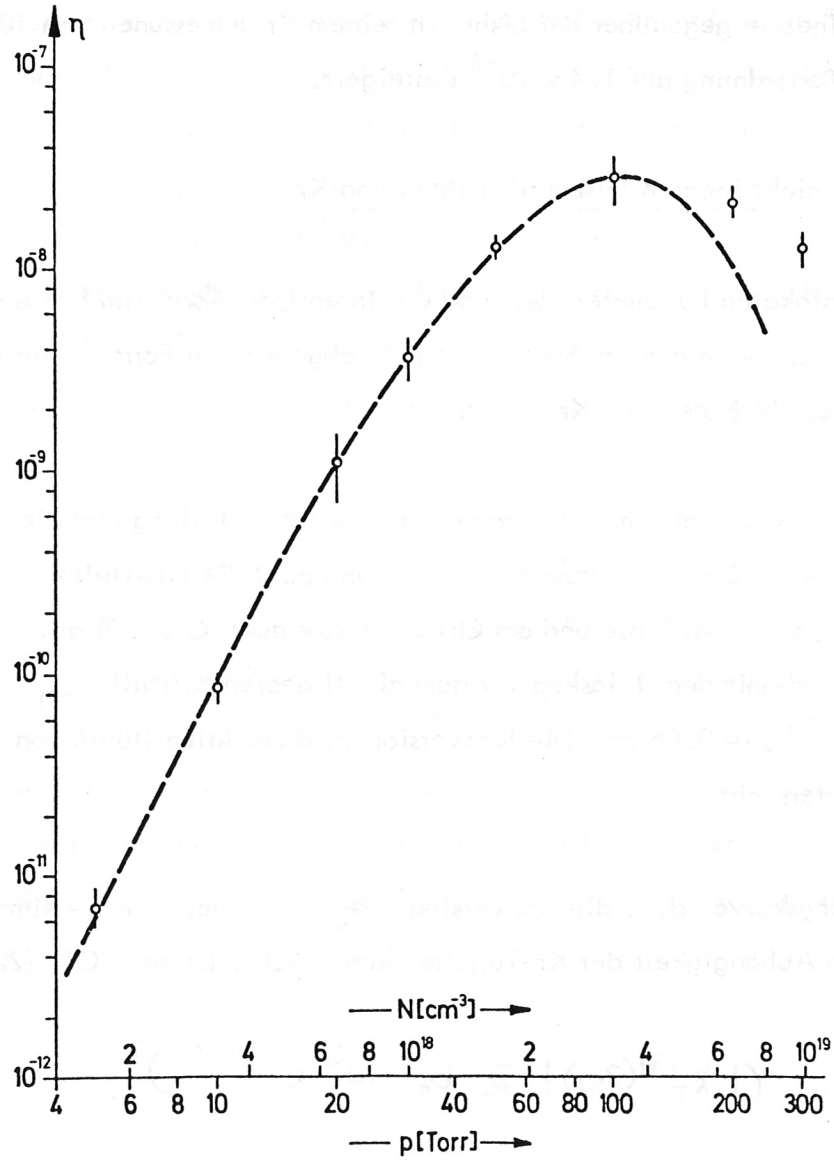

Fig. 9: Phasenanpassungskurve von reinem Kr bei einer Intensität von $10^9 \frac{W}{cm^2}$ und einem konfokalen Parameter $b_1 = 0.06$ cm

Fig. 9 zeigt eine bei geringer Intensität ($\Phi_1 = 10^9 \frac{W}{cm^2}$, $b_1 = 0.06\,cm$) gemessene Phasenanpassungskurve. Die gestrichelte Linie ist eine nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate angepaßte theoretische Kurve nach Gl.(27). Die Meßpunkte weichen für Dichten oberhalb N_o von der theoretischen Kurve ab. Das bedeutet, daß durch nichtlineare Verstärkung in den Farbstoffzellen neben der im Oszillator hauptsächlich erzeugten TEM_{oo}-Mode auch Transversalmoden mit kleineren konfokalen Parametern anwachsen und zur Frequenzverdreifachung beitragen. Dies führt dann zur Verschmierung der Phasenanpassungskurve zu höheren Dichten hin /41/. Aus Phasenanpassungskurven bei höheren Eingangsintensitäten erhält man die in Fig. 10 gezeigte Intensitätsabhängigkeit von $\Delta\chi = \Delta\chi^{(1)} + \frac{3\pi}{c}\Delta\chi_S^{(3)}\Phi_1$ und $\chi_T = \chi_T^{(3)}(3\omega)$

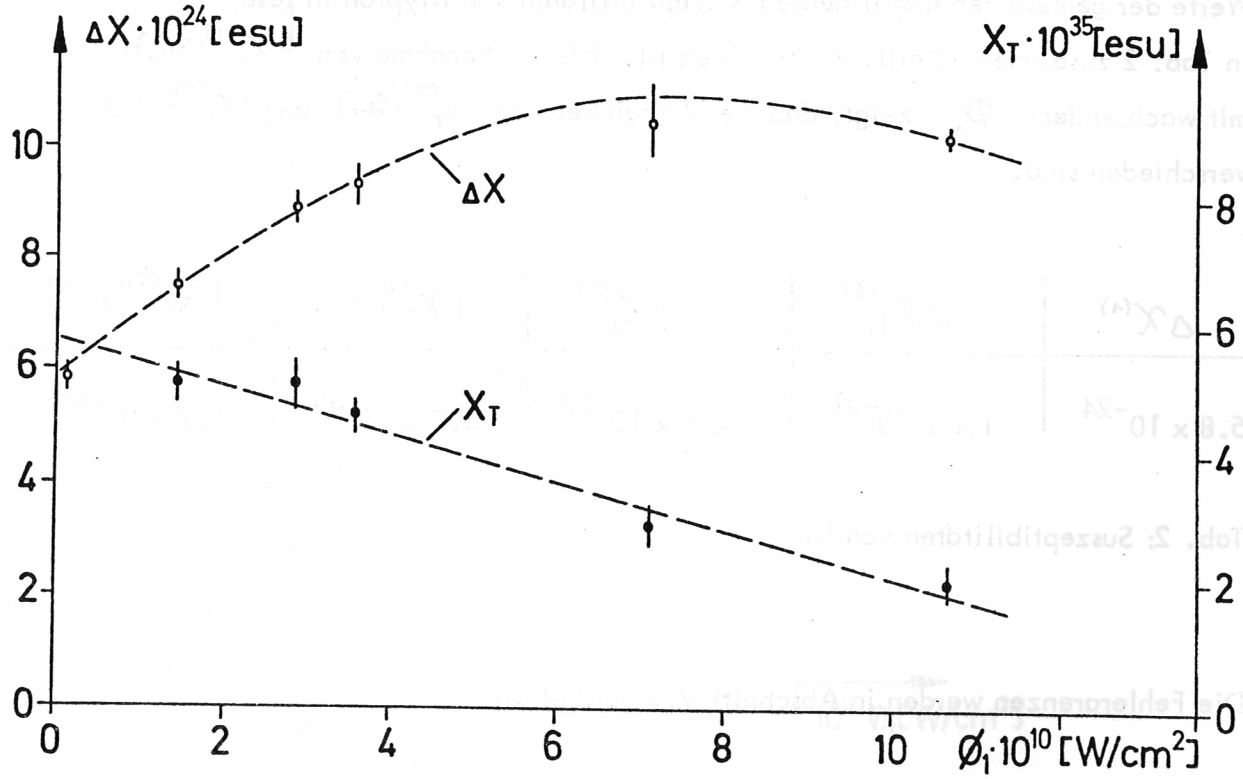

Fig. 10: Intensitätsabhängigkeit der Suszeptibilitäten $\Delta\chi$ und χ_T von Kr

Aus der Abweichung vom erwarteten Verlauf $\Delta\chi \sim \Phi_1$ und χ_T = const., der aus der Störungsrechnung bis zur 3. Ordnung folgt, erkennt man den Einfluß der Glieder 5. Ordnung. Diese dominieren bei Eingangsintensitäten Φ_1 oberhalb 4×10^{10} W/cm^2. Die bisher für den allgemeinen Fall bis zur 3. Ordnung abgeleiteten theoretischen Gleichungen müssen deshalb für diesen Bereich um die Terme 5. Ordnung erweitert werden. $\Delta\chi_S^{(3)}$ wird dann ersetzt durch $\Delta\chi_S^{(3)} + \frac{1}{4}\Delta\chi_S^{(5)} \cdot |\vec{E}_1|^2$ und $\chi_T^{(3)}(3\omega)$ durch $\chi_T^{(3)}(3\omega) + \frac{1}{4}\chi_T^{(5)}(3\omega)|\vec{E}_1|^2$. Die analytische Lösung des Phasenintegrals $\mathfrak{J}_\gamma$ wird dadurch unmöglich. Zur Bestimmung der Suszeptibilitäten 5. Ordnung von Kr werden deshalb die numerische Lösung der Gl. (1,4 b) unter Berücksichtigung der 5. Ordnung an die Phasenanpassungskurven für Intensitäten über 4×10^{10} W/cm^2 angepaßt. Die Werte der gemessenen nichtlinearen Suszeptibilitäten von Krypton in (esu) sind in Tab. 2 zusammengestellt. Zu beachten ist, daß die Abnahme von $|\chi_T^{(3)}(3\omega)|$ mit wachsendem Φ_1 zeigt, daß die Vorzeichen von $\chi_T^{(3)}(3\omega)$ und $\chi_T^{(5)}(3\omega)$ verschieden sind.

$\Delta\chi^{(1)}$	$\Delta\chi_S^{(3)}$	$\Delta\chi_S^{(5)}$	$\lvert\chi_T^{(3)}(3\omega)\rvert$	$\lvert\chi_T^{(5)}(3\omega)\rvert$
5.8×10^{-24}	1.6×10^{-31}	-4.8×10^{-40}	5.7×10^{-35}	1.7×10^{-43}

Tab. 2: Suszeptibilitäten von Kr

Die Fehlergrenzen werden in Abschnitt V.3. diskutiert.

Vernachlässigt man den nach numerischen Rechnungen relativ geringen Einfluß der Terme 5. Ordnung auf das Phasenintegral, dann geht der Sättigungswert η_0^{SAT} aus Gl. (35) über in

$$\eta_0^{SAT} = 0.7 \cdot 10^2 \left(\frac{\chi_T^{(5)}(3\omega)}{\Delta\chi_S^{(5)}} \right)^2 .$$

Mit den gemessenen Suszeptibilitäten liegt sein Zahlenwert bei

$$\eta_0^{SAT} \simeq 10^{-5}.$$

Wie Fig. 11 zeigt, stimmt dieses Ergebnis gut mit den Meßwerten überein.

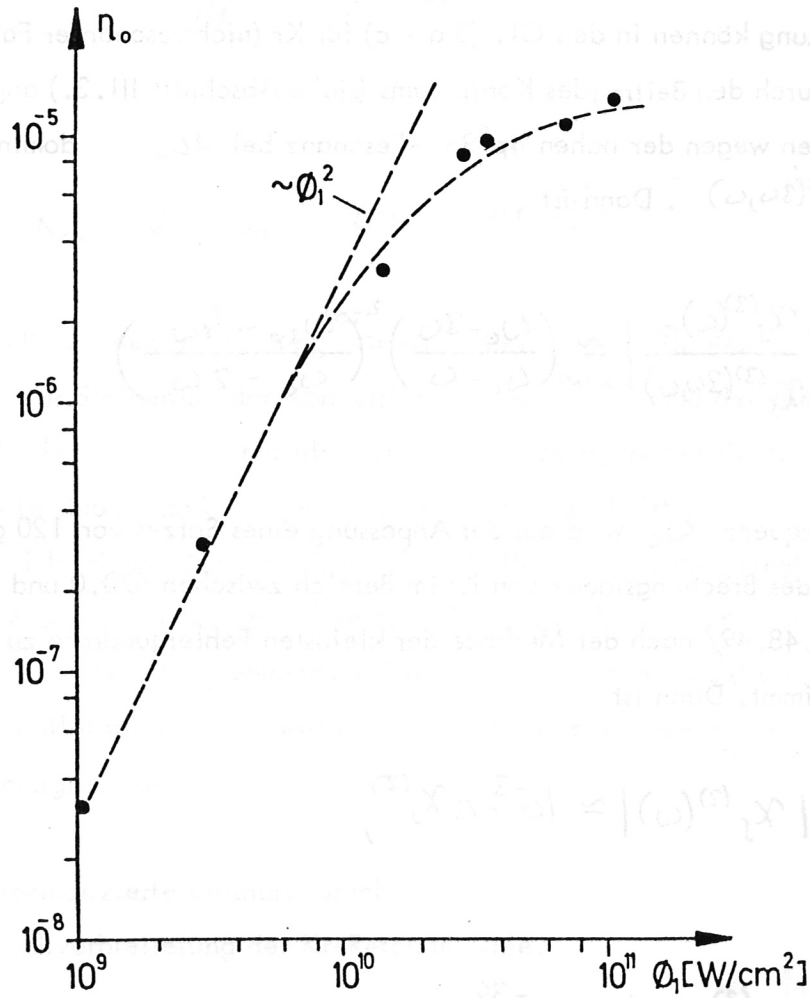

Fig. 11: Sättigungsverhalten der optimalen Konversion η_0 von Kr in Abhängigkeit der Intensität Φ_1

Die Messungen zur Bestimmung der nichtlinearen Suszeptibilitäten wurden alle mit dem kleineren konfokalen Parameter $b_1 = 0.015$ cm durchgeführt, um die not-

wendige Bedingung $|\gamma| < 1$ (siehe Gl. (23)) zu erfüllen. Dazu war es nötig, die Farbstofflaser-Strahlung entsprechend abzuschwächen.

Zur Abschätzung der Schwelle für Selbstfokussierung - nach Abschnitt III.3. maßgebend für den Gültigkeitsbereich der verwandten Gleichungen - ist die Kenntnis der Suszeptibilität $\chi_s^{(3)}(\omega)$ Voraussetzung. Dieser Wert kann im beschriebenen Experiment nicht direkt gemessen werden, sondern nur $\Delta\chi_s^{(3)} = \chi_s^{(3)}(\omega) - 2\chi_s^{(3)}(3\omega,\omega)$ Für eine Abschätzung können in den Gl. (8 a - c) für Kr (nichtresonanter Fall) die Summen jeweils durch den Beitrag des Kontinuums (siehe Abschnitt III.2.) angenähert werden, bis auf den wegen der nahen $4p^5 8p$ -Resonanz bei 4ω dominierenden Term in $\chi_s^{(3)}(3\omega,\omega)$. Dann ist

$$\left|\frac{\chi_s^{(3)}(\omega)}{\chi_s^{(3)}(3\omega,\omega)}\right| \simeq \left(\frac{\omega_c - 3\omega}{\omega_c - \omega}\right)^2 \left(\frac{\omega_{8p} - 4\omega}{\omega_c - 2\omega}\right)$$

Die Kontinuumsfrequenz ω_c wird aus der Anpassung eines Satzes von 120 gemessenen Werten des Brechungsindex von Kr im Bereich zwischen 670.0 und 135.0 nm /46,47,48,49/ nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate zu 141700 cm^{-1} bestimmt. Dann ist

$$|\chi_s^{(3)}(\omega)| \simeq 10^{-3} \cdot \Delta\chi_s^{(3)},$$

d.h.

$$|\chi_s^{(3)}(\omega)| \simeq 10^{-34}\ esu\ .$$

Die von Gl. (18) angegebene Schwelle für Selbstfokussierung wird bei den in Kr durchgeführten Messungen nicht erreicht. Diese Aussage ist selbst dann gültig, wenn $\chi_s^{(3)}(\omega) = 10^{-32}$ esu, also einen Faktor 100 größer wäre.

2. Optimierung der Lyman-Alpha-Erzeugung in Kr

Nach Kenntnis der nichtlinearen Suszeptibilitäten kann nach den Gl. (37 - 40) die Lyman-Alpha-Erzeugung in Kr optimiert werden. Danach ist die maximale Konversion des Systems, d.h. eines Kr/Ar-Gemisches

$$\eta_0^{max} \simeq 3 \cdot 10^{-2}$$

bei

$$N_{Kr} \cdot \Phi_1 \cdot b_1 \simeq 2 \cdot 10^{14}\ \mathrm{Torr} \cdot \frac{W}{cm^2} \cdot cm$$

In reinem Kr wurden bisher $\eta_0^{SAT} \simeq 10^{-5}$ bei $N_{Kr} \cdot \Phi_1 \cdot b_1 \simeq 1.5 \cdot 10^{11}\ \mathrm{Torr} \cdot \frac{W}{cm}$ erreicht. Zur Steigerung der Konversion bis η_0^{max} muß deshalb das Produkt $N_{Kr} \cdot \Phi_1 \cdot b_1$ um mehr als drei Größenordnungen gesteigert werden. Zu beachten ist dabei, daß $\Phi_1 \cdot b_1$ proportional zur Leistung des Lasersystems ansteigt, d.h. durch den experimentellen Aufbau bereits festgelegt ist. Die Kr-Dichte N_{Kr} kann dagegen ohne technische Einschränkungen um mehrere Größenordnungen erhöht werden. Bei hohen Kr-Dichten wird die Lyman-Alpha-Erzeugung allerdings durch zwei Prozesse entscheidend beeinflußt, die bisher vernachlässigt wurden:

a) der laserinduzierte Gasdurchbruch
b) die Druckverbreiterung der Kr-Resonanzlinie.

Schon bei den Messungen in reinem Kr stellte sich heraus, daß bei Steigerung der Intensität auf Werte von $\gtrsim 10^{11} \frac{W}{cm^2}$ die Schwelle für laserinduzierten Gasdurchbruch überschritten wird. Wie man aus den Skalierungsgesetzen für die Schwellintensität Φ_S dieses optisch nichtlinearen Prozesses weiß /50,51/, stellt er keine prinzipielle Grenze für die Frequenzverdreifachung dar. Nach /52/ nimmt Φ_S bei kleinen Kr-Drücken als Funktion des Druckes ab, und

erreicht im Bereich von $5 \times 10^2 - 5 \times 10^5$ Torr ein Minimum bei $\Phi_S^{min} \simeq 10^{11} \frac{W}{cm^2}$ für einen 348 nm-Singlemode-Laser. Für einen Multimode-Laser, wie er in der hier beschriebenen Anordnung verwendet wird, liegt Φ_S^{min} niedriger und muß experimentell bestimmt werden. Danach wird der konfokale Parameter b_1 entsprechend der Leistung des Lasers $W_1 \sim \Phi_1 \cdot b_1$ festgelegt. Prinzipiell kann dies bei beliebig hoher Dichte N erfolgen, um den geforderten Wert $N_{Kr} \cdot \Phi_1 \cdot b_1$ zu erfüllen. Im Falle von Kr muß dabei allerdings die Druckverbreiterung der $4p^5 5s$ Resonanzlinie bei 123.58 nm beachtet werden /53/. Nach dem Termschema in Fig. 12

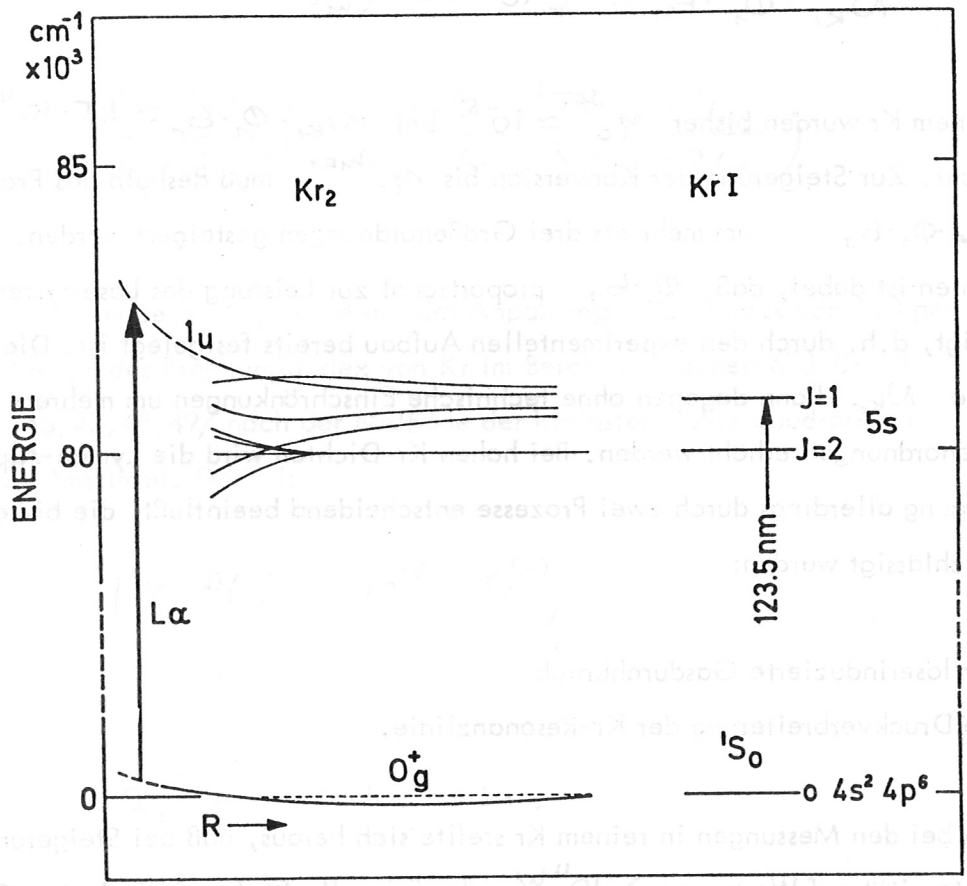

Fig. 12: Ausschnitt aus dem Termschema von atomarem Kr und Kr_2-Dimeren nach Tanaka et al. /53/

kommt es durch Bildung von Kr_2-Quasimolekülen bei hohen Dichten zur Absorption in der Nähe von Lyman-Alpha. Fig. 13 zeigt die Druckverbreiterung der Kr-Resonanzlinie in Abhängigkeit des Kr-Druckes. Die Spektren 1,2,...6 entsprechen den Kr-Drücken 2, 17, 31, 65, 163 und 740 Torr. Die Absorptionsprofile sind vor dem Hintergrund des Ar_2^*-Kontinuums aufgenommen.

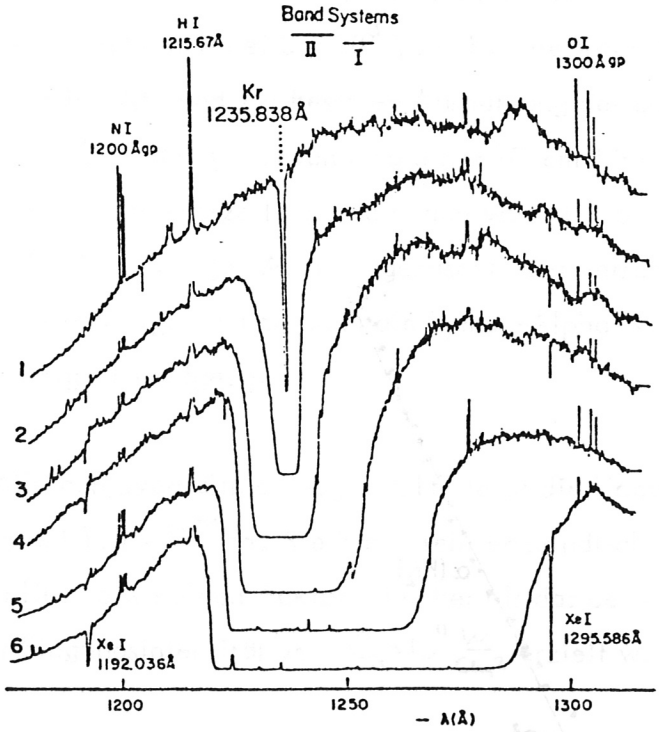

Fig. 13: Druckverbreiterung der Kr-Resonanzlinie vor dem Hintergrund des Ar_2^*-Kontinuums nach Tanaka et al. /53/

Nimmt die Absorption bei Lyman-Alpha zu, so führt dies zur Begrenzung der Konversion der Frequenzverdreifachung. Diese steigt zwar in dem bisher betrachteten absorptionsfreien Fall der Lyman-Alpha-Erzeugung in Kr bzw. Kr_2/Ar-Gemischen proportional zum Quadrat der Kr-Dichte an. Sie fällt jedoch unter Berücksichtigung der Absorption für hohe Drücke exponentiell ab.

Zur Bestimmung des optimalen Kr-Druckes wurde der Absorptionskoeffizient α bei Lyman-Alpha in Abhängigkeit des Kr-Druckes gemessen. Das Ergebnis der Absorptionsmessung ist in Fig. 14 dargestellt.

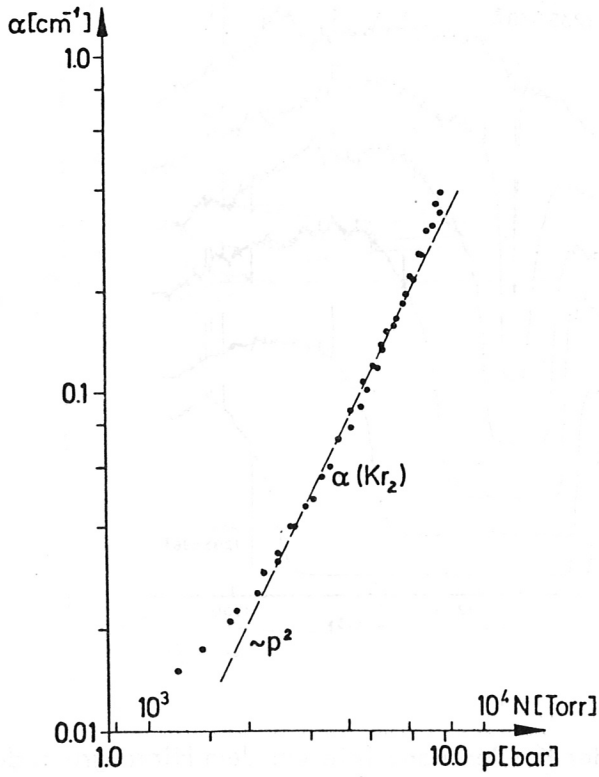

Fig. 14: Lyman-Alpha-Absorptionskoeffizient α in Abhängigkeit des Kr-Druckes

Im Bereich von 2×10^3 bis 8×10^3 Torr ist $\alpha \sim N_{Kr}^2$, was für die Absorption durch Kr_2-Quasimoleküle spricht.

Berücksichtigt man diese Absorption bei der Optimierung der Lyman-Alpha-Erzeugung in einem Kr/Ar-Gemisch, dann erreicht man theoretisch eine Konversion von $\eta_0 \simeq 10^{-3}$ mit dem beschriebenen Lasersystem beim optimalen Kr-Druck von $N_{Kr} \simeq 3 \cdot 10^3$ Torr. Voraussetzung dafür ist jedoch die Phasenanpassung in Hochdruck Kr/Ar-Gemischen.

3. Phasenanpassung in Hochdruck Kr/Ar-Gemischen

Den Ausführungen im letzten Kapitel folgend wurde zunächst zur Vermeidung von laserinduziertem Gasdurchbruch bei 3×10^3 Torr Kr die Intensität Φ_1 auf $5 \times 10^9 \frac{W}{cm^2}$ beschränkt, und zur besseren Ausnutzung der Laserleistung der konfokale Parameter b_1 durch Verwendung einer 10 cm-Linse auf 0.16 cm erhöht. In die hochdruckfeste Gaszelle wurden dann vorerst 1.5×10^3 Torr Kr eingelassen und verschiedene Mengen Ar hinzugemischt. Bei verschiedenen Mischungsverhältnissen $R = N_{Ar}/N_{Kr}$ wurde dann die Lyman-Alpha-Konversion gemessen. Das Ergebnis ist in Fig. 15 aufgezeigt.

Beim optimalen Mischungsverhältnis $R_0 = 2.17$ steigt die Konversion um mehrere Größenordnungen auf 1.4×10^{-4} an. Sie hängt sehr empfindlich vom Mischungsverhältnis ab und liegt etwa einen Faktor 10 höher als das beste Ergebnis in reinem Kr, das bei einer Eingangsintensität von $\Phi_1 = 10^{11} \frac{W}{cm^2}$ erzielt wurde.

Bei Erhöhung des Kr-Druckes wäre, nach den Ausführungen im letzten Abschnitt, eine Steigerung der Konversion zu erwarten. Diese Erwartung konnte im Experiment nicht bestätigt werden. Das lag vor allem daran, daß die Lyman-Alpha-

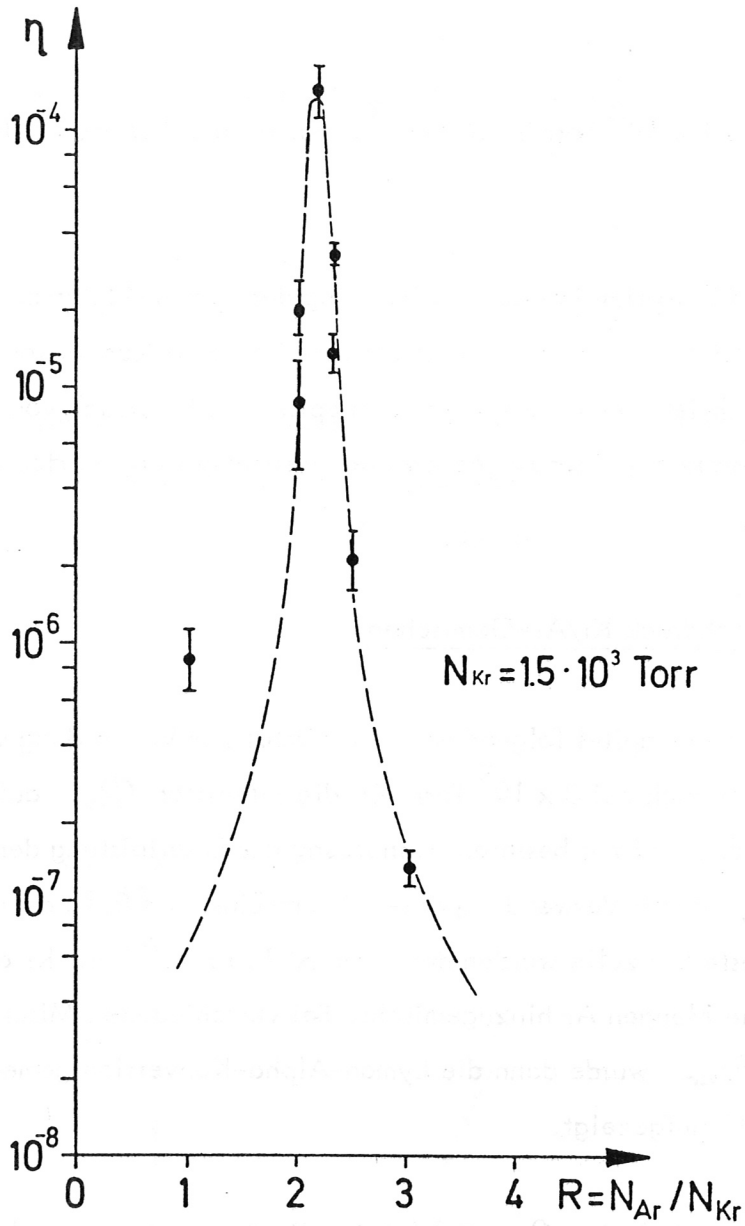

Fig. 15: Phasenanpassungskurve in einem Kr/Ar-Gemisch bei $\Phi_1 = 5 \cdot 10^9 \frac{W}{cm^2}$

Absorption nicht nur vom Kr-Partialdruck, sondern auch vom Gesamtdruck abhängt, wie Fig. 16 zeigt. Beim optimalen Mischungsverhältnis $R_0 = 2.17$ wird oberhalb

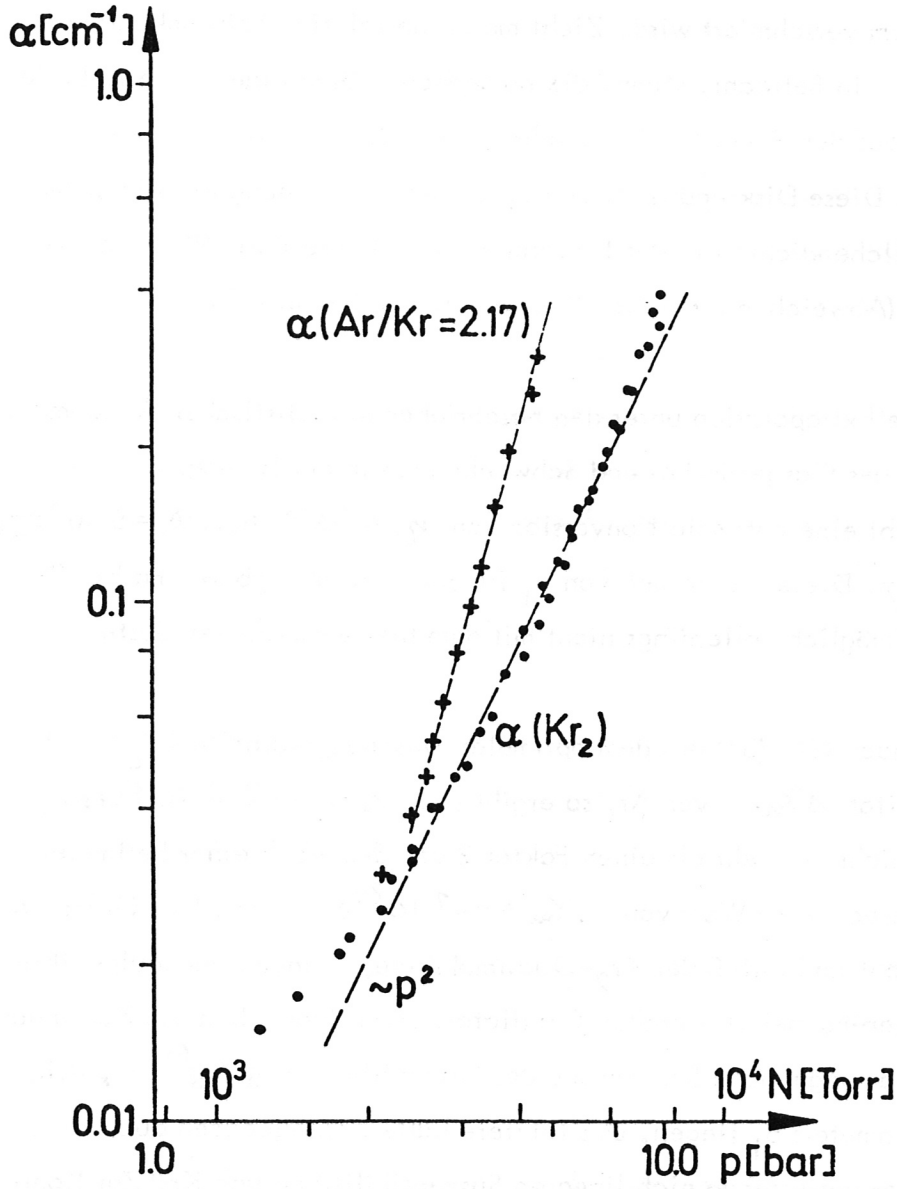

Fig. 16: Lyman-Alpha-Absorptionskoeffizient α in reinem Kr (•) und im optimalen Kr/Ar-Gemisch (+) in Abhängigkeit des Kr-Partialdruckes

2×10^3 Torr, d.h. bei einem Gesamtdruck von etwa 6×10^3 Torr die Absorption noch verstärkt. Außerdem muß man beachten, daß man die Gasmischung mit dem theoretischen Verhältnis R_o nach Gl. (37) nicht beliebig homogen herstellen kann

und das Maximum verschmiert wird. Zieht man eine relative Schwankung von $\Delta R_0/R_0 = 5\%$ in Betracht, stimmt die numerische Lösung (gestrichelte Linie in Fig. 15) bis auf den Punkt bei R = 1 sehr gut mit dem experimentellen Ergebnis überein. Diese Diskrepanz ist analog zu der Abweichung der Meßpunkte für hohe Kr-Teilchendichten in der Phasenanpassungskurve (Fig. 9) für reines Kr zu erklären (Abweichung von Gauß'scher Intensitäts-Verteilung).

Eine numerische Extrapolation unter den beschriebenen realistischen Annahmen, wie Absorption des Gasgemisches und Schwankungen in der Homogenität der Mischung, ergibt eine optimale Konversion von $\eta_0 \simeq 10^{-3}$ bei $\Phi_1 = 5 \cdot 10^9 \frac{W}{cm^2}$ und b_1 = 1.5 cm. Diese Steigerung von b_1 ist zwar mit verfügbaren Farbstofflasern /13,20/möglich, allerdings nicht mit dem hier verwendeten System.

Bestimmt man nach Gl. (37) aus dem optimalen Mischungsverhältnis R_o = 2.17 die Suszeptibilität $\Delta\chi_{Ar}$ von Ar, so ergibt sich $\Delta\chi_{Ar} = -2.9 \cdot 10^{-24}$ esu. Dieser Wert weicht um mehr als einen Faktor 2 von dem nach einer Sellmeier-Formel /55/ berechneten Wert von $\Delta\chi_{Ar} = -1.3 \cdot 10^{-24}$ esu ab. Der Grund dafür könnte sowohl im Einfluß der Kr_2-Quasimoleküle, einer Ungenauigkeit der für die Sellmeier-Formel verwandten Oszillatorstärken (vor allem des Kontinuums), als auch in einer ungenauen Bestimmung der Suszeptibilität $\Delta\chi_{Kr}^{(1)}$, d.h. des konfokalen Parameters b_1 liegen. Das letztere hätte Konsequenzen auch für die Genauigkeit der gemessenen nichtlinearen Suszeptibilitäten von Kr. Zur Kontrolle wurden die Kr-Experimente mit den gemessenen Werten der Suszeptibilitäten numerisch simuliert und dadurch ein relativer Fehler der Meßwerte von mehr als 50 % ausgeschlossen. Die relativen Fehler der für die Optimierung entscheidenden Quotienten der nichtlinearen Suszeptibilitäten bleiben davon unberührt und sind geringer.

Außerdem wurde, wie von Mahon et al. /55/ vorgeschlagen, die Phasenanpassung in Kr/Xe-Gemischen untersucht. Wegen der geringeren Ionisationsenergie ($E_{ion} < 4\hbar\omega_{LASER}$) kommt es in Kr/Xe-Gemischen zum Gasdurchbruch, bevor die Konversion wesentlich über die in reinem Kr gestiegen ist. Xe ist deshalb als Mischgas ungeeignet.

4. Ergebnisse der Frequenzverdreifachung in Be

Eine experimentelle Optimierung der Lyman-Alpha-Erzeugung in Be analog zu den Ergebnissen in Kr und entsprechend den theoretischen Überlegungen von Abschnitt III.2. ist zur Zeit noch nicht möglich. Wie in Abschnitt IV.4. berichtet, ist es gerade erstmals gelungen, einen für die nichtlineare Optik geeigneten und chemisch stabilen Be-Ofen zu entwickeln. Trotzdem konnten bereits in dieser nichtoptimierten Anordnung beachtliche Ergebnisse erzielt werden. Der experimentelle Aufbau ist im wesentlichen gleich dem für die in Kr durchgeführten Experimente. An die Stelle der Kr-Zelle rückt lediglich der Be-Ofen. Eine 60 cm-Linse, bedingt durch die größere Länge des Ofens, fokussiert die Laserstrahlung in die Mitte der Be-Dampfzone. Dort erzielt man mit Eingangsleistungen von 1 MW eine Intensität von 5×10^8 W/cm^2. Die Transmission der Vakuum UV-Komponenten bestimmt man nach folgendem Verfahren: Der kalte Be-Ofen wird mit reinem Kr gefüllt und die Konversion der Frequenzverdreifachung in Abhängigkeit der Kr-Dichte gemessen. Die optimale Konversion ist dann nach Fig. 11 in Abhängigkeit der Intensität Φ_1 bekannt. Dieses Eichverfahren ist besonders einfach durchzuführen. Für die Experimente mit Be-Dampf wird der Ofen mit 60 Torr Ar gefüllt. Das Ar verhindert einerseits das Bedampfen der Ofenfenster. Andererseits dient es auch als Mischgas zur Phasenanpassung in Be.

Mit $\Phi_1 = 5 \cdot 10^8 \frac{W}{cm^2}$ erreicht man bei einer Temperatur von 1800°C ($\hat{=}$ 10 Torr Be) eine Konversion von

$$\eta = 3 \cdot 10^{-4}.$$

Die Laserfrequenz wird dazu auf die 2-Photonen-Resonanz (2s3s) abgestimmt. Die erzeugte VUV-Wellenlänge liegt dann bei 121.8 nm. Die exakte Abstimmung auf Lyman-Alpha ist nur durch Summenfrequenzerzeugung, d.h. Verwendung eines zweiten Farbstofflasers möglich. Die Konversion der Lyman-Alpha-Erzeugung in Be ist nach der Theorie (siehe

Abschnitt III) vergleichbar der hier untersuchten resonanten Frequenzverdreifachung.

Bei Verstimmung der Laserfrequenz von der Resonanz fällt das VUV-Signal erwartungsgemäß stark ab. Eine Variation des Ar-Druckes führt im Gegensatz zum Kr-Experiment nur zu geringen Änderungen der maximalen Konversion.

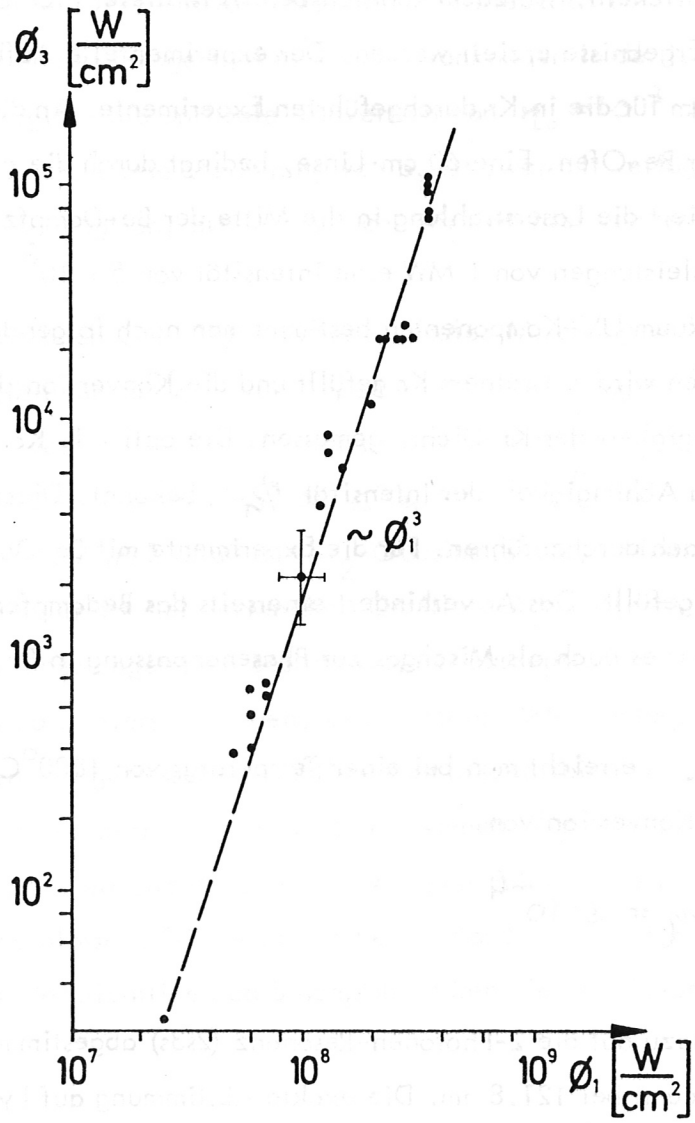

Fig. 17: Intensitätsabhängigkeit der in Be erzeugten 3. Harmonischen

Die Intensitätsabhängigkeit der 3. Harmonischen ist in Fig. 17 dargestellt. Die gestrichelte Kurve ist von Hand angepaßt und gibt den für den Kleinsignalbereich typischen Verlauf $\Phi_3 \sim \Phi_1^3$ wieder. Die Meßpunkte zeigen bis zu den höchsten Eingangsintensitäten Φ_1 keinerlei Sättigungsverhalten. Dies entspricht dem theoretischen Ergebnis, daß in Be Konversionsgrade von mehr als 10^{-3} möglich sind. Zur Steigerung der Intensität der 3. Harmonischen und damit der Konversion muß die Laserleistung erhöht werden. Das ist prinzipiell durch Verwendung eines leistungsstärkeren Rubinlasers als Pumplaser auch in der hier beschriebenen Anordnung möglich, geht aber über den Rahmen der vorliegenden Arbeit hinaus.

Die hier erzielte Konversion von 3×10^{-4} in Be-Dampf liegt um einen Faktor 2 höher als der beste Wert der optimierten Lyman-Alpha-Erzeugung in Kr/Ar-Gemischen. Dieses Ergebnis bestätigt daher die theoretischen Überlegungen in Abschnitt III, nach denen Be das optimale nichtlineare Medium zur Lyman-Alpha-Erzeugung ist.

VI. Schlußbemerkung

In der vorliegenden Arbeit wurde die Erzeugung intensiver Lyman-Alpha (121.6 nm)-Strahlung durch optisch nichtlineare Prozesse untersucht. Sie kommt zu dem Ergebnis, daß durch die Frequenzverdreifachung in Hochdruck Kr/Ar-Gemischen bei einer Eingangsleistung von 3 MW eine Lyman-Alpha-Leistung von 420 W bzw. 2.6×10^{12} Photonen pro 10 ns-Puls erzeugt werden kann. Das entspricht einer Konversion von 1.4×10^{-4}. Die 2-Photonen-resonante Frequenzverdreifachung in Beryllium-dampf ergibt bereits in einer nichtoptimierten Anordnung eine Konversion von 3×10^{-4}. Entsprechend der numerischen Optimierung dieses Systems sollten in einer verbesserten Anordnung mit dem hier verwandten Farbstofflaser Konversionsgrade von mehr als 10^{-3} möglich sein. Damit stünden dann mehrere kW schmalbandiger und abstimmbarer Lyman-Alpha-Strahlung zur Verfügung, wie sie zur Neutralteilchendiagnostik in Fusionsplasmen benötigt werden.

Anhang

Lösung des Phasenintegrals

Nach Gl. (22) ist das Phasenintegral $\mathcal{J}_\gamma$ gegeben durch

$$\mathcal{J}_\gamma(z_1, z_2, b_1, \Delta k) = \frac{1}{2b_1} \int_{-z_1}^{z_2} dz \, \frac{\exp\{i(\Delta k z + 2\gamma \cdot \operatorname{arctg}(2z/b_1))\}}{(1 + i2z/b_1)^2}$$

wobei

$$\Delta k = \frac{6\pi\omega}{c} \Delta \chi^{(1)} \cdot N$$

und

$$\gamma = 3\omega \left(\frac{\pi}{c}\right)^2 \Delta \chi_s^{(3)} \cdot N \cdot \Phi_1 \cdot b_1 \, .$$

Ohne Einschränkung der Allgemeinheit führt man mit der Substitution $x = \frac{2z}{b_1}$, $\alpha = \frac{b_1 \cdot \Delta k}{2}$ und $\frac{L}{2} = z_1 = z_2$ das Integral über in

$$\mathcal{J}_\gamma\left(\frac{b_1}{L}, \alpha\right) = \frac{1}{2} \int_{-\frac{L}{b_1}}^{\frac{L}{b_1}} dx \, \frac{e^{i(\alpha x + 2\gamma \operatorname{arctg} x)}}{(1 + ix)^2} \, .$$

Wie die numerische Rechnung zeigt, hat $\mathcal{J}_\gamma\left(\frac{b_1}{L}, \alpha\right)$ für einen bestimmten Wert $\frac{b_1}{L}$ und γ ein absolutes Maximum an der Stelle $\alpha = \alpha_\gamma^0$, d.h.

$$\mathcal{J}_\gamma^{max}\left(\frac{b_1}{L}\right) = \mathcal{J}_\gamma\left(\frac{b_1}{L}, \alpha_\gamma^0\right)$$

In Fig. 18 ist die Einhüllende $\mathcal{J}_\gamma^{max}\left(\frac{b_1}{L}\right)$ für verschiedene γ-Werte aufgetragen. Der größte Wert $\mathcal{J}_\gamma^{max} = \lim_{\frac{b_1}{L} \to 0} \mathcal{J}_\gamma^{max}\left(\frac{b_1}{L}\right)$ wird bei $\frac{b_1}{L} \lesssim 0.1$

erreicht und ist unabhängig von $\frac{b_1}{L}$. Für diesen Bereich können dann die Integrationsgrenzen durch ∞ bzw. $-\infty$ ersetzt werden. Mit der Umformung

$$e^{i2\gamma \operatorname{arctg} x} = \left(\frac{1+ix}{1-ix}\right)^{\gamma}$$

ist das Phasenintegral $\mathcal{J}_\gamma(\alpha)$ gegeben durch

$$\mathcal{J}_\gamma(\alpha) = \frac{1}{2}\int_{-\infty}^{\infty} dx \, \frac{e^{i\alpha x}}{(1+ix)^2}\left(\frac{1+ix}{1-ix}\right)^{\gamma}$$

Dieses Integral $\mathcal{J}_\gamma(\alpha)$ kann für ganzzahlige γ mit Hilfe des Residuenzsatzes auch analytisch gelöst werden. Dann gilt mit $n = |\gamma - 1|$:

$$\mathcal{J}_n(-\alpha) = \frac{\pi}{(n-1)!}\frac{d^{n-1}}{dx^{n-1}}\left\{e^{i\alpha x}(1-ix)^{n-2}(-i)^n\right\}_{x=i}, \quad \alpha < 0$$

$$\mathcal{J}_{-n}(\alpha) = \mathcal{J}_n(-\alpha), \quad \alpha > 0$$

Beispielsweise ist dann

$$\left.\begin{aligned}
\mathcal{J}_4 &= -\pi\alpha\left(\tfrac{2}{3}\alpha^2 + 2\alpha + 1\right)\cdot e^{\alpha} \\
\mathcal{J}_3 &= \pi\alpha(\alpha+1)\,e^{\alpha} \\
\mathcal{J}_2 &= -\pi\alpha\, e^{\alpha} \\
\mathcal{J}_1 &= \tfrac{\pi}{2}\, e^{\alpha}
\end{aligned}\right\} \alpha < 0$$

$$\left.\begin{aligned}
\mathcal{J}_1 &= \tfrac{\pi}{2}\, e^{-\alpha} \\
\mathcal{J}_0 &= \pi\alpha\, e^{-\alpha} \\
\mathcal{J}_{-1} &= \pi\alpha(\alpha-1)\, e^{-\alpha} \\
\mathcal{J}_{-2} &= \pi\alpha\left(\tfrac{2}{3}\alpha^2 - 2\alpha + 1\right) e^{-\alpha}
\end{aligned}\right\} \alpha > 0$$

Diese analytischen Lösungen sind in Fig. 19 dargestellt. Sie zeigt deutlich den Einfluß des Kerr-Parameters γ auf das Phasenintegral.

Für die Optimierung der Frequenzverdreifachung ist interessant, den Maximalwert $\mathcal{J}_\gamma^{max}$ des Phasenintegrals und die Stelle des absoluten Maximums α_γ^0 zu kennen. Löst man auch für nichtganzzahlige γ das Phasenintegral $\mathcal{J}_\gamma(\alpha)$ numerisch, so ergibt sich der in Fig. 20 gezeigte Verlauf. Für $|\gamma|>1$ gilt dann $\mathcal{J}_\gamma^{max} \simeq 1$. Für $|\gamma|<1$ ist $\mathcal{J}_\gamma^{max} \simeq \mathcal{J}_0^{max}$ und mit $\delta_{\gamma'} = \frac{d\alpha_\gamma^0}{d\gamma'}\Big|_{\gamma=\gamma'}$, ist in linearer Näherung

$$\alpha_\gamma^0 \simeq 1 + \delta_\gamma \cdot \gamma \ , \quad \delta_\gamma = -1.5 .$$

Daraus folgt

$$\Delta k_0(\gamma) \simeq \Delta k_0(\gamma=0) - \frac{3}{b_1} \cdot \gamma .$$

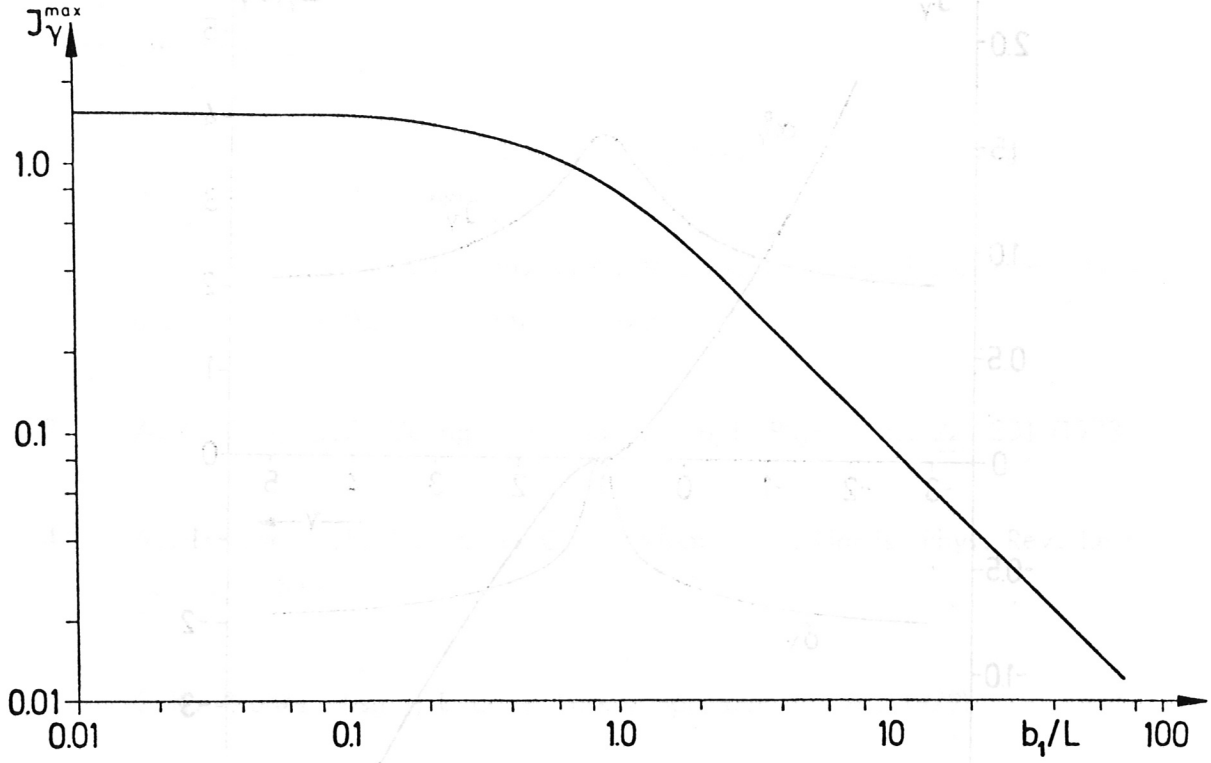

Fig. 18: Einhüllende der absoluten Maxima des Phasenintegrals J_γ^{max} als Funktion von $\frac{b_1}{L}$

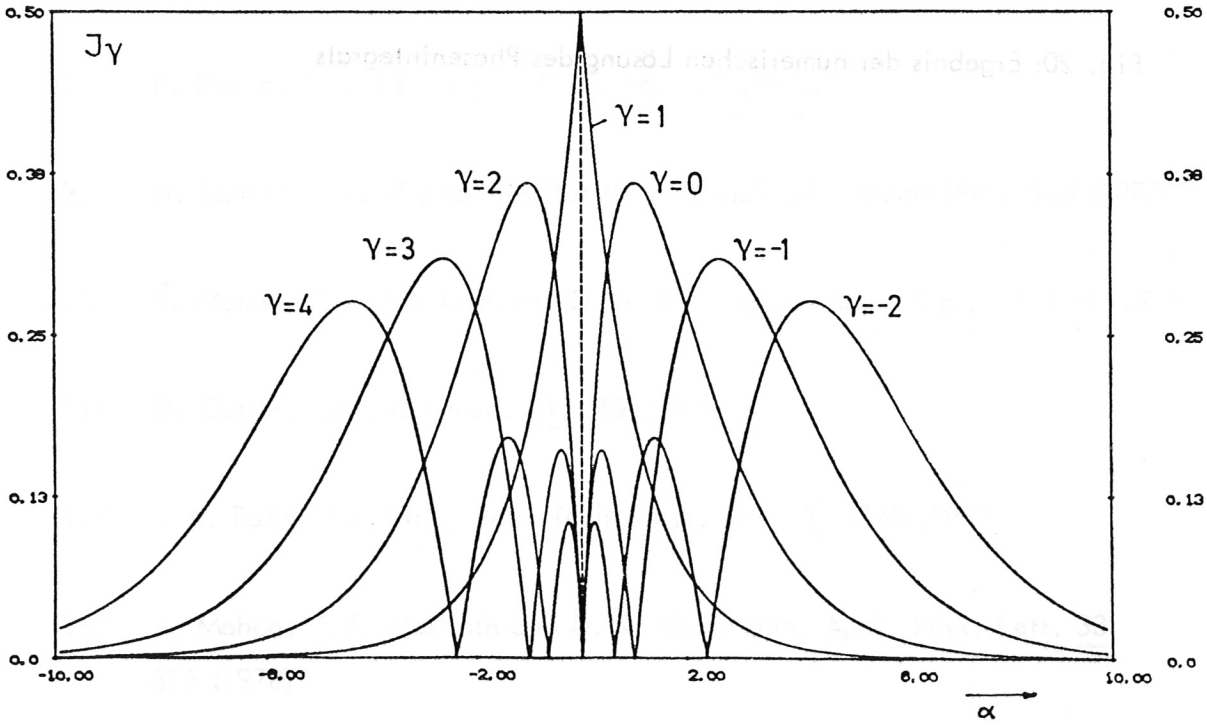

Fig. 19: Analytische Lösungen des Phasenintegrals $|J_\gamma(\alpha)|$ für verschiedene Kerr-Parameter γ

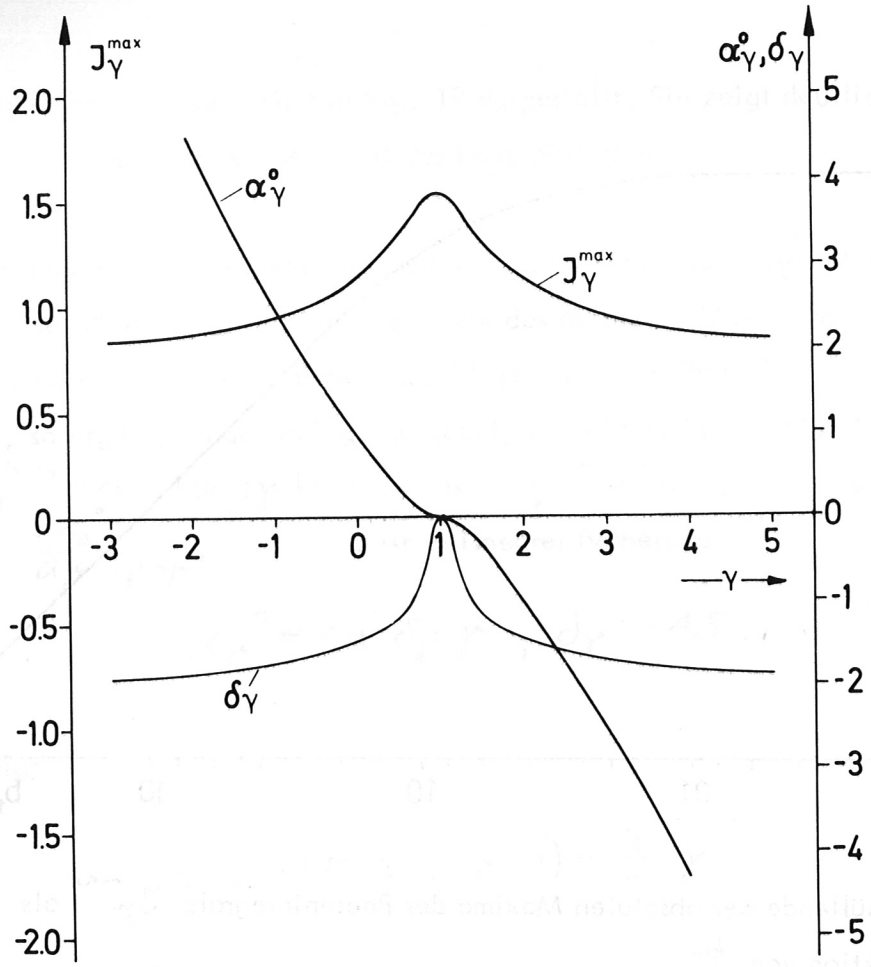

Fig. 20: Ergebnis der numerischen Lösung des Phasenintegrals

Literaturverzeichnis

/1/ N. Bloembergen, Nonlinear Optics (Benjamin, New York, 1965)

/2/ D.C.Hanna, M.A. Yuratich, D. Cotter, Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules (Springer, Berlin, 1979)

/3/ A.H. Kung, J.F. Young, S.E. Harris, Appl. Phys. Lett. 22, 301 (1973)

/4/ A.H. Kung, J.F. Young, G.C. Bjorklund, S.E. Harris, Phys. Rev. Lett. 29, 985 (1972)

/5/ C.K. Rhodes (Hrsg.), Excimer Lasers (Springer, Berlin, 1979)

/6/ H. Walther (Hrsg.), Laser Spectroscopy of Atoms and Molecules (Springer, Berlin, 1976)

/7/ R. Haensel, C. Kunz, Z. angew. Phys. 23, 276 (1967)

/8/ P. Bogen. Y.T. Lie, Appl. Phys. 16, 139 (1978)

/9/ H. Langer, Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Report IPP 1/165 (1977)

/10/ R. Mahon, T.J. McIlrath and D.W. Koopmann, Appl. Opt. 18, 891 (1979)

/11/ D. Cotter, Opt. Commun. 31, 397 (1979)

/12/ S.A. Batishche et al., Sov. Tech. Phys. Lett. 3, 1148 (1977)

/13/ R. Mahon, T.J. McIlrath and D.W. Koopmann, Appl. Phys. Lett. 33, 305 (1978)

/14/ T.J. McKee, B.P. Stoicheff, S.C. Wallace, Opt. Lett. 3, 207 (1978)

/15/ R. Mahon, T.J. McIlrath, F.S. Tomkins, D.E. Kelleher, Opt. Lett. 4, 360 (1979)

/16/ H. Langer, H. Puell, H. Röhr, Opt. Commun. 34, 137 (1980)

/17/ H. Langer, H. Röhr, 11. Intern. Quantum Electron. Conf. (Boston, 1980)

/18/ K.-H. Steuer, W.-G. Wrobel, Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Report IPP 1/168 (1978)

/19/ D.W. Koopmann, T.J. McIlrath, V.P. Myerscough, J. Quant. Spectr. Radiat. Transf. 19, 555 (1978)

/20/ M. Bierry, R. Frey, F. Pradère, Rev. Sci. Instrum. 48, 733 (1977)

/21/ H. Puell, K. Spanner, W. Falkenstein, W. Kaiser, C.R. Vidal, Phys. Rev. A14, 2240 (1976)

/22/ H. Puell, C.R. Vidal, Phys. Rev. A14, 2225 (1976)

/23/ R.T. Hodgson, P.P. Sorokin, J.J. Wynne, Phys. Rev. Lett. 32, 343 (1974)

/24/ P.P. Bey, J.F. Giuliani, H. Rabin, Phys. Rev. Lett. 19, 819 (1967)

/25/ G. Peach, Mem. R.Astron. Soc. 71, 13 (1967)

/26/ H. Eicher, IEEE J. Quantum Electron. QE-11, 121 (1975)

/27/ W.J. Balfour, A.E. Douglas, Can. J. Phys. 48, 901 (1970)

/28/ C.R. Vidal, F.B. Haller, Rev. Sci. Instrum. 42, 1779 (1971)

/29/ J. Geiger, Z. Physik A282, 129 (1977)

/30/ J.M. Vaughan, Phys. Rev. 166, 13 (1968)

/31/ H. Puell, H. Scheingraber, C.R. Vidal, Phys. Rev. A 22, 1165 (1980)

/32/ H. Puell, C.R. Vidal, IEEE J. Quantum Electron. QE-14, 364 (1978)

/33/ H. Junginger, H. Puell, H. Scheingraber, C.R. Vidal, IEEE J. Quantum Electron., in Druck

/34/ P. Lambropoulos, Advances in Atomic and Molecular Physics, Vol. 12 Hrsg. D.R. Bates, B. Bederson (Academic Press, New York, 1976)

/35/ S.A. Akhmanov, R.V. Khokhlov, A.P. Sukhorukov, Laser Handbook, Hrsg. F.T. Arecchi, E.O. Schulz-Dubois (North-Holland, Amsterdam, 1972)

/36/ H. Kogelnik, T. Li, Appl. Opt. 5, 1550 (1966)

/37/ J.F. Ward, G.H.C. New, Phys. Rev. 185, 57 (1969)

/38/ M. Born, E. Wolf, Principles of Optics (Pergamon Press, Oxford, 1970) S. 445 ff.

/39/ J. Ducuing, N. Bloembergen, Phys. Rev. 133, 1453 (1964)

/40/ H. Langer, H. Röhr, W.-G. Wrobel, Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Report IPP 1/167 (1978)

/41/ Yun Miu Yiu, T.J. McIlrath, R. Mahon, Phys. Rev. A20, 2470 (1979)

/42/ J. A. Amstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P.S. Pershan, Phys. Rev. 127, 1918 (1962)

/43/ P.P. Bey, J.F. Guiliani, H. Rabin, Phys. Lett. 26A, 128 (1968)

/44/ R.E. Huffman, J.C. Larrabee, Y. Tanaka, Appl. Opt. 4, 1581 (1965)

/45/ Landolt-Börnstein, Zahlenwerte und Funktionen aus Physik (Springer, Berlin, 1962) Bd. II/2

/46/ P.J. Leonard, Atom. Data and Nucl. Data Tables 14, 21 (1974)

/47/ P.L. Smith, Opt. Commun. 14, 374 (1975)

/48/ A. Bideau, Opt. Commun. 16, 186 (1976)

/49/ G.I. Chashchina, E.Y. Shreyder, Opt. and Spectrosc. 27, 79 (1968)

/50/ L.V. Keldysh. Sov. Phys. JETP 20, 1307 (1965)

/51/ Y.P. Raizer, Sov. Phys. USP. 8, 650 (1966)

/52/ G. Brumme, Report EUR-5509 DE (Luxembourg, 1977)

/53/ Y. Tanaka, K. Yoshino, D.E. Freeman, J. Chem. Phys. 59, 5190 (1973)

/54/ L.J. Zych, J.F. Young, IEEE J. Quantum Electron. QE-14, 147 (1978)

/55/ R. Mahon, T.J. McIlrath, V.P. Myerscough, D.W. Koopmann, IEEE J. Quantum Electron, QE-15, 444 (1979)

Zum Schluß möchte ich allen danken, die mich bei dieser Arbeit unterstützt haben. Insbesondere

Herrn Professor Dr. Herbert Walther für die Betreuung und sein reges Interesse an dieser Arbeit;

Herrn Dr. Michael Kaufmann für die Möglichkeit, diese Arbeit am IPP durchzuführen;

Herrn Dr. Horst Röhr, für die vielen fruchtbaren Diskussionen und Anregungen, die für das Gelingen der Arbeit von großer Bedeutung waren;

Herrn Dr. Heinz Puell, Herrn Dr. Herbert Scheingraber und Herrn Dr. Carl-Rudolf Vidal für die tatkräftige Unterstützung und die Ermutigungen während der Arbeit;

Herrn Dr. Karl-Heinz Steuer für die zahlreichen Ratschläge;

Frau Daniela Pohl für die Hilfe bei den numerischen Rechnungen;

Herrn Karl Huber und Herrn Hans Frischmuth für die technischen Details;

und nicht zuletzt

Fräulein Margot Heilmair für die rasche Erledigung der Schreibarbeiten.