

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR PLASMAPHYSIK
GARCHING BEI MÜNCHEN

Druckverbreiterung der
1,3 μ m-Jodlaser-Linie

Pressure broadening of
the 1.3 μ m iodine laser
line

W. Fuß und K. Hohla

IPP IV/67

Dezember 1974

*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 IV/67 W. Fuß
K. Hohla

Pressure broadening of the
1.3 μm iodine laser line

December 1974 (in German)

Abstract

Storable energy of a high energy laser is inversely proportional to its stimulated emission cross-section σ . By adding a foreign gas, the emission line is broadened and σ is thereby lowered. We have measured σ of the iodine laser as a function of pressure of several gases (Ar, N₂, CO, CO₂, SF₆, CF₃Br, C₃F₇J, CF₂Cl₂, (CF₃)₂CO) by an absolute and a relative method. $1/\sigma$ is a linear function of pressure in spite of the fact that overlapping of the hyperfine structure components varies considerably in the range investigated. For energy storage, CO₂ is a good compromise between pressure broadening and chemical deactivation of the excited I atoms. At one atmosphere of CO₂, 5 to 7 J cm⁻² can be stored, hyperfine structure is extensively blurred, and amplification of pulses shorter than 100 psec should be possible.

I N H A L T S V E R Z E I C H N I S

	Seite
Einführung	2
Spektrum und Linienbreite	4
σ_{ges} und speicherbare Energie in Ab- hängigkeit vom Druck	9
Auswirkung auf die Pulsdauer	10
Auswirkung auf den Zweilinienebetrieb	10
Auswirkung auf die Homogenität des Spektrums	11
Auswirkung auf die Sättigungsverstärkung .	11
Messmethode	15
Experimentelles	18
Ergebnisse und Diskussion	21
Anhang	30
Zusammenfassung	32
Literatur	34

Einführung

Alle bisherigen Hochenergie-Hochleistungs-Laser arbeiten nach dem Energiespeicherprinzip. Dabei wird ein schwacher Lichtpuls mit den gewünschten optischen und zeitlichen Eigenschaften in einem Verstärker mit der angestrebten Energie versehen. Damit der Verstärker nicht vorzeitig von selbst anschwingt, muss seine Kleinsignalverstärkung V kleiner bleiben als die Schwellverstärkung V_s , die sich aus unvermeidlichen Reflektivitäten (R_1 , R_2) aus der Anschwingbedingung (2) ergibt.

$$V = \exp(\sigma(\nu) \cdot \Delta n \cdot l) \quad (1)$$

$$V < V_s$$

$$V_s^2 \cdot R_1 \cdot R_2 = 1 \quad (2)$$

(σ = Wirkungsquerschnitt für induzierte Emission, Δn = Inversionsdichte, l = Länge des aktiven Mediums)

Aus (1) ist abzuleiten, dass die pro cm^2 speicherbare Energie $h\nu \cdot (\Delta n \cdot l)$ umgekehrt proportional zum Wirkungsquerschnitt σ für stimulierte Emission ist:

$$\Delta n_s \cdot l = \ln V_s / \sigma_0 \quad (3)$$

$$\sigma_0 = \max \sigma(\nu)$$

Gaslaser haben in der Regel vergleichsweise hohe σ -Werte. Man kann sie jedoch durch Druckverbreiterung verkleinern. Beim Jodlaser führt auch ein inhomogenes Magnetfeld zum Ziel. Beide Methoden erlauben es gleichzeitig, die Länge bandbreitenbestimmter Pulse zu variieren.

Der Jodlaser beruht auf der Fotodissoziation organischer Jodide (R zB. = CF_3 oder $i\text{-C}_3\text{F}_7$)



Die Emission bei 1.315μ stammt von dem magnetischen Dipolübergang $J(5^2P_{1/2u}) \rightarrow J(5^2P_{3/2u})$. Die Druckverbreiterung dieses Überganges durch He /1, 2/, Ar /1 - 3/ und CF_3J /4/ ist schon untersucht worden. Wir haben den Einfluss von Ar und weiteren Gasen (N_2 , CO, CO_2 , SF_6 , CF_3Br , C_3F_7J , CF_2Cl_2 , $(CF_3)_2CO$) auf σ bestimmt. Die Messmethode (vgl. nächster Abschnitt) beruht auf einer gleichzeitigen Bestimmung von V und $\Delta n \cdot l$ in Beziehung (1).

Wenn der Druck so hoch ist, dass die Druckverbreiterung gegenüber der Dopplerverbreiterung überwiegt (bei CF_3J z.B. schon ab etwa 30 Torr /4/), dann ist die Linienform $f(\nu - \nu_0)$ eine Lorentzkurve:

$$A(\nu) = A \frac{2}{\pi \cdot \Delta\nu} \cdot f(\nu - \nu_0) \quad (4)$$

$$\frac{2}{\pi \cdot \Delta\nu} \int f(\nu - \nu_0) d\nu = 1 \quad (5)$$

$$f(x) = (1 + (\frac{2x}{\Delta\nu})^2)^{-1} \quad (6)$$

(A = Einsteinkoeffizient für spontane Emission)

Der Normierungsfaktor $\frac{2}{\pi \cdot \Delta\nu}$ ist umgekehrt proportional zur Linienbreite. Für stimulierte Emission gilt entsprechend

$$\begin{aligned} \sigma(\nu) &= A(\nu) \cdot \frac{\lambda^2}{8\pi} \\ &= \frac{A\lambda^2}{4\pi^2} \cdot \frac{1}{\Delta\nu} \cdot f(\nu - \nu_0) \end{aligned} \quad (7)$$

Also für das Maximum von σ

$$\sigma_0 = \frac{A \lambda^2}{4\pi^2} \cdot \frac{1}{\Delta\nu} \quad (8)$$

Linienbreite und Querschnitt für stimulierte Emission sind einander umgekehrt proportional. Die Linienbreite - und deshalb auch $1/\sigma_0$ - hängen linear von den Partialdrücken P_i ab.

$$\Delta \nu = \alpha_0 + \alpha_{RJ} \cdot P_{RJ} + \alpha_M \cdot P_M \quad (9)$$

$$\frac{1}{\sigma_0} = \beta_0 + \beta_{RJ} \cdot P_{RJ} + \beta_M \cdot P_M \quad (10)$$

$$\alpha_i = \frac{A \lambda^2}{4 \pi^2} \cdot \beta_i \quad (11)$$

α_0 und β_0 enthalten die Dopplerbreite. Die Koeffizienten β geben direkt die Erniedrigung von σ_0 wider. Die reziproken σ_0 -Werte gegen den Druck aufgetragen ergibt Geraden der Steigung β . - Aus (3) und (10) folgt noch, dass die speicherbare Energie ebenfalls linear mit dem Druck wächst. - Gleichzeitig mit der Verbreiterung treten gewöhnlich Linienverschiebungen auf. Bei der Jodemission ist das nicht der Fall, wie man theoretisch begründen kann /5/ und was experimentell bestätigt wurde /3/.

Spektrum und Linienbreite

Einige Eigenschaften der Jodlaseremission können schon ohne Kenntnis der Verbreiterungsmessungen diskutiert werden.

Die bisherigen Beziehungen, besonders (3) und (10), gelten für einzelne, isolierte Linien. Der Jodlaserübergang hat aber eine Hyperfeinstruktur (HFS).

Durch das magnetische Dipol- und elektrische Quadrupolmoment des Kerns von ^{127}J (natürliche Häufigkeit 100 %, Kernspin 5/2) wird das obere Niveau in zwei, das untere in vier Unterniveaus aufgespalten (Abb.1). Das statistische Gewicht der elektronischen Zustände $^2P_{1/2}$ und $^2P_{3/2}$ ist gleich dem Produkt der Richtungs-entartungen des elektronischen und des Kernmoments, also $(2J + 1) \cdot (2 \cdot \frac{5}{2} + 1)$, also 12 für das $^2P_{1/2}$ Niveau und 24 für das untere

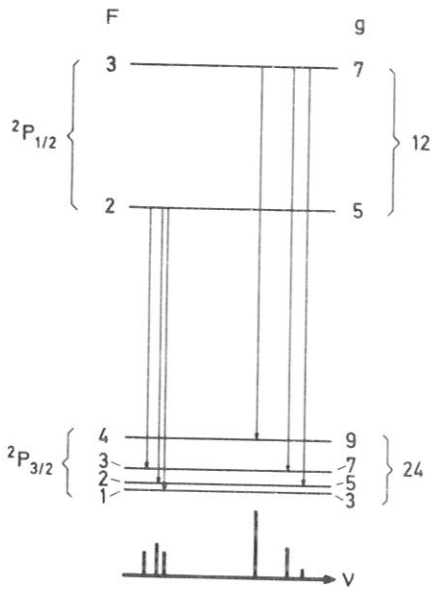


Abb.1 Hyperfeinstruktur des Jodlaser-Überganges

Niveau $^2P_{3/2}$. Diese Entartung wird durch die HFS-Aufspaltung nur teilweise aufgehoben. Die HFS-Niveaus sind noch $(2F + 1)$ -fach entartet. (F ist die Quantenzahl für Kernplus Elektronendrehimpuls.) Bei der Fotodissoziation werden die oberen Niveaus im Verhältnis ihrer statistischen Gewichte ($7 : 5$) besetzt. Zwischen den oberen und unteren Niveaus sind 6 Übergänge erlaubt. Die langwellige Gruppe geht vom $F = 2$ -Niveau, die kurzwellige vom $F = 3$ -Niveau aus.

Jede druckverbreiterte HFS-Komponente ist eine Lorentzlinie der selben Halbwertsbreite

$$\Delta \nu = \frac{A_i}{G_{0i}} \cdot \frac{\lambda^2}{4\pi^2} \quad (12)$$

Diese Tatsache ist so zu verstehen, dass zu zwei HFS-Niveaus desselben elektronischen Zustandes die selbe elektronische Wellenfunktion gehört. Deshalb ist ihre Wechselwirkung beim Stoss mit einem anderen Teilchen - und deshalb auch ihr Stossquerschnitt - gleich gross. Die Breiten der HFS-Unterniveaus eines Zustandes sind also gleich gross, nämlich $/6/$

$$\Delta \nu = \frac{1}{2\pi} \cdot q \cdot v \quad (13)$$

q = optischer Stossquerschnitt $/6/$

v = mittlere gaskinetische Relativgeschwindigkeit der Stosspartner

Die Breite eines Überganges ist dann gleich der Summe der Breite der beteiligten Niveaus.

Die Lorentzkurven für die einzelnen Linien ($\sigma_i(\nu)$ und $A_i(\nu)$) kann man nun nicht einfach zu einem Gesamtspektrum addieren. Der Grund liegt darin, dass σ und A nach üblicher Definition /7/ eine Mittelung über die Ausgangszustände und eine Summierung über die Endzustände enthält. Kann etwa ein Spektrometer die Übergänge in zwei untere Niveaus nicht auflösen, so sieht man als reziproke Lebensdauer (A) die Summe der A 's in die unteren Niveaus. Gibt es dagegen zwei nicht aufgelöste obere Niveaus, die beispielsweise gleiche Lebensdauer haben, dann haben auch beide zusammen die gleiche Lebensdauer*).

Additiv verhalten sich dagegen die Intensitäten ($i =$ Nummer des Überganges)

$$A_i(\nu) \cdot n_i \quad \text{und} \quad \sigma_i(\nu) \cdot \Delta n_i$$

Man definiert deshalb zweckmässig reduzierte σ -Werte

$$\sigma_i^*(\nu) = \sigma_i(\nu) \cdot \frac{\Delta n_i}{\Delta n_{ges}} \quad (14)$$

*) In Formeln ($i =$ Ausgangszustände, $j =$ Endzustände):

$$\text{Mit } n_{ges} = \sum_i n_i \quad \text{und} \quad \Delta n_{ges} = \sum_{ij} \Delta n_{ij} = \sum_i (n_i - g_i \sum_j \frac{n_j}{g_j})$$

kann man schreiben (alle A und σ sind Funktionen der Frequenz):

$$A_{ges} \cdot n_{ges} = \sum_i \sum_j A_{ij} \cdot n_i$$

oder

$$A_{ges} = \sum_j \left(\sum_i A_{ij} \frac{n_i}{n_{ges}} \right)$$

analog

$$\sigma_{ges} = \sum_j \left(\sum_i \sigma_{ij} \frac{\Delta n_{ij}}{\Delta n_{ges}} \right)$$

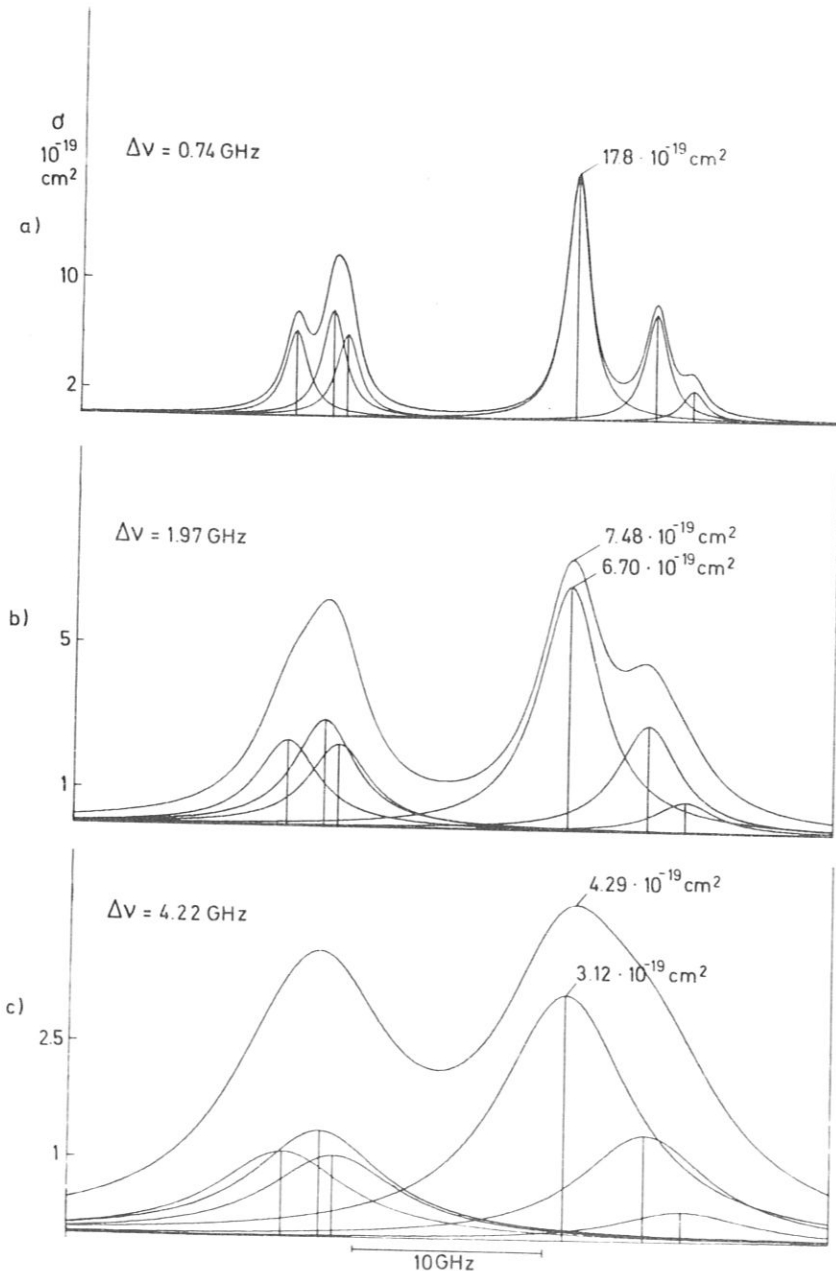
Bei der Summierung über i werden die Summanden also gewichtet.

Bei der Fotolyse von CF_3J oder $i\text{-C}_3\text{F}_7\text{J}$ werden, wie bei nicht-fluorierten Jodiden /8/, die Jodatome wohl nur im Zustand $^2\text{P}_{1/2}$ erzeugt. Deshalb ist der Besetzungsfaktor

$$\frac{\Delta n_i}{\Delta n_{\text{ges}}} = \frac{n_i}{n_{\text{ges}}} = \begin{cases} 5/12 & \text{für die langwellige Liniengruppe} \\ 7/12 & \text{für die kurzwellige Liniengruppe} \end{cases} \quad (15)$$

je nach Ausgangsniveau der Linien i . Das Gesamtspektrum ist dann

$$\sigma_{\text{ges}}(\nu) = \sum_{i=1}^6 \sigma_i^*(\nu) \quad (16)$$



In Abb.2 ist dieses Spektrum für verschiedene Linienbreiten (einer einzelnen HFS-Komponente) gezeichnet. Der Umrechnungsfaktor von $\Delta\nu$ in σ ergibt sich nach (12), (14) und Abb.1 z.B. für die intensivste der HFS-Komponenten, der $F = 3 \rightarrow 4$ -Linie

Abb.2 Berechnete a) - c) Spektren des Jodlaserüberganges für verschiedene Linienbreiten

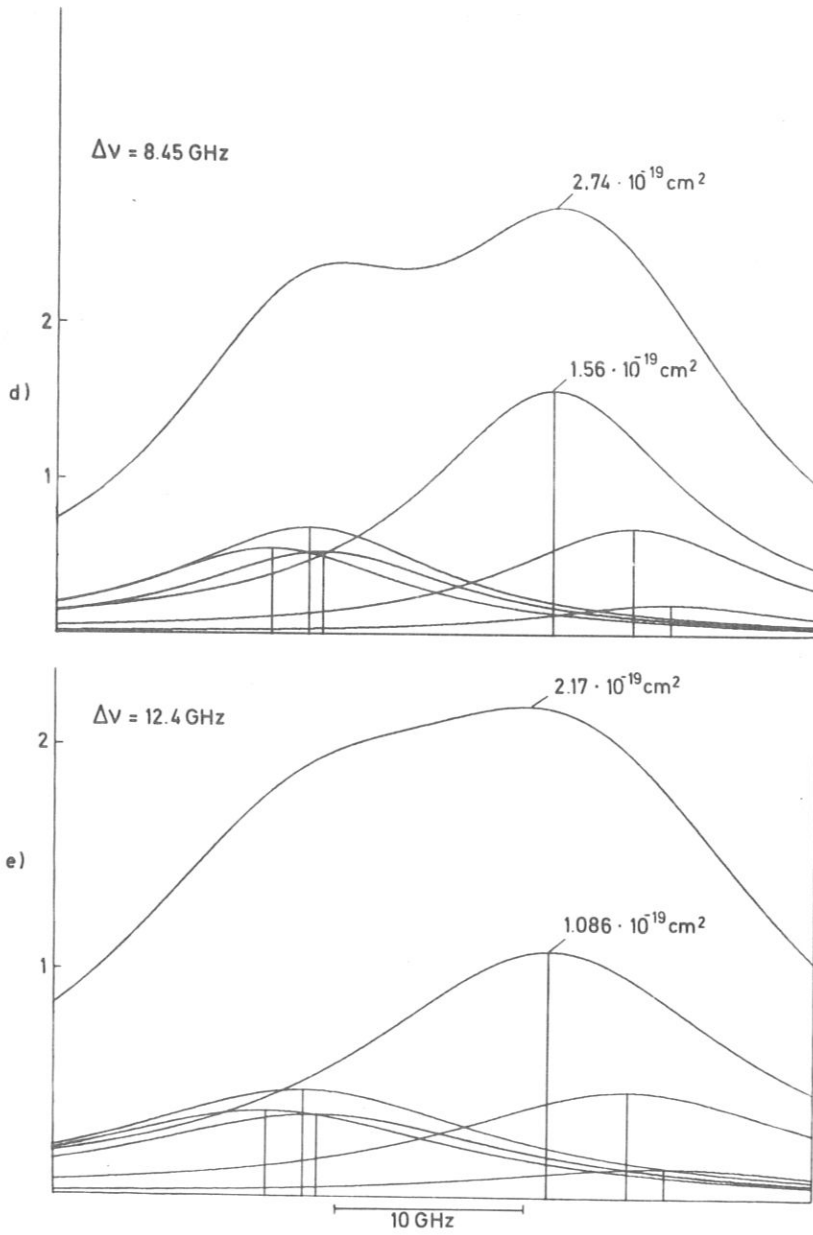


Abb.2 Berechnete Spektren des Jodlaser-
d), e) Überganges für verschiedene Linien-
breiten

$$\begin{aligned} \Delta \nu &= \frac{1}{\max \sigma_{34}} \cdot \frac{A_{34} \lambda^2}{4 \pi^2} = \frac{1}{\frac{12}{7} \cdot \max \sigma_{34}^*} \cdot \frac{A \lambda^2}{4 \pi^2} \\ &= \frac{10^{-14} \text{ cm}^2}{\max \sigma_{34}^*} \cdot 13 \text{ GHz} \end{aligned} \quad (17)$$

Die Beziehungen für Kleinsignalverstärkung (1) und speicherbare Inversion (3) gehen über in

$$V(\nu) = \exp(\sigma_{gs}(\nu) \cdot \Delta n_{ges} \cdot l) \quad (18)$$

$$\Delta n_{sp} \cdot l = \frac{\ln V_s}{\max \sigma_{gs}(\nu)} \quad (19)$$

Was passiert nun, wenn die Hyperfeinstruktur durch Druckverbreiterung zunehmend verwischt wird?

a) σ_{ges} und speicherbare Energie in Abhängigkeit vom Druck

Während für jede einzelne Linie $1/\sigma_0$ linear vom Druck abhängt, ist dieses Verhalten für $1/\sigma_{ges}$ nicht zu erwarten: Die Abbildungen 2a bis e zeigen, dass zunächst bei kleinem Druck

$$\begin{aligned} \max \sigma_{ges} &= \max \sigma_{34}^* \\ &= \frac{7}{12} \max \sigma_{34} \end{aligned}$$

Mit wachsender Linienbreite (wachsendem Druck) nimmt dann aber σ_{ges} wegen der fortschreitenden Überlappung vorübergehend schwächer ab als die Wirkungsquerschnitte der einzelnen Linien. Bei sehr hohem Druck (bei vollständiger Überlappung) ist

$$\begin{aligned} \max \sigma_{ges} &= \sum_i \max \sigma_i^* \\ &= 2,64 \cdot \max \sigma_{34}^* \end{aligned}$$

d.h. $\max \sigma_{ges}$ nimmt bei hohem Druck 2,64 mal langsamer ab als im Niederdruckbereich. Abbildung 3 zeigt $1/\max \sigma_{ges}$ als Funktion der Linienbreite, die ein Maß des Gasdruckes ist.

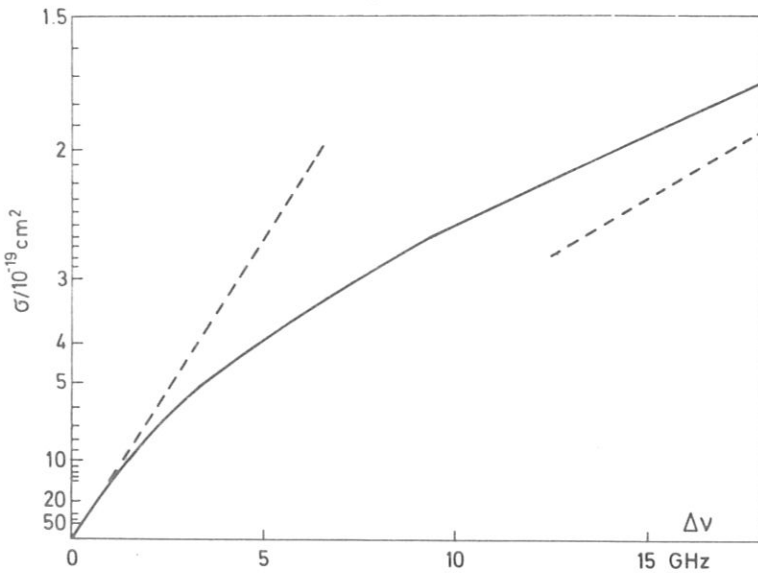


Abb.3 $1/\max \sigma_{ges}$
als
Funktion der
Linienbreite
einer HFS-
Komponente;
gestrichelt:
Grenzfälle bei
niederm bzw.
hohem Druck

Wegen (17) ist zu erwarten, dass neben $1/\max \sigma_{ges}$ auch die speicherbare Energie nicht mehr linear mit dem Druck wächst. Sie sollte ebenfalls einer Kurve wie in Abb.3 folgen.

b) Auswirkung auf die Pulsdauer

Wenn die Linien beginnen sich zu überlappen, wird die Verstärkungsbandbreite wesentlich grösser. Im Fall von Abb.2e sollten sich noch Kleinsignal-Impulse von weniger als 100 psec Dauer verstärken lassen. Im Sättigungsbetrieb sind noch kürzere Pulse möglich, auch wenn die HFS-Linien noch nicht so stark überlappen.

d) Auswirkungen auf den Zweilinienebetrieb

Da die Linien der niederfrequenten Gruppe dichter beieinander liegen, nimmt ihr σ_{max} mit der Druckverbreiterung zunächst langsamer ab als bei der kurzwelligen Gruppe. In Abb.2c ist ein σ_{max} -Verhältnis von 1,1 erreicht. Möglichst gleiche σ -Werte sind wichtig für einen eventuell verwendeten Vorverstärker, der im Kleinsignalebereich arbeitet und mit zwei Linien angesteuert wird. Denn bei grossen Verstärkungen würden sich grosse Unterschiede für die beiden Linien ergeben, da σ im Exponenten steht. Natürlich sind gleiche σ -Werte auch für einen Zwei-Linien-Oszillator günstig.

d) Auswirkungen auf die Homogenität des Spektrums

Die Bande der Abb.2e ist noch inhomogen verbreitert, d.h., wenn man den Übergang bei einer Frequenz sättigt, ist bei anderen noch Verstärkung vorhanden. Erst bei mindestens dem doppelten Druck als er Abb.2e entspricht, dürfte das Spektrum allmählich homogen werden. Nach Abschätzungen /5/ stammt ein erheblicher Teil der Druckverbreiterung von Relaxationen zwischen den unteren Niveaus. Diese haben auch noch kleinere Frequenzabstände als die oberen. Mit zunehmendem Druck werden daher zunächst die unteren Niveaus zu einem einzigen Niveau zusammenfließen, während die oberen Niveaus weniger verbreitert werden. Man kann sich das Spektrum bei mässigen bis hohen Drücken (Abb.2c bis e) als aus zwei homogen verbreiterten Linien zusammengesetzt denken, deren Breiten denen der beiden Dreiergruppen entspricht und die über das untere Niveau gekoppelt sind. (Jede der beiden Gruppen hat ein eigenes Ausgangsniveau.) Die Homogenität, d.h. das Sättigungsverhalten, ändert sich für Pulse, die vergleichbar lang oder kürzer als die Relaxationszeiten der unteren Niveaus untereinander ($\gtrsim \pi \cdot$ inverse Linienbreiten /6/) sind. Im letzten Fall treten kohärente Effekte auf.

Nach der zitierten Abschätzung /5/ beansprucht der Energieaustausch zwischen den beiden oberen Niveaus selbst bei Drücken, wie sie Abb.2e entsprechen, wesentlich mehr Zeit als 1 nsec. Will man deshalb in einem Verstärker beide Ausgangsniveaus ausnützen, dann kommt man kaum umhin, schon Frequenzen beider Liniengruppen hineinzuschicken.

e) Auswirkungen auf die Sättigungsverstärkung

Für Verstärkung ausserhalb des Kleinsignalbereiches gelten die Beziehungen /14/.

$$V_{\text{groß}} = \frac{e_s}{e_{\text{ein}}} \ln \left[1 + \left(\exp \frac{e_{\text{ein}}}{e_s} - 1 \right) \cdot V_{\text{klein}} \right] \quad (20)$$

$$e_s = \frac{h\nu}{b\sigma_{\text{hom}}} \quad (21)$$

$$= a \cdot \frac{h\nu}{b\sigma_{\text{ges}}} \quad (\text{Sättigungsenergiedichte, } \text{Jcm}^{-2}) \quad (21a)$$

$$b = 1 + \frac{g_{\text{oben}}}{g_{\text{unten}}} \quad (22)$$

e_{ein} = Eingangsenergiedichte, J cm^{-2}

Diese Gleichungen setzen eine homogene Linie voraus. Bei einem nur teilweise homogenen Spektrum wie der Jod-Hyperfeinstruktur muss man berücksichtigen, dass durch die eingestrahlte Frequenz nicht die volle Inversion, sondern nur der Anteil a davon angesprochen wird. Zahlenmässig ist $a = 7/12$ (also $\sigma_{\text{hom}} = 12/7 \cdot \sigma_{\text{ges}}$) für den hochfrequenten Teil und $a = 5/12$ für den niederfrequenten Teil des Spektrums, solange die beiden Teile noch getrennt sind (Abb.2a bis c). Bei stärkerer Überlappung (z.B. Abb.2e) sind V_{gross} und e_s grösser, als man mit $a = 7/12$ berechnen würde. Bei extrem grosser Linienbreite ($\Delta\nu \gg 12 \text{ GHz}$) ist $a = 1$.

Solange die HFS-Linien noch nicht mit ihren Nachbarn überlappen, muss man in (22) die Einzelentartungen einsetzen, z.B. für die 3-4-Linie $b = 1 + 7/9 = 1,78$, solange $\Delta\nu \ll 4 \text{ GHz}$. Wenn die Überlappung so stark wird wie etwa in Abb.2c, dann kann man die unteren Niveaus als ein einziges Niveau des statistischen Gewichts 24 betrachten. Das gilt auch, falls die Frequenzbreite des Pulses ($\Delta\nu_{\text{puls}} \approx 1/\Delta t_{\text{puls}}$) alle Linien einer Dreiergruppe überdeckt; wenn der Puls allerdings wesentlich kürzer wird, können kohärente Effekte auftreten. Aber auch auf lange Pulse reagiert Jod so, als ob nur ein unteres Niveau vorhanden wäre, nämlich dann, wenn die Relaxation innerhalb der unteren HFS-Niveaus schnell gegen die Pulslänge ist^{*)}. Die Gültigkeitsbereiche für die Entartungsfaktoren sind für diese Fälle und für noch höheren Druck im folgenden Prinzipschema zusammengestellt (Abb. 4).

*) siehe Seite 13

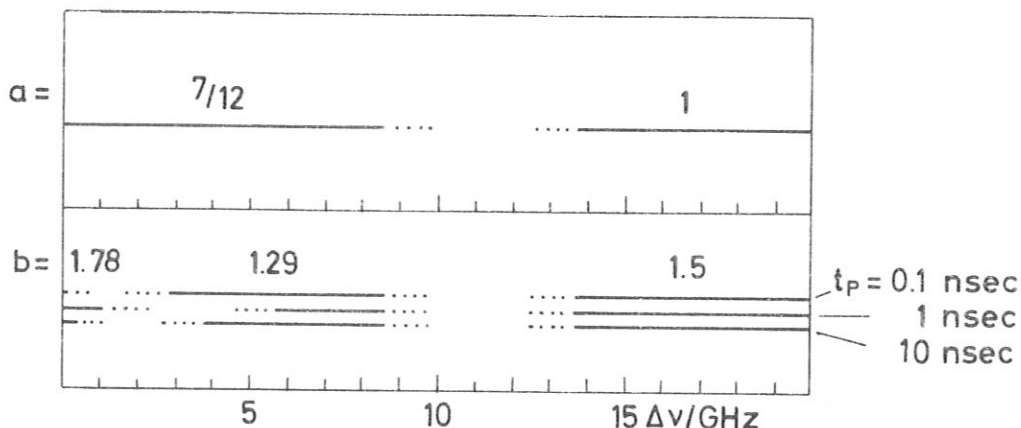


Abb.4 Gültigkeitsbereich des Entartungsfaktors $b = 1 + \frac{g_{\text{oben}}}{g_{\text{unten}}}$ und des Anteils a der angesprochenen Inversion in Abhängigkeit von Linienbreite $\Delta\nu$ und Pulsdauer t_p für Einstrahlung nahe dem $F = 3 \rightarrow 4$ -Übergang

Die Gültigkeitsgrenzen hängen natürlich von den Genauigkeitswünschen ab.

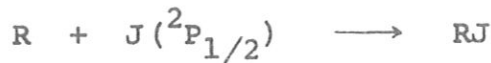
Wenn die beiden Liniengruppen erheblich überlappen ($\Delta\nu \gg 12$ GHz), dann kann man das Spektrum wieder als homogen betrachten, so als ob es aus einem oberen Niveau der Entartung 12 und einem unteren der Entartung 24 resultieren würde. In diesem Fall kann die gesamte Inversion auf eine einzige Frequenz (nahe der Mitte des Spektrums) ansprechen; d.h. man muss $a = 1$ setzen (Abb.4). Das Verhältnis b/a , das in die Sättigungsenergie eingeht (vgl. (21a)), variiert also für Pulse im nsec-Bereich nur zwischen den Werten $1,78 \cdot 12/7 = 3,04$, $1,29 \cdot 12/7 = 2,21$ und $1,5 \cdot 1 = 1,5$.

*) von Seite 12

Gelegentlich spielt auch die Intensitätsverbreiterung des Jodlaserüberganges eine Rolle. Analog zu elektrischen Dipolübergängen /9/ ist sie bei dem magnetischen Dipolübergang des Jodlasers ($H =$ magnetisches Feld der Lichtwelle, $I =$ Intensität, $\sqrt{\frac{4}{3}}\mu_B =$ Übergangsmoment in Bohrschen Magnetonen)

$$\begin{aligned} \Delta\nu_{\text{Intensität}} &= 2 \cdot \sqrt{\frac{4}{3}} \mu_B \cdot H/h &= 212 \text{ kHz} \cdot \sqrt{I/W_{\text{cm}^{-2}}} \\ & &= 6,6 \text{ GHz} \cdot \sqrt{I/GW_{\text{cm}^{-2}}} \end{aligned}$$

Für wesentlich längere Pulse muss auch die Relaxation der oberen Niveaus untereinander berücksichtigt werden. Für Emissionszeiten im μsec -Bereich, die typisch für einen Oszillator sind, werden also sowohl die oberen wie die unteren Niveaus untereinander kommunizieren, und man erwartet $a = 1$ und $b = 1,5$. Es gibt jedoch Anhaltspunkte dafür, dass die Rekombination der Radikale (R) mit Grundzustands-Jodatomen



u.U. schneller abläuft. In diesem Fall hätte man einen Vierniveaulaser, d.h. $b = 1$.

Bei Linienbreiten, die in Abb.4 nicht durch die Balken abgedeckt sind, können die Gleichungen (20) und (21) nicht verwendet werden. Man muss dann auf geeignete Differentialgleichungen (Ratengleichungen, Strahlungstransportgleichung) zurückgreifen. Man muss das auch tun, wenn man beide Ausgangsniveaus sättigen will und zu diesem Zweck zwei geeignete Frequenzen hineinschickt. Bei nur mässiger Verbreiterung ($\Delta\nu > 1 \text{ GHz}$ für 1 nsec -Pulse) sind dann die Übergänge durch das untere Niveau gekoppelt.

Für die Energiespeicherung gibt es einen optimalen σ -Wert. Zwar nimmt die Speicherfähigkeit mit kleiner werdendem σ weiter zu, aber man braucht nach (20) immer grössere Eingangsenergien (proportional e_s , also proportional $1/\sigma$) zum Sättigen. Vor allem aber tritt bei nsec -Pulsen ab etwa 5 J/cm^2 eine Beschädigung vieler optischer Komponenten (Fenster, Spiegel, usw.) auf. Nimmt man an, dass es gelingt, etwa 50 % der gespeicherten Energie abzurufen, dann ist eine Speicherung nur bis 10 J/cm^2 sinnvoll. Dieser Wert wird nach (19) erreicht bei folgenden σ -Werten:

V_s	10^3	10^4	10^5	
$\max \sigma_{\text{ges}}$	1,0	1,4	1,7	$\cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$

(Schwellverstärkungen von 10^3 sind leicht, solche von 10^5 mit noch realistischem Aufwand zu erreichen.) Ein Vergleich mit Abb.2

zeigt, dass bei diesen σ -Werten die Hyperfeinstruktur schon völlig verwischt ist.

Eine weitere Begrenzung der Speicherfähigkeit ist die strahlungslose Desaktivierung von J^* durch die Fremdgasmoleküle. Deshalb haben wir für einige Gase gleichzeitig die Desaktivierungskonstante bestimmt. (Die Strahlungslebensdauer (125 msec) ist keine Begrenzung).

Messmethode

1. Relativmessungen - Wenn in (1) die Inversion unabhängig vom Fremdgasdruck P_M ist, dann kann man offensichtlich relative σ -Werte in Abhängigkeit von P_M durch Messungen der Kleinsignalverstärkung erhalten. Falls der Oszillator nur eine schmale Linie im Maximum des Verstärkungsprofils emittiert, dann ist

$$\sigma(P_M) = \frac{\ell_g V(P_M)}{\ell_g V(P_0)} \cdot \sigma(P_0) \quad (23)$$

wobei $\sigma = \max \sigma_{\text{ges}}$

Falls der Oszillator Frequenzen beider Liniengruppen mit den Intensitäten I_1 und I_2 aussendet, misst man eine Verstärkung von

$$V = \frac{1}{I_1 + I_2} \left[I_1 \exp(\sigma_1 \Delta n \ell) + I_2 \exp(\sigma_2 \Delta n \ell) \right]$$

In dem extremen Fall, dass $I_1 = I_2$ und $\sigma_2 = 0,5 \cdot \sigma_1$ (vgl. Abb.2), kann man den Fehler abschätzen: Sei z.B. bei niedrigem Druck (grossen σ , grossen Verstärkungen) $\exp(\sigma_1 \Delta n \ell) = 1000$, dann ist

$$\exp(\sigma_2 \Delta n \ell) = 1000^{0,5} \approx 30$$

$$V = \frac{1}{2} \cdot (1000 + 30) = 515$$

Das heisst, die Verstärkung ist nur halb so gross wie im Einlinienbetrieb ($I_2 = 0$). Solange die gemessene Verstärkung aber nicht kleiner als 1000 ist, so lange ist der relative Fehler des Logarithmus kleiner als 10 %. Bei hohem Druck (kleinem σ , kleiner Verstärkung) führt z.B. die Annahme $\exp(\sigma_1 \Delta n \cdot \ell) = 2$ zu

$$V = 1/2 \cdot (2 + 2^{0,5}) = 1,7$$

$$\frac{\lg 2 - \lg 1,7}{\lg 2} \approx 20 \%$$

d.h. zu einem grösseren Fehler. Nach Abb.2 muss man bei hohem Druck aber eher $\sigma_2 = 5/7 \cdot \sigma_1$ annehmen. Das ergibt $V = 1,82$ statt 2, entsprechend 12 % Fehler. Der Fehler von $\lg V$ hängt also kaum vom Druck ab, jedenfalls solange $2 \leq V \leq 1000$ (wie bei den Messungen). Die Proportionalität (23) bleibt deshalb erhalten, unabhängig davon, ob man Ein- oder Zweilinenverstärkung misst.

Trägt man jetzt $1/\lg V(P_M)$ für verschiedene Gase M gegen den Druck P_M auf, dann erhält man Geraden in einem nicht zu grossen Druckbereich. Eicht man die Ordinate dieses Diagramms mit einem bekannten σ -Wert - z.B. $\sigma(P_0)$ nach Gl.(23) - dann geben diese Geraden direkt die Gleichung (10) ($1/\sigma$ als Funktion von P_M) wider. Ihre Steigungen sind gleich den Verbreiterungskoeffizienten β_M .

Voraussetzung für diese Methode war, dass die Inversion von P_M unabhängig ist. Dass dies der Fall ist, konnte durch Energiemessungen bestätigt werden:

$$E = \frac{h\nu}{b} \cdot (\Delta n - \Delta n_s) \cdot \text{Volumen}$$

$$\Delta n_s = \frac{\ln V_s / (\sigma \cdot \ell)}{\quad} \quad (24)$$

$$1 \leq b \leq 1,5 \quad (\text{unabhängig von } P_M)$$

$b = 1$, falls die Radikale aus der Fotolyse schnell mit dem Grundzustandsjod zurückreagieren (Vierniveaulaser). Falls nicht, dann ist $b = 1 + \frac{g_{\text{oben}}}{g_{\text{unten}}} = 1 + 12/24 = 1,5$, da alle Unterniveaus in der μsec -Zeitskala der Laseremission schnell untereinander relaxieren.
- Bei der Energiemessung wurde durch Wahl hoher Spiegelreflek-

tivitäten und nicht zu hoher Fremdgasdrücke darauf geachtet, dass die Schwellinversion Δn_s kleiner als etwa 10 % der Gesamtinversion Δn betrug.

2. Absolutmessungen - Wenn in (1) neben der Kleinsignalverstärkung gleichzeitig Δn bekannt ist, dann ergibt sich daraus σ . Die Inversion kann man z.B. durch eine Energiemessung in einem Oszillatorkaufbau messen, vgl. (24). Eine Schwierigkeit dabei ist, dass in diesem Zeitmass-Stab die Grösse von b nicht bekannt ist. Eine Alternative ist, mit Hilfe eines kurzen Eingangsimpulses (1 nsec) den Verstärker zu sättigen. In diesem Fall lässt sich b abschätzen, vgl. Abb. 4. In unserer Anordnung reichte die Energie des 1-nsec-Eingangsimpulses nicht aus, um den Verstärker voll zu sättigen. Deshalb haben wir Gl. (20) herangezogen, die sich graphisch auswerten lässt /4/. Dabei wird V_{klein} und in einem zweiten Schuss V_{gross} und e_{ein} gemessen und daraus e_s bestimmt. Das ergibt mit (21a) $(b/a) \cdot \sigma$ und wenn a und b bekannt sind (vgl. Abb. 4) σ selbst. Wegen einer Probe auf die angenommenen a - und b -Werte vergleiche den Abschnitt "Ergebnisse". Voraussetzung für diese Messmethode ist eine über den Querschnitt konstante Energiedichte des Eingangsimpulses. Sie wurde durch Begrenzung des Strahlquerschnittes erreicht.

Eine weitere Voraussetzung ist ein homogenes Verstärkungsprofil. Da der für die Absolutmessungen benutzte Oszillator nur auf einer Linie, und zwar der $F = 3 \rightarrow 4$ -Linie, emittiert /10/, ist diese Bedingung erfüllt, solange die Linienbreite des Verstärkers in die Gültigkeitsbereiche der Abb. 4 fällt.

Solange die Bandbreite des Verstärkers kleiner ist als die des eingestrahlten Impulses ($\approx 1 \text{ GHz} = 1/1 \text{ nsec}$), misst man die Kleinsignalverstärkung etwa um das Verhältnis der Bandbreiten zu klein. Wie die Auswertung zeigt, macht das für σ nur einen sehr kleinen Fehler (einige Prozent bei 20 Torr C_3F_7J).

Experimentelles

1. Absolutmessungen von σ . - Klein- und Gross-Signalverstärkung wurde mit der Anordnung von Abb.5 gemessen. Oszillator und Schneidesystem sind in /15/ beschrieben. Der Oszillator wird

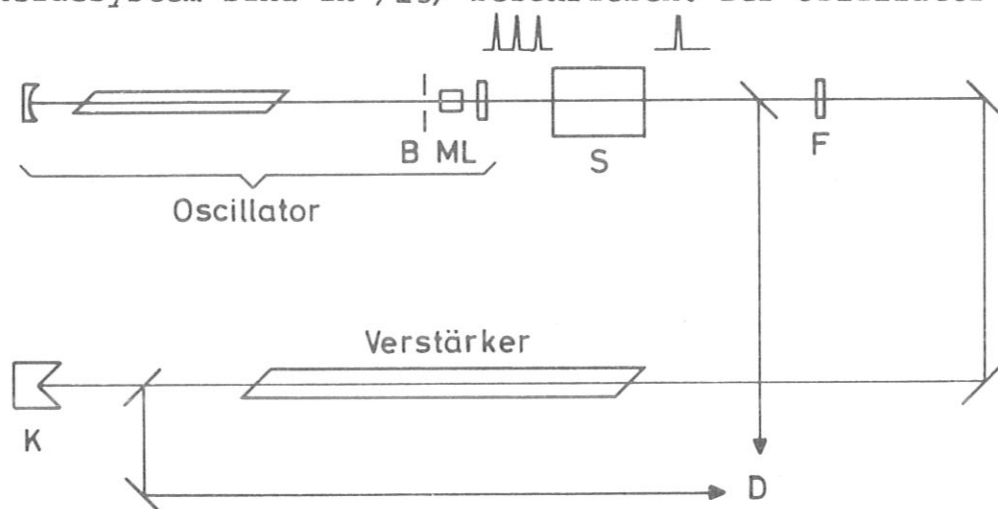


Abb.5 Anordnung zur Messung von σ mit einzelnen nsec-Pulsen.
B = Modenblende, ML = akusto-optischer Modenkoppler,
S = Pulsschneidesystem, F = Filter, K = Kalorimeter,
D = Fotodiode

akusto-optisch modengekoppelt und auf der transversalen Grundmode betrieben. Mit 100 Torr C_3F_7J -Füllung liefert er einen Pulszug mit Pulslängen von 1 nsec. Mit dem Schneidesystem (Glan-Prisma, Pockelszelle, Glan-Prisma) wird davon ein Einzelpuls mit etwa 0,5 mJ Energie herausgeschnitten. Ein Teil des Eingangs- und ein Teil des verstärkten Impulses gelangen zeitlich verzögert auf dieselbe Diode. Die zeitliche Auflösung von Diode + Oszillograf war etwas schlechter als 1 nsec, so dass die Energieverstärkung gemessen wurde. Der Verstärker wird mit zwei hintereinander liegenden Paaren von Xe-Blitzlampen gepumpt, Blitzdauer etwa 6 μ sec, elektrische Energie in der Regel etwa 3 kJ. Die Gase wurden vor der Messung mehrere Minuten in einem Mischkolben gerührt, der über ein Vakuumsystem mit dem Verstärker verbunden war.

Bei den Gross-Signal-Messungen wurde aus dem Strahl (nach dem Verstärker) durch eine Blende ein etwa 5 mm² grosser Querschnitt herausgeschnitten. Dadurch ist eine konstante Verteilung der Inversion und der Eingangsenergiedichte über den Strahlquerschnitt

sichergestellt. Die Grösse dieses Querschnitts wurde durch einen Brennfleck festgestellt, den der verstärkte Strahl auf einem schwarzen Polaroid-Foto erzeugte. Mit dieser Fläche, mit der Verstärkung (gemessen mit der Diode) und mit der Ausgangsenergie (gemessen mit dem Kalorimeter) liess sich die Eingangsenergiedichte ermitteln.

Die Relativmessungen von σ wurden mit einer Oszillator-Verstärker-Anordnung nach Abb.6 gemessen. Die Blitzlampen des Oszillators erhielten während etwa 2,5 nsec 2 kJ elektrischer Energie.

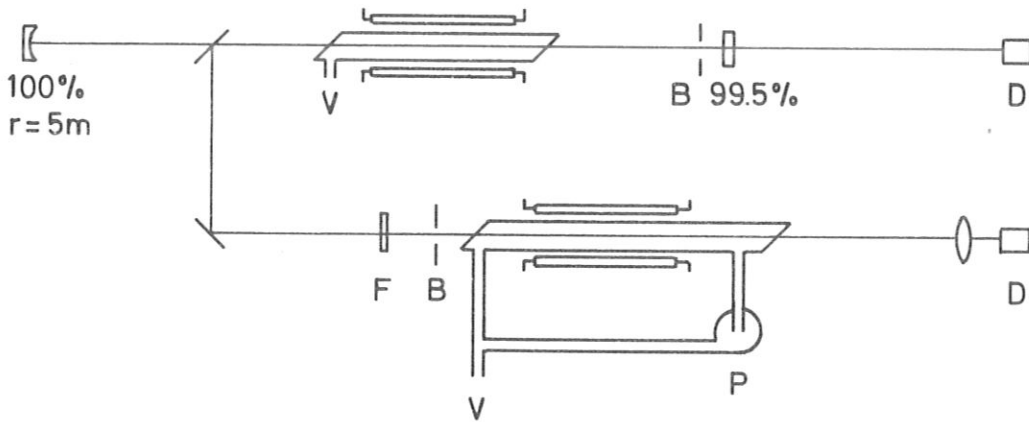


Abb.6 Anordnung zur Messung von σ und von Desaktivierungsgeschwindigkeiten mit msec-Pulsen. B = Blende, F = Filter, V = Vakuum- und Gasfüllanschluss, P = Umlaufpumpe, D = Photomultiplier

Mit einer Füllung von 2 Torr C_3F_7J + 20 Torr SF_6 ergab sich ein über 2 msec langes, einigermaßen glattes Signal der Energie 10 mJ. Der kleine C_3F_7J -Druck und die geringe Wirksamkeit von SF_6 bei der Druckverbreiterung (vgl. unten, Tab.1) lassen eine Oszillatoremission geringer Breite (nämlich Doppler-Breite, 250 MHz) erwarten, sodass man tatsächlich den σ -Wert in der Linienmitte des Verstärkers misst. Da der Oszillator erheblich über der Schwelle betrieben wurde, ist leider auch anzunehmen, dass beide oberen Niveaus emittieren, und dass deshalb ein mittleres σ gemessen wurde. Durch Eichung mit einem absolut gemessenen

Verbreiterungskoeffizienten (β_{Ar}) sollte dieser Fehler aber weitgehend eliminiert werden. Tatsächlich stimmt das Verhältnis von β_{Ar} zu β_{CO_2} mit dem entsprechenden Wert der nsec-Messreihe ausgezeichnet überein. - Das lange Oszillatorsignal ermöglichte es, gleichzeitig die Desaktivierung von J^* durch die Fremdgase zu beobachten.

Im Gegensatz dazu wurde der Verstärker (i.D. 22 mm, beblitzte Länge 33 cm) mit einem Blitzlampensignal von etwa 3 μ sec Dauer und 900 J elektrischer Energie gepumpt. Für jedes Gas wurde eine Reihe von Messungen durchgeführt: 25 Torr reines CF_3J ergaben eine Verstärkung von etwa 1000; danach wurden Mischungen von 25 Torr CF_3J mit zunehmendem Fremdgasgehalt eingesetzt, bis die Anfangsverstärkung nur noch in der Gegend von 2 lag. Das entspricht einer Herabsetzung von σ um den Faktor 9 bis 10.

Die Gase wurden gemischt mit Hilfe der Umlaufpumpe von Abb.6, einer Schleuderpumpe mit magnetisch angetriebenem Läufer aus Teflon. Die Verstärkungsmessungen waren nicht reproduzierbar, wenn weniger als 5 min gepumpt wurde. Das entspricht mehr als 100-fachem Gasumlauf, wie mit einer beblitzten Füllung (J_2 -Farbe) festgestellt wurde.

Durckwellen im Verstärker stören bei höherem Druck die Desaktivierungsmessungen, indem sie den Strahl ablenken. Die erste kommt nach etwa 50 μ sec. Die kurzbrennweitige Linse vor dem SEV neutralisiert ihre Wirkung jedoch weitgehend.

Ergebnisse und Diskussion

Abbildung 7 zeigt die mit der nsec-Anordnung gemessene Abhängigkeit von σ (genauer: $\max \sigma_{\text{ges}}(\nu)$) vom Gesamtdruck. σ ist in einer Reziproskala aufgetragen. Die σ -Werte beziehen sich auf $\Delta n_{\text{ges}} = \sum_i (n_i - \sum_j \frac{g_i}{g_j} n_j)$ (i läuft über obere Zustände, j über die unteren). Gleichzeitig sind in der Abbildung zwei Literaturmessungen abgebildet.

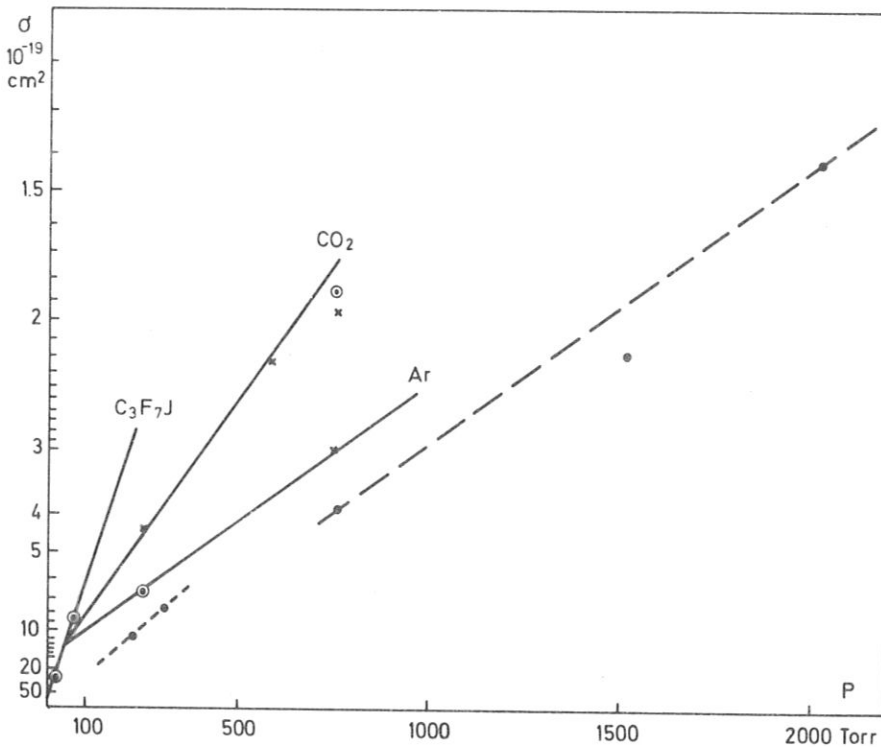


Abb.7 σ in Abhängigkeit vom Ar-, CO_2 - und $\text{C}_3\text{F}_7\text{J}$ -Druck. \odot = Absolutmessung, \times = Relativmessung, beide durchgeführt mit nsec-Pulsen, die nur eine Frequenz enthielten; — — Absolutmessung an Ar von Aldridge /2/ ($\text{C}_3\text{F}_7\text{J}$ -Druck ≈ 0), - - - - Absolutmessung an Ar von Zuev et al. /3/.

Unsere absolut gemessenen Werte sind durch Bestimmung der Sättigungsenergie nach Gl.(20) bis (22) gewonnen. Die Zahlenwerte beruhen auf der Annahme $a = 7/12$; $b = 1,78$ bei niederem Druck und $a = 1$; $b = 1,5$ bei 50 Torr $\text{C}_3\text{F}_7\text{J} + 700$ Torr CO_2 , vgl. Abb.4. Diese Parameterwahl kann man in zweierlei Weisen rechtfertigen:

1. Bei niederem Druck (bis 250 Torr Ar z.B.) kann man die Relaxationszeit der unteren Niveaus als gerade noch etwas grösser als die Messzeit von 1 nsec abschätzen /5/, sodass man es nur mit zwei einzelnen HFS-Niveaus ($^2P_{1/2}$ (F = 3) und $^2P_{3/2}$ (F = 4)) zu tun hat. Bei der Hochdruckmessung dagegen war die Überlappung schon so erheblich (grösser als in Abb.2e), dass dabei beide oberen und alle unteren Niveaus erfasst wurden. Allerdings war der Grenzfall $b/a = 1,5$ bei der fraglichen Linienbreite nur unvollkommen verwirklicht, sodass sich für σ ein etwas zu grosser Wert ergibt.

2. Wählt man versuchsweise andere a- und b-Parameter, so erhält man andere σ_{absolut} -Werte. Die σ_{relativ} -Werte ändern sich nach (23) im gleichen Verhältnis

$$\sigma_{\text{relativ}}(P_M) = \frac{\ell_g V(P_M)}{\ell_g V(P_0)} \cdot \sigma_{\text{absolut}}(P_0) \quad (23)$$

Nimmt man als Bezugswerte in (23) wahlweise das Hochdruck- oder ein Niederdruck- $\sigma_{\text{abs.}}$, dann erhält man für verschiedene a und b die beiden Geradenscharen der Abb.8.

Die wirkliche σ -Kurve muss in dem schraffierten Gebiet verlaufen. So bleibt als einzige Möglichkeit eine Gerade, die der angegebenen Parameterwahl von Abb.7 (nahezu) entspricht. Die Annahme über a und b bei niederem Druck ist wahrscheinlich etwas besser erfüllt als bei hohem Druck.

Die Übereinstimmung der Verbreiterungskoeffizienten β_M (der Steigungen in Abb.7) für Ar ist erstaunlich gut. Theoretisch sollte die Steigung der Geraden zwischen $\sigma = 10^{-18}$ und $3 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ von 95 % auf 60 % des ursprünglichen Wertes gesunken sein (vgl. Abb.3). Nach den Messungen der Abb.7 scheint der lineare Bereich aber viel weiter zu reichen.

Zugleich rechtfertigt die Übereinstimmung der β_M -Koeffizienten aus den verschiedenartigen Messungen die Wahl von $b = 1,5 / 2, 3 /$ für lange Emissionszeiten (einige 10^{-5} sec) und niedere Radikal-

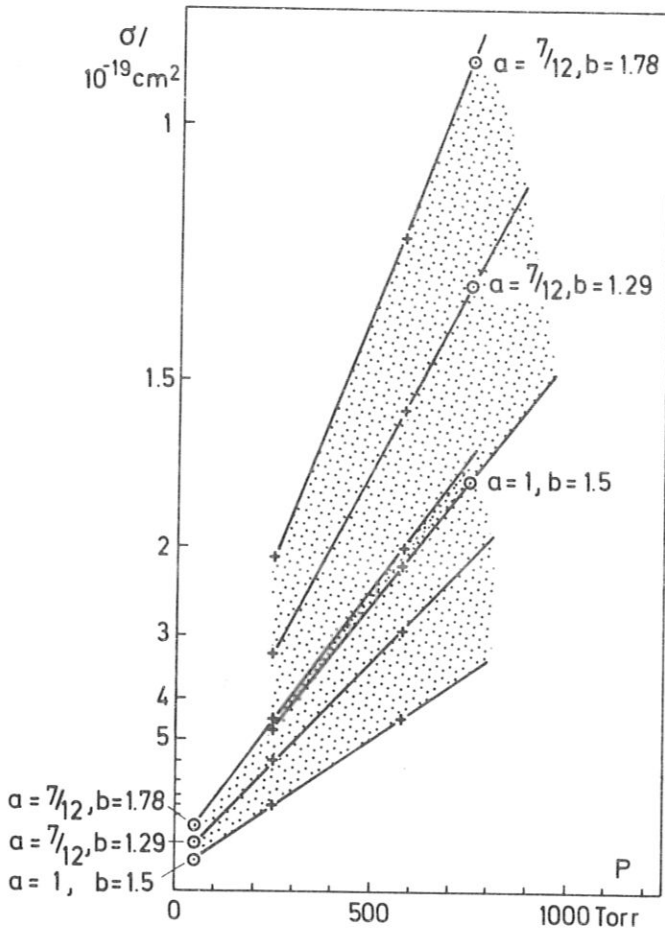


Abb.8 σ in Abhängigkeit vom Druck bei Wahl aller möglichen a- und b-Parameter (vgl. Gl.(21)); \odot nach Absolutmessungen, $+$ nach Relativmessungen

und Jodatom-Dichten (kleiner als etwa 0,1 Torr). Unsere eigenen Oszillatormessungen mit etwas kürzeren Zeiten (einige μsec) und wesentlich höheren Fotolysedichten (um 10 Torr J^* und $i\text{-C}_3\text{F}_7$) lassen sich besser mit einem b-Wert in der Nähe von 1 vereinbaren. Dafür ist wahrscheinlich die Rekombination vom Grundzustandsjod mit C_3F_7 -Radikalen verantwortlich.

In der Tabelle sind die β_M -Koeffizienten aus der nsec-Puls-Messreihe (Steigung der Geraden der Abb.7) und aus der msec-Messreihe zusammen mit Literaturwerten aufgeführt. Die Relativmessung von Aldridge /1/ orientiert sich an dem CF_3J -Wert von Hohla /4/.

M	$\beta_M / 10^{15}$ $\text{cm}^{-2} \text{Torr}^{-1}$	Lit.	$k_M / 10^{-16}$ $\text{cm}^3 \text{sec}^{-1}$	Lit.	P_{10} / Torr	$\sigma / 10^{-19} \text{cm}^2$ bei P_{10}
He	3,1	1, a)	0,02	11	170000	4,6
Ar	3,8	1, a)				3,8
	3,6	2				4,0
	4,1	3				3,5
	3,55		0,02	11	170000	4,0
N ₂	5,1		2	11	1700	1,15
CO	6,3		12	11	280	5,7
CO ₂	7,0		1,5	11	2200	0,65
	7,3		4,6		700	1,95
SF ₆	5,0		0,24	11	14000	2,9
CF ₂ Cl ₂	11,3		25		135	6,6
CF ₃ J	8,7	4, a)	2,2	4, b)	1500	0,77
			0,65	12		1,64
i-C ₃ F ₇ J	15,5		8,0	12, b)	420	1,5
CF ₃ Br	5,4		- (c)		(600) (c)	3,1
(CF ₃) ₂ CO	14,4		- (c)		(350) (c)	2,0
J, J*	12,5					

Tabelle

Druckverbreiterungskoeffizienten β_M , Geschwindigkeitskonstanten k_M für Desaktivierung von J*, zulässige Drücke P_{10} und erreichbare σ -Werte für verschiedene Gase M

a) berechnet mit der Annahme, dass in $/4/$ $a = 7/12$ statt 1 und $b = 1,78$ statt 1,5 ist

b) eigene Messung

c) in Kombination mit CF₃J nicht exponentielle Desaktivierung; P_{10} nur in Gegenwart von CF₃J

Die Tabelle zeigt, dass die Verbreiterungseffekte immerhin um mehr als den Faktor 4 variieren. Trotzdem ist es nicht zweckmässig, die wirksamsten Gase zu verwenden. Hier kommt die zweite Begrenzung für Speicherbarkeit zur Geltung, die Desaktivierung des angeregten Jods durch das Fremdgas. Desaktivierungskonstanten - zum grossen Teil Literaturwerte - sind ebenfalls in der Tabelle angegeben.

Setzt man sich nun selbst die Grenze, dass während der Pumpzeit t höchstens der Bruchteil x der Inversion desaktiviert werden darf, dann kann der maximal zulässige Fremdgasdruck P_{\max} aus

$$P_{\max} \approx \frac{2}{3} \cdot \frac{x}{k t} \cdot \frac{1}{3,3 \cdot 10^{16} \frac{\text{molec}}{\text{cm}^3 \text{ Torr}}} \quad (24)$$

berechnet werden (vgl. Anhang). Je kürzer die Pumpzeit, desto höhere Fremdgasdrücke kann man zulassen. Eine typische Blitzdauer, die man auch bei grösseren Anlagen noch erreicht, ist $10 \mu\text{sec}$. (Wesentlich längere Pumpzeiten kann man sich nicht erlauben, weil sonst Druckwellen von der Wand her das Innere des Mediums erreichen.) Die in der Tabelle angegebenen Grenzdrücke P_{10} führen zu Desaktivierungsverlusten von 10 % ($x = 0,1$) in $10 \mu\text{sec}$. Bei den Edelgasen ist dieser Druck keine wirkliche Beschränkung. Bei CF_3J oder $\text{C}_3\text{F}_7\text{J}$, aus dem bei der Fotolyse das angeregte Jod gebildet wird, lässt sich der Grenzdruck ebenfalls nicht ausnützen, da die Eindringtiefe des Blitzlichtes schon bei Atmosphärendruck nur noch Bruchteile eines Millimeters beträgt. Für die anderen Gase bestimmt der Druck P_{10} das kleinste, mit erträglichen Inversionsverlusten noch erreichbare σ . Es ist in der Tabelle ebenfalls angegeben, neben σ -Werten bei Atmosphärendruck.

Ein angestrebter Wert von $\sigma = 2 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ kann offensichtlich mit mehreren Gasen erreicht werden, insbesondere mit Ar, N_2 und CO_2 , im Fall von Kohlendioxid sogar schon bei Atmosphärendruck. Damit ist CO_2 natürlich ein sehr bequemes Verbreiterungsgas. Leider hat eine Nachmessung der Desaktivierungskonstanten (Tabelle) ergeben, dass man über 700 Torr besser nicht hinausgehen sollte

(bei einer gewünschten Speicherzeit von $10 \mu\text{sec}$). Strebt man also noch kleinere σ -Werte an, so empfiehlt sich Argon bei höherem Druck.

Es besteht die Möglichkeit, dass ein Teil der β -Koeffizienten für CF_3J und $\text{C}_3\text{F}_7\text{J}$ auf Selbstverbreiterung (Resonanzverbreiterung) /13/ zurückzuführen ist. In der Literatur /5/ findet sich eine berechnete Geschwindigkeitskonstante für den Energieaustausch zwischen Jodatomen. Sie beträgt $1,4 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ sec}^{-1}$ entsprechend $4,5 \times 10^7 \text{ Torr}^{-1} \text{ sec}^{-1}$. Division durch π ergibt die dadurch hervorgerufene Linienverbreiterung (15 MHz/Torr). Über Beziehung (12) oder (17) berechnet man daraus den in der Tabelle angegebenen Wert von $\beta_{\text{J}^*,\text{J}} = 12,5 \times 10^{15} \text{ cm}^2 \text{ Torr}^{-1}$. Bei unseren $\text{C}_3\text{F}_7\text{J}$ -Messungen betrug der Fotolysegrad 10 bis 15 %. Das heisst, der Anteil der Selbstverbreiterung an dem gemessenen $\beta_{\text{C}_3\text{F}_7\text{J}}$ -Koeffizienten betrug $(0,1 \text{ bis } 0,15) \cdot 12,5/15,5 = 8 \text{ bis } 13 \%$. Da der Fotolysegrad selten höher ist und nicht sehr stark variiert, spielt die Resonanzverbreiterung kaum eine Rolle gegenüber der Fremdgasverbreiterung.

Zum Schluss seien die Druckverbreiterungen mit den gaskinetischen Stossfrequenzen verglichen. Die Linienbreite kann auf eine Stossfrequenz $Z_{\text{J},\text{M}}$ zurückgeführt werden /6/

$$\frac{1}{2} \cdot (2\pi \Delta\nu) = Z_{\text{J},\text{M}} / n_{\text{J}}$$

(n_{J} = Dichte der Jodatome).

Der Verbreiterungskoeffizient α_{M} ist also

$$\begin{aligned} \alpha_{\text{M}} &= \frac{Z_{\text{J},\text{M}}}{n_{\text{J}} \cdot n_{\text{M}}} \cdot \frac{1}{\pi} \\ &= (r_{\text{J}} + r_{\text{M}})^2 \cdot \sqrt{\frac{8}{\pi} \cdot kT \cdot (m_{\text{J}}^{-1} + m_{\text{M}}^{-1})} \cdot 3,3 \cdot 10^{16} \frac{\text{molec}}{\text{cm}^3 \text{ Torr}} \end{aligned} \quad (25)$$

(m = Molekülmasse).

Der Wurzelausdruck ist gleich der mittleren Relativgeschwindigkeit von J und M. Durch (25) ist ein optischer Stossquerschnitt $\pi(r_J + r_M)^2$ definiert. Nach verschiedenen Theorien /13/ ist er etwas grösser als der van-der-Waals-Querschnitt. Setzt man in (25) van-der-Waals-Radien ein, so erhält man für Ar und CO₂

	α (gaskin.)	α (gemessen)	
Ar	1,86	4,6	MHz/Torr
CO ₂	1,99	9,1	MHz/Torr

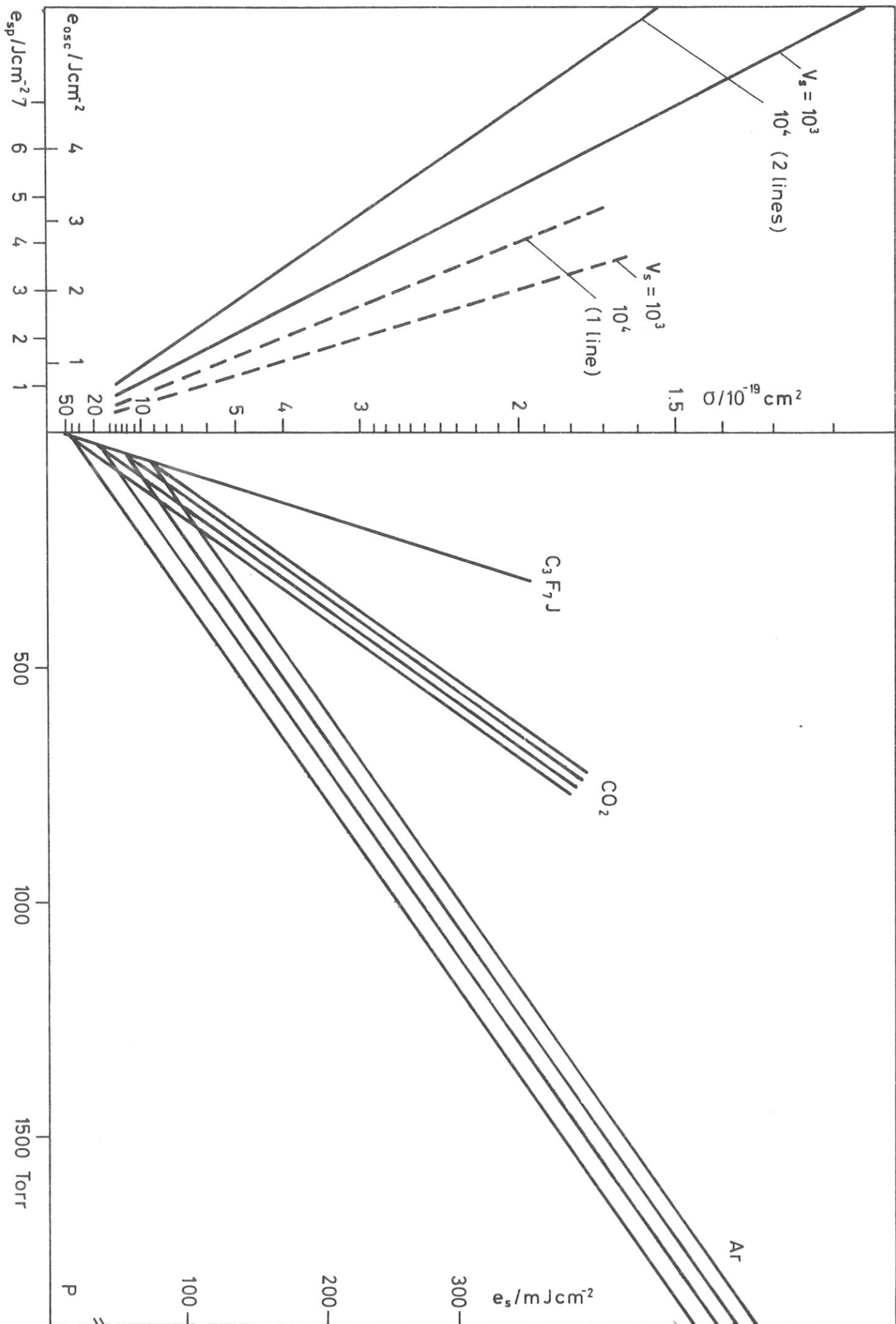
Das heisst, der optische Stossquerschnitt ist tatsächlich deutlich grösser als der gaskinetische. Das ist jedenfalls für die stark verbreiternden Gase zu erwarten; denn während die gaskinetischen Stossfrequenzen kaum variieren, ergeben sich laut Tabelle grosse Unterschiede in den Verbreiterungskoeffizienten.

Zum schnellen Auffinden von σ und einigen damit zusammenhängenden Eigenschaften eignet sich ein Diagramm nach Abb.9, S. 28. Hier ist $1/\sigma$ gegen den Druck für die drei wichtigsten Verbreiterungsgase (C₃F₇J, Ar, CO₂) aufgetragen*). Sucht man beispielsweise den σ -Wert bei 70 Torr C₃F₇J + 680 Torr Ar, dann folgt man zuerst der C₃F₇J-Geraden bis zu 70 Torr und von da an der entsprechenden Ar-Geraden bis zum Gesamtdruck von 750 Torr; auf der Ordinate liest man dann $\sigma = 2,5 \times 10^{-19} \text{ cm}^2 \text{ ab}^*)$. Daraus erhält man mit dem linken Teil der Abbildung bei einer angenommenen Kleinsignalverstärkung (Schwellverstärkung) von 10^3 oder 10^4 die Energiedichte e_{sp} , die auf beiden oberen Niveaus zusammen ("2 Linien" in der Abbildung) oder auf dem F = 3-Niveau allein ("1 Linie") gespeichert (speicherbar) ist. Es ist

$$e_{sp} \text{ (2 Linien)} = \frac{h\nu}{\sigma} \ln V = \frac{3,45}{\sigma/10^{-19} \text{ cm}^2} \cdot \lg V \quad \text{Jcm}^{-2}$$

$$e_{sp} \text{ (1 Linie)} = \frac{7}{12} \cdot \frac{h\nu}{\sigma} \ln V = \frac{2,42}{\sigma/10^{-19} \text{ cm}^2} \cdot \lg V \quad \text{Jcm}^{-2}$$

*) σ heisst immer max σ_{ges}



Die zugehörige Oszillatorenergie ist 1,5-mal kleiner, solange die Rekombination der Grundzustandsjodatome mit den Radikalen noch langsam im Vergleich zur Emission ist:

$$e_{osc} = h\nu \cdot \frac{\Delta n_{sp} \cdot \ell}{b} = \frac{h\nu}{b \sigma} \cdot \ln V = \frac{2,3}{\sigma / 10^{-19} \text{ cm}^2} \cdot \lg V \text{ J cm}^{-2}$$

Wenn diese Rekombination dagegen schnell im Vergleich zur Emission ist, dann kann die gesamte gespeicherte Energie emittiert werden. Die Energiedichte e_{osc} der Abb.9 ist auch gleich der maximalen Energie pro cm^2 , die man aus einem Verstärker im Zweibandbetrieb herausholen kann. Nützt man nur das F = 3-Niveau aus, dann ist diese maximal extrahierbare Energie (bei hohem Druck und nicht zu kurzen Pulsen ist $b = 1 + 7/24 = 1,29$) 2,2/1,5-mal kleiner:

$$1 \text{ Linie: } e_{extr} = \frac{7}{12} \cdot h\nu \cdot \frac{\Delta n_{sp} \cdot \ell}{1,29} = h\nu \cdot \frac{\Delta n_{sp} \cdot \ell}{2,2}$$

$$2 \text{ Linien: } e_{extr} = h\nu \cdot \frac{\Delta n_{sp} \cdot \ell}{1,5} \quad (= e_{osc})$$

Zu jedem σ gehört eine Sättigungsenergiedichte e_s (Skala rechts in Abb.9)

$$e_s = \frac{7}{12} \cdot \frac{h\nu}{b \sigma} = \frac{7}{12} \cdot \frac{1,50 \cdot 10^{-19} \text{ J}}{1,29 \cdot \sigma} = \frac{0,68}{\sigma / 10^{-19} \text{ cm}^2} \text{ J cm}^{-2}$$

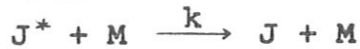
Die Wahl $b = 1,29$ gilt für 1 nsec-Pulse, solange die Linienbreite einer Einzellinie $\Delta\nu \gg 1/(\pi \cdot 1 \text{ nsec}) = 0,3 \text{ GHz}$ ist. Deshalb ist die Skala am unteren Ende unterbrochen. Die zu jedem σ gehörige Linienbreite kann aus Abb.3 entnommen werden. Diese e_s -Werte gelten wie die Beziehung für Gross-Signalverstärkung

$$V_{\text{gro\ss}} = \frac{e_s}{e_{\text{ein}}} \cdot \ln(1 + [\exp \frac{e_{\text{ein}}}{e_s} - 1] \cdot V_{\text{klein}})$$

nur für den Einlinienbetrieb (Ausgangsniveau F = 3). Wenn die beiden Liniengruppen beginnen sich zu überlappen, werden beide Beziehungen ungenau. Für praktische Zwecke kann man sie wohl noch bis zu $\sigma \approx 2 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ benutzen, wo die Beiträge der beiden Liniengruppen zu σ ($= \max \sigma_{ges}$) sich wie etwa 1 : 5 verhalten.

A N H A N G : Desaktivierung

Die Desaktivierung des angeregten Jods spielt sich bei den untersuchten Gasen nach



ab. Der Zeitablauf der Konzentrationen (Dichten, mit (J^*) , (J) und (M) bezeichnet) folgt deshalb der Geschwindigkeitsgleichung

$$\frac{d(J^*)}{dt} = P - k \cdot (M) \cdot (J) \quad (1)$$

Für zwei extreme Pumpfunktionen P sei (1) integriert:

1. $P = \text{const}$ für $t > 0$ und $P = 0$ für $t < 0$.

Man erhält

$$(J^*) = \frac{P}{k \cdot (M)} \cdot (1 - \exp(-kMt)) \approx P \cdot t - \frac{1}{2} P \cdot k \cdot (M) \cdot t^2$$

$$(J) = P \cdot t - (J^*) \approx \frac{1}{2} P \cdot k \cdot (M) \cdot t^2$$

$$\Delta n = (J^*) - \frac{1}{2}(J) \approx P \cdot t - \frac{3}{4} P \cdot k \cdot (M) \cdot t^2$$

Für $(M) = 0$ ergibt sich $\Delta n = P \cdot t$. Für welchen Fremdgasdruck (M) erhält man nach vorgegebener Zeit (z.B. $10 \mu\text{sec}$) gerade noch 90 % ($x = 0,1$) davon ?

$$(1-x) \cdot Pt = Pt - \frac{3}{4} P \cdot k \cdot (M) \cdot t^2 \quad (2)$$

also $k(M)t = \frac{4}{3} x$

2. P ist eine δ -Funktion der Zeit, d.h. die Pumpzeit ist extrem kurz. Man erhält

$$(J^*) = (J^*)_0 \cdot \exp(-k(M)t)$$

$$(J) = (J^*)_0 \cdot (1 - \exp(-k(M)t))$$

$$\Delta n = (J^*)_0 \cdot \left(\frac{3}{2} \exp(-k(M)t) - \frac{1}{2} \right) \approx (J^*)_0 \cdot \left(1 - \frac{3}{2} k(M)t \right)$$

also

$$(1-x) \cdot (J^*)_0 = (J^*)_0 \cdot \left(1 - \frac{3}{2} k(M)t\right) \quad (3)$$
$$k(M)t = \frac{2}{3} \cdot x$$

Um sicher zu gehen, ist es besser, mit der pessimistischeren Beziehung (3) als mit (2) zu arbeiten.

Zusammenfassung

Die speicherbare Energie von Hochleistungslasern ist umgekehrt proportional zum Maximum des Wirkungsquerschnitts für stimulierte Emission. Ein zugesetztes Fremdgas verbreitert die Emissionslinie und erniedrigt dadurch σ . Beim Jodlaser entstehen Komplikationen durch die Hyperfeinstruktur. Wenn die HFS-Linien beginnen sich zu überlappen, dann sollte das Maximum von σ vorübergehend weniger stark mit dem Druck sinken als im Fall einer einzelnen Linie. Vor allem aber ändert sich das Sättigungsverhalten: Man kann die Sättigungsenergie nicht mehr mit Entartungsfaktoren für eine einzelne Linie berechnen. Wir konnten sowohl σ als auch die Sättigungsenergie und damit die Entartungsfaktoren als Funktion des Drucks einiger Gase (Ar, N₂, CO, CO₂, SF₆, CF₃Br, C₃F₇J, CF₂Cl₂, (CF₃)₂CO) bestimmen. Die Sättigungsenergie haben wir durch Kombination von Gross- und Kleinsignalverstärkungsmessungen bestimmt, vgl. Gl.(20). Wenn a und der Entartungsfaktor b bekannt sind, folgt daraus σ , vgl.(21). Relative σ -Werte bei weiteren Drücken haben wir aus dem Verhältnis der Kleinsignalverstärkungen bestimmt, die unabhängig vom jeweiligen a- und b-Wert sind. Bezieht man diese relativen σ 's auf σ -Werte, die aus den Sättigungsenergien durch Einsetzen aller denkbaren Werte für a und b gewonnen wurden, dann stellt sich heraus, dass die Messreihen nur konsistent sind für die Wahl a = 7/12, b = 1,78 bei kleinem Druck und a = 1, b = 1,5 bei hohem Druck, vgl. Abb.8. Diese Parameter sind mit Nanosekundenpulsen gemessen. Bei wesentlich längeren Zeiten sind Relaxationen der HFS-Unterniveaus untereinander zu berücksichtigen, im μ sec-Zeitbereich spielt ausserdem die Rekombination der Radikale mit Grundzustandsjod eine Rolle. Beide Effekte erniedrigen b/a, im Extremfall bis auf den Wert 1.

Trägt man die gemessenen $1/\sigma$ gegen den Druck auf, so erhält man für alle untersuchten Gase Geraden. Man hätte eigentlich gekrümmte Kurven nach Art von Abb.3 erwartet, da die aus σ berechnete Überlappung der HFS-Linien mit dem Druck stark variiert.

Möglicherweise setzt mit dem Beginn der Überlappung ein zusätzlicher Verbreiterungsmechanismus ein.

Für Energiespeicherung ist CO_2 ein guter Kompromiss zwischen Druckverbreiterung und Desaktivierung von J^* . Bei einer Atmosphäre CO_2 kann man 5 bis 7 J cm^{-2} speichern, die HFS ist weitgehend verwischt und Pulse von weniger als 100 psec Dauer dürften verstärkt werden.

Literaturverzeichnis

- 1 F.T. Aldridge, Appl. Phys. Lett. 22 (1973) 180
- 2 F.T. Aldridge, Veröffentlichung geplant in IEEE JQE
- 3 V.S. Zujev, V.A. Katulin, V.Ju. Nosač, O. Ju. Nosač, ŽETF 62 (1972) 1673
- 4 K. Hohla, Dissertation, Universität München 1971; IPP-Report IV/33, 1971
- 5 E.A. Yukov, Sov. J. Quant. El. 3 (1973) 117;
V.A. Alekseev, T.L. Andreeva, V.N. Volkov, E.A. Yukov, Sov. Phys. JETP 36 (1973) 238
- 6 vgl. z.B. A.E. Siegman, "An Introduction to Lasers and Masers", McGraw Hill, New York 1971
- 7 vgl. z.B. E.U. Condon, G.H. Shortley, "Theory of Atomic Spectra", University Press, Cambridge 1964
- 8 S.J. Riley, K.R. Wilson, J. Chem. Soc. Faraday Disc. 53 (1972) 133
- 9 vgl. z.B. A. Maitland, M.H. Dunn, "Laser Physics", North Holland Publishing Co., Amsterdam 1969
- 10 Unveröffentlichte Untersuchungen in Zusammenarbeit mit R. Volk
- 11 R.J. Donovan, D. Husain, Chem. Soc. (London) Annual Reports A68 (1971) 148
- 12 V.Yu. Zalesskii, T.I. Krupenikova, Optics and Spectroscopy 30 (1973) 439
- 13 vgl. R.G. Breene, "The Shift and Shape of Spectral Lines", Pergamon, Oxford 1961
- 14 P.R. Avizonis, R.L. Grotbeck, J. Appl. Phys. 37 (1966) 687;
vgl. auch E.L. Steele, "Optical Lasers in Electronics", Wiley, New York 1968 sowie Ref. 4
- 15 K. Hohla, IPP-Report IV/ 79 (1975)