

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR PLASMAPHYSIK

GARCHING BEI MÜNCHEN

Beobachtung von stimulierter
Raman-Antistokesstrahlung höherer
Ordnung und deren Bedeutung für die
Startphase der Plasmaerzeugung
durch Laser

Observation of high-order stimulated
Raman-Antistokes radiation and its
role in the initial phase of plasma
production by lasers

H. Mennicke

IPP IV/40

Juli 1972

*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.*

July 1972 (in German)

A b s t r a c t

A new model for the production of the first free electrons in a laser produced hydrogen plasma is presented. According to this model light of strongly enhanced quantum energy - compared with the quantum energy of the input laser light - is produced by high order stimulated Raman-Antistokes scattering during the initial phase of the laser matter interaction. Production of the first free electrons is then achieved by photoionization due to the high order Raman-Antistokes radiation. Possibilities for dissociation of hydrogen molecules are also briefly discussed.

In corresponding experiments solid hydrogen, deuterium, and nitrogen targets were irradiated with high intensity ruby laser light (10^{12} W/cm²). Raman-Antistokes emission was observed spectroscopically for N₂ up to the 12th, D₂ up to the 10th, and H₂ up to the 7th order. The shortest observed wavelength was 2260 Å. Time resolved intensity measurements of the transmitted laser light, the Raman light and the original laser light show that the Raman processes occur just before breakdown is observed.

These experimental results corroborate the proposed theoretical model of the initial phase of laser induced plasma breakdown.

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

	Seite
1. DAS PROBLEM DER ERSTEN FREIEN ELEKTRONEN	1
2. PHOTOIONISATION DES WASSERSTOFFS DURCH RAMAN-ANTISTOKES- LICHT HÖHERER ORDNUNG	4
2.1 Erzeugung von Licht erhöhter Quantenenergie	4
2.2 Theorie des stimulierten Ramaneffektes	5
2.3 Das Ionisationsmodell	11
3. ÜBERLEGUNGEN ZUR MOLEKÜLDISSOZIATION	14
4. EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNG DER STIMULIERTEN RAMANSTREUUNG	16
4.1 Der Versuchsaufbau	17
4.1.1 Die Herstellung fester Wasserstofftargets ..	17
4.1.2 Der Laser und die Plasmaerzeugungsapparatur.	19
4.2 Spektroskopische Messungen	21
4.3 Zeitaufgelöste Intensitätsmessung des Streulichtes.	29
5. ZUSAMMENFASSUNG	36
Anhang I	39
Anhang II	
Literaturverzeichnis	

1. DAS PROBLEM DER ERSTEN FREIEN ELEKTRONEN

Kurz nachdem vor einigen Jahren die ersten gütegeschalteten Hochleistungslaser verfügbar waren, erschienen bereits erste Arbeiten, in denen über Plasmabildung bei der Wechselwirkung des Laserlichts mit Materie berichtet wurde /1/. Durch die raschen Fortschritte bei der Entwicklung sehr leistungsstarker Laser gelang es in den folgenden Jahren, immer heissere Plasmen mit sehr hoher Dichte herzustellen und man hält es heute nicht mehr für ausgeschlossen, dass auf diesem Wege - durch die Bestrahlung schweren Wasserstoffs - die künstliche Kernfusion erreicht werden kann.

Dies ist sicherlich ein wesentlicher Grund dafür, dass solche lasererzeugte Plasmen und speziell Wasserstoff- und Deuteriumplasmen seit einigen Jahren in vielen Laboratorien sehr intensiv untersucht werden. Eines der physikalisch interessantesten Probleme ist in diesem Zusammenhang die Frage nach dem Startmechanismus der Plasmaerzeugung. Das heisst, also die Frage, wie kommt es überhaupt zu einer Absorption des Laserlichtes und der damit verbundenen Aufheizung des Wasserstoffs? Es wird heute meist angenommen, dass, wie Wright /2/ zuerst ausgeführt hat, die Lichtabsorption durch freie Elektronen in inversen Bremsstrahlungsprozessen erfolgt. Hierbei werden die Elektronen so stark beschleunigt, dass sie beim Zusammentreffen mit neutralen Atomen weitere Elektronen durch Stossionisation herausschlagen können. Diese werden dann ihrerseits beschleunigt und tragen zur weiteren Ionisation der bestrahlten Substanz bei. Die Zahl der freien Elektronen und Ionen wächst auf diese Weise kaskadenartig schnell an, und als Folge davon wird das Laserlicht in immer stärkerer Masse absorbiert. Dabei werden zunächst sehr hohe Elektronentemperaturen erreicht und durch die Vermittlung von Elektron-Ionenstössen werden dann schliesslich auch die Ionen zu sehr hohen Temperaturen aufgeheizt. Ausführliche Rechnungen verschiedener Autoren (vergl. z.B. /3/, /4/) haben zu qualitativ guter Übereinstimmung mit experimentellen Befunden geführt. Dennoch wird unsere eingangs gestellte Frage durch dieses Modell noch nicht befriedigend beantwortet. Die entscheidende Frage nämlich, nach der Herkunft der ersten freien Elektronen, ohne die das Kaskadenmodell nicht auskommt, ist offen geblieben. Die Beantwortung dieser Frage, wie durch die Wechselwirkung des Laserlichtes mit dem Wasserstoff bzw. Deuterium die ersten freien Elektronen erzeugt werden können ist jedoch keineswegs trivial.

Der naheliegende Gedanke, die freien Elektronen könnten durch einen direkten Photoionisationsprozess oder durch stufenweise Anregung von Elektronenniveaus der Moleküle erzeugt werden, erweist sich bei näherer Betrachtung der Eigenschaften des Wasserstoff- bzw. Deuteriummoleküls als nicht haltbar. Wasserstoff ist wie Deuterium sowohl im gasförmigen als auch in dem für Plasmaerzeugungsexperimente häufig verwandten festen Zustand eine völlig durchsichtige farblose Substanz, die, insbesondere bei den Wellenlängen der für die Experimente in Frage kommenden Rubin- oder Neodymgaslaserstrahlung, keine Absorptionsstellen hat. In Abb.1 sind die Potentialkur-

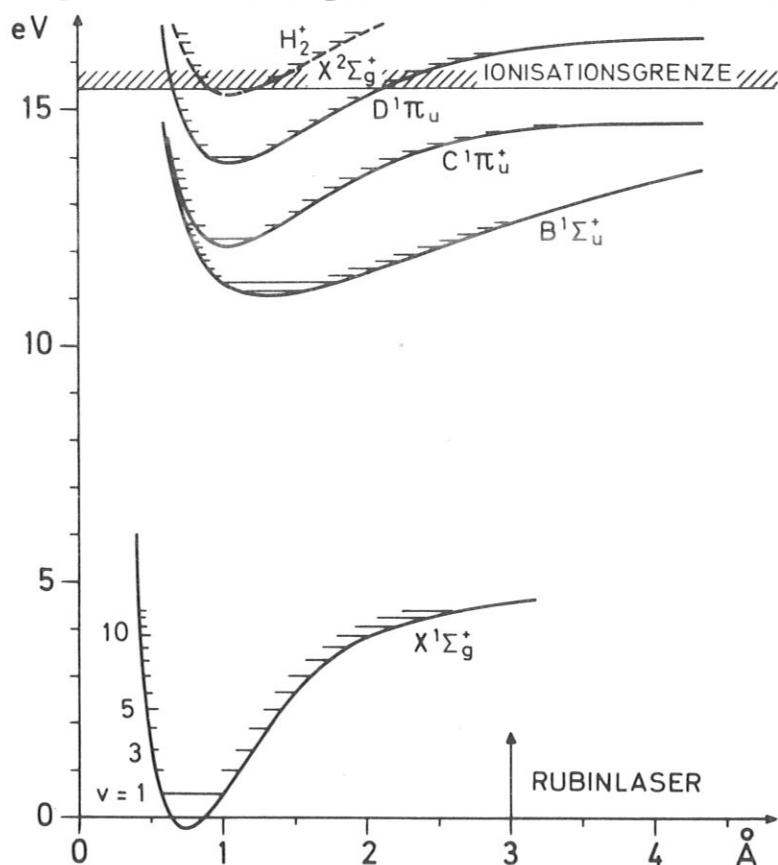


Abb.1 Potentialkurven des Wasserstoffmoleküls nach Sharp /22/. Zum Vergleich ist die Energie eines Rubinlaserquants eingezeichnet.

ven des Wasserstoffmolekülgrundzustandes sowie der mit dem Grundzustand in Absorption kombinierenden /5/ angeregten Elektronenniveaus dargestellt. Man erkennt, dass die ebenfalls eingezeichnete Energie der Lichtquanten des Rubinlasers (1,79 eV) bzw. des Neodymlasers (1,17 eV) nicht nur für eine Photoionisation viel zu klein ist, sondern auch bei weitem nicht ausreicht, um eines der angeregten Niveaus zu erreichen. Eine Ionisation durch Photoeffekt scheint also nicht denkbar.

Trotzdem wird aber die Ionisation bei sehr hohen Lichtintensitäten ($\approx 10^9 \text{ W/cm}^2$) beobachtet. Es muss also irgend einen anderen Mechanismus geben, der die erforderlichen Elektronen liefert. Young und Hercher /6/ konnten zeigen, dass für die Auslösung des Kaskadenmechanismus anfangs nur einige wenige Elektronen benötigt werden.

Die Frage der Herkunft der ersten Elektronen ist von verschiedenen Autoren diskutiert worden. Tozer /7/ erörtert die Möglichkeit, dass Elektronen, die durch Höhenstrahlung und die natürliche Radioaktivität der Erdoberfläche ständig in der Atmosphäre gebildet werden, diese Rolle spielen könnten, kommt aber zu dem Ergebnis, dass wegen der geringen Gleichgewichtskonzentration von 10^3 Elektronen cm^{-3} in der Atmosphäre und der niedrigen Produktionsrate von ca. 10 Elektronen $\text{cm}^{-3} \text{sec}^{-1}$ die Wahrscheinlichkeit sehr gering ist, solcherart erzeugte Elektronen während der kurzen Laserimpulsdauer von 10^{-8} sec in dem kleinen Reaktionsvolumen von etwa 10^{-5}cm^3 , wie es üblichen Versuchsbedingungen entspricht, anzutreffen. Tozer nimmt daher wie Gold und Bebb /8/ an, dass die wenigen benötigten Elektronen bei sehr hohen Laserintensitäten durch einen Multiphotonenprozess freigesetzt werden können, bei dem die Ionisationsgrenze durch gleichzeitige Absorption mehrerer Lichtquanten überwunden wird. Im Experiment zeigt sich, dass man zwar bei Versuchen mit Edelgasen unter niedrigem Druck relativ gute Übereinstimmung mit der Theorie findet /9/, dass aber bei hohen Gasdrucken der Durchbruch schon bei wesentlich niedrigeren Intensitäten erfolgt als entsprechend der Theorie des Multiphotoneneffektes zu erwarten wäre. Chin /10/ vermutet, dass solche Abweichungen von der Theorie möglicherweise auf Verunreinigungen durch leichter ionisierbare Kohlenwasserstoffe zurückzuführen sind (mit Ionisierungsenergien zwischen 8 und 12 eV), die sich als Hintergrundgas praktisch immer in geringfügigen Mengen in den bei entsprechenden Versuchen verwendeten Vakuumsystemen befinden.

In der vorliegenden Arbeit wird nun erstmals ein Mechanismus beschrieben, der bei hohen Laserintensitäten zur Ionisation von Molekülen führen kann und sich grundsätzlich vom Multiphotoneneffekt unterscheidet.

Bei den hohen Lichtintensitäten, wie sie für die Plasmaerzeugung benötigt werden, ist zu erwarten, dass während des Anstiegs des Laserimpulses zunächst nichtlineare optische Effekte eine starke Rolle spielen und es ist daher denkbar, dass bei der nichtlinearen Wechselwirkung des Laserlichtes mit der Materie Lichtquanten erzeugt werden, deren Energie gross genug ist, um einzelne Moleküle in einem Photoprozess zu ionisieren.

Ausgehend von dieser Grundlage der nichtlinearen optischen Wechselwirkung wird zunächst theoretisch ein Weg gezeigt, auf dem in molekularen Substanzen Lichtquanten hoher Energie erzeugt werden können und in Abschnitt 4 dieser Arbeit werden Experimente und deren Ergebnisse geschildert, die in guter Übereinstimmung mit den Modellvorstellungen stehen. In Kapitel 3 wird das Problem der Moleküldissoziation durch Laserlicht diskutiert.

2. PHOTOIONISATION DES WASSERSTOFFS DURCH RAMAN-ANTISTOKESLICHT HÖHERER ORDNUNG

2.1 Erzeugung von Licht erhöhter Quantenenergie

Ein nichtlinearer optischer Prozess, bei dem Licht von höherer Quantenenergie als der des eingestrahlteten Lichtes erzeugt wird, ist der stimulierte Ramaneffekt. Stimulierte Ramanstreuung tritt auf, wenn Licht sehr hoher Intensität mit den schwingungsfähigen Molekülen der bestrahlten Substanz in Wechselwirkung tritt. Dabei wird, ähnlich wie beim "spontanen" Ramaneffekt, sowohl Stokes- als auch Antistokes-Licht erzeugt. Beim Stokeslicht ist die Energie um einen

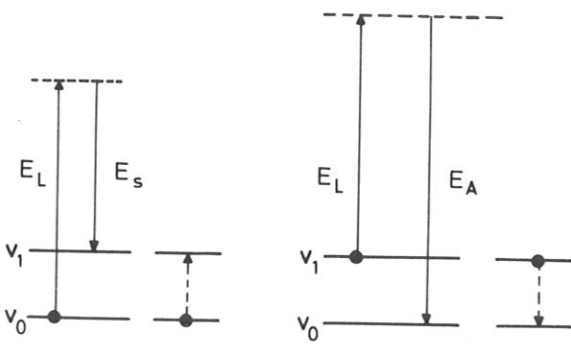


Abb.2 Entstehung von Raman-Stokes- (a) und Anti-stokeslicht (b). Die gestrichelten Pfeile bezeichnen die im betrachteten System tatsächlich stattfindenden Übergänge

Betrag, der der Übergangsenergie zwischen zwei benachbarten Schwingungszuständen der Moleküle entspricht (bei H_2 0,5 eV), erniedrigt, während beim Antistokes-Licht die Energie um den gleichen Betrag erhöht ist. Abb.2 soll dies anhand eines vereinfachten Energieniveauschemas veranschaulichen. Die beiden Niveaus v_0 und v_1 bezeichnen dabei zwei benachbarte Molekülschwingungszustände, entsprechend den beiden Niveaus $v = 0$ und $v = 1$ im $x^1\Sigma_g^+$ Zustand (vergl. Abb.1). Kommt es nun zwischen einem Lichtquant der Energie E_L und einem Molekül, das sich im unteren Schwin-

gungsniveau v_0 befindet, zur Wechselwirkung, so kann dieses Molekül durch den Ramanprozess in das höhere Niveau v_1 befördert werden (Fall a). Das entsprechende Lichtquant verliert dabei den zur Anregung notwendigen Energiebetrag $(E_1 - E_0)$ und wird als Stokeslicht mit einer entsprechend niedrigen Energie $E_S = E_L - (E_1 - E_0)$ gestreut. Befindet sich nun aber ein Molekül bereits vor Beginn der Wechselwirkung im oberen Niveau v_1 , so kann das Molekül durch den Ramanprozess auch in das untere Niveau v_0 befördert werden (Fall b). Die hierbei frei werdende Energie wird an das eingestrahelte Lichtquant abgegeben, das dadurch als Antistokeslicht mit einer Energie $E_A = E_L + (E_1 - E_0)$ gestreut wird.

Während nun bei niedrigen Lichtintensitäten, wie sie mit konventionellen Lichtquellen und auch mit nicht sehr leistungsstarken Lasern erreichbar sind, nur der spontane Ramaneffekt auftritt, beobachtet man bei sehr hohen Lichtintensitäten, etwa ab $10^6 - 10^7 \text{ W/cm}^2$ den stimulierten Ramaneffekt, der erstmals im Jahre 1962 am Nitrobenzol einer Kerrzelle beobachtet wurde /11/. Dieser stimulierte Ramaneffekt unterscheidet sich in verschiedener Hinsicht, wie etwa in seinen Kohärenzeigenschaften und der Winkelverteilung der Streustrahlung, wesentlich vom spontanen Effekt. Ein besonders wichtiger und für unsere weiteren Überlegungen entscheidender Unterschied ist die Intensität mit der das Streulicht beim stimulierten Effekt auftritt. Sie liegt um mehrere Größenordnungen über den beim spontanen Effekt zu erwartenden Werten und kann sogar in die Größenordnung der Intensität des eingestrahelten Lichtes kommen (vergl. z.B. /12/). Wie wir im Abschnitt 2.3 sehen werden, ergeben sich aus dieser Tatsache sehr wichtige Konsequenzen für unser Problem der Erzeugung von Lichtquanten hoher Energie. Zunächst wollen wir jedoch etwas auf die Theorie des stimulierten Ramaneffektes eingehen, die uns zeigen wird, unter welchen Voraussetzungen wir mit einem starken Effekt zu rechnen haben und wann die uns vor allem interessierende Antistokesstrahlung mit hoher Intensität auftreten kann.

2.2 Theorie des stimulierten Ramaneffektes

Nach Townes, Garmire und Pandarese /13/ kann die Erscheinung des stimulierten Ramaneffektes dadurch erklärt werden, dass das "spontane" Ramanlicht bei der gemeinsamen Wechselwirkung von Raman- und

Laserlicht mit den schwingungsfähigen Molekülen der bestrahlten Substanz auf Kosten des Laserlichtes verstärkt wird. Der Mechanismus dieser Verstärkung ist dem Prinzip des parametrischen Verstärkers ähnlich.

Wir wollen jetzt ein Molekül betrachten, das, wie der uns im Rahmen dieser Arbeit besonders interessierende Wasserstoff, aus zwei gleichen Atomen besteht (vergl. Abb.3). Ein solches Molekül kann in Rich-

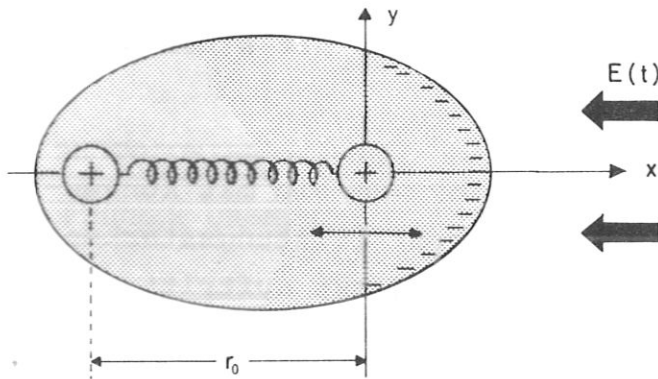


Abb.3 Modell eines elektrisch polarisierten zweiatomigen Moleküls

tung der Bindungsachse innere Schwingungen ausführen. In diese Richtung wollen wir die x-Achse eines Koordinatensystems legen. In der Gleichgewichtslage soll sich eines der beiden Atome im Nullpunkt der Koordinatenachse befinden, während sich das andere Atom ortsfest an der Stelle $x = -r_0$ ($r_0 =$ Gleichgewichtsabstand der beiden Atome) befindet.

Führt nun das Molekül innere Schwingungen aus, so ändert sich der gegenseitige Abstand der beiden Atome um den Betrag $x(t)$ entlang der x-Achse. Weiter soll unter dem Einfluss eines äusseren elektrischen Feldes E in dem Molekül ein Dipolmoment $\mu = \alpha \cdot E$ induziert werden, wobei die elektrische Polarisierbarkeit α nach Placzek /14/ für ramanaktive Moleküle eine Funktion des Atomabstandes ist und für nicht zu grosse Schwingungsamplituden durch die Entwicklung

$$\alpha = \alpha_0 + \frac{d\alpha}{dx} x \quad (2.2.1)$$

($\alpha_0 =$ Polarisierbarkeit in der Gleichgewichtslage) ausgedrückt werden kann. Für das Dipolmoment μ ergibt sich daraus

$$\mu = \alpha_0 E + \frac{d\alpha}{dx} x \cdot E \quad (2.2.2)$$

Gerät nun ein solches Molekül in das elektrische Wechselfeld einer Lichtwelle, so übt das Feld auf die induzierten Dipole eine Kraft aus und erregt die Moleküle zu Schwingungen. Das sich hieraus ergebende zeitlich veränderliche Dipolmoment ist dann durch die Beziehung (2.2.2) gegeben. Die zeitliche Veränderung dieses Dipolmomentes ist entscheidend dafür, ob eine bestimmte Feldkomponente,

die mit diesem Dipol in Wechselwirkung tritt, verstärkt werden kann oder nicht. Wie viel Energie P im Zeitmittel an eine Feldkomponente E' durch das zeitlich veränderliche Dipolmoment abgegeben wird, wird durch die aus der Elektrodynamik bekannte Beziehung

$$P = - \left\langle \frac{dU}{dt} \cdot E' \right\rangle \quad (2.2.3)$$

bestimmt. Für $P > 0$ findet Verstärkung statt, für $P < 0$ wird die Welle gedämpft.

Um nun festzustellen, ob das uns interessierende Ramanlicht verstärkt wird, wollen wir von dieser Beziehung (2.2.3) Gebrauch machen. Dazu müssen wir das Dipolmoment, das sich aufgrund der Molekülschwingungen unter dem Einfluss der äusseren Felder ergibt, ermitteln, d.h. zunächst müssen wir wegen (2.2.2) die Molekülschwingungsbewegung berechnen.

Hierzu lösen wir die folgende Schwingungsgleichung

$$m\ddot{x} + m\Gamma\dot{x} + m\omega_0^2 x = F \quad (2.2.4)$$

in der m die reduzierte Masse der beiden schwingenden Atome bedeutet, ω_0 die Resonanzfrequenz der Molekülschwingung und Γ eine empirisch eingeführte Dämpfungskonstante, die die Verluste berücksichtigen soll. Die äussere Kraft F wird in diesem Falle durch die Feldstärke des elektromagnetischen Wechselfeldes bestimmt, das an dem induzierten Dipolmoment angreift. Die Energie U , die für den Aufbau des induzierten Dipolmoments aufzuwenden ist, erhält man aus $U = \int u \cdot dE = \int \alpha \cdot E dE = \frac{1}{2} \alpha E^2$, d.h. die am schwingungsfähigen System angreifende Kraft F ist gegeben durch

$$F = \frac{dU}{dx} = \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} E^2 \quad (2.2.5)$$

In unserem Fall nehmen wir an, dass sich das äussere Wechselfeld aus drei Komponenten zusammensetzt, nämlich der Laserlichtwelle $E_L = E_{L0} \cos(\omega_L t - k_L x + \varphi_L)$, der Raman Stokeswelle $E_S = E_{S0} \cos(\omega_S t - k_S x + \varphi_S)$ (————) sowie der Raman-Antistokeswelle $E_A = E_{A0} \cos(\omega_A t - k_A x)$, wobei die beiden Ramankomponenten durch den spontanen Ramaneffekt entstanden sein mögen. Das gesamte Feld ist also gegeben durch

$$E = E_{A0} \cos(\omega_A t - k_A r) + E_{L0} \cos(\omega_L t - k_L r + \varphi_L) + E_{S0} \cos(\omega_S t - k_S r + \varphi_S) \quad (2.2.6)$$

Wegen (2.2.5) müssen wir nun die Summe dieser sich überlagernden Feldkomponenten quadrieren und erhalten nach Einsetzen in (2.2.5) und (2.2.4) schliesslich die endgültige Differentialgleichung, die uns die Molekülschwingungsbewegung beschreibt ⁺). Setzen wir die Lösung dieser Differentialgleichung und den Ausdruck (2.2.6) in (2.2.2) ein, so erhalten wir das zeitlich veränderliche Dipolmoment $\mu(t)$, das sich unter dem Einfluss des äusseren Feldes ergibt. Da wir nun schliesslich mit Hilfe der Beziehung (2.2.3) feststellen wollen, ob die Ramankomponenten bei ihrer Wechselwirkung mit den sich ausbildenden Dipolen verstärkt werden können, müssen wir das Dipolmoment μ noch nach der Zeit differenzieren und mit der entsprechenden Komponente E' des Feldes multiplizieren. Führt man diese Rechnungen im einzelnen durch und mittelt anschliessend über die Zeit, so erhält man schliesslich für die Antistokeswelle ($E' = E_A = E_{A0} \cos(\omega_A t - k_A r)$) den Ausdruck (siehe Anhang I)

$$P_A = -\left\langle \frac{d\mu}{dt} \cdot E_A \right\rangle = \frac{\left(\frac{d\alpha}{dx}\right)^2 \omega_A}{8 m \Gamma \omega_0} \cdot \left\{ -(E_{L0} E_{A0})^2 - (E_{L0} E_{S0})(E_{L0} E_{A0}) \cos[(2k_L - k_A - k_S)r + 2\varphi_L - \varphi_S] \right\} \quad (2.2.7)$$

Unter der Voraussetzung, dass $E_{S0} > E_{A0}$, was praktisch immer der Fall ist, kann die rechte Seite des Ausdrucks (2.2.7) positiv werden. Ihren maximalen Wert erreicht sie wenn $2k_L - k_A - k_S = 0$ und $2\varphi_L - \varphi_S = \pi$

Das Ergebnis (2.2.7) zeigt, dass die Raman-Antistokesstrahlung verstärkt werden kann. Allerdings nur dann, wenn die Beziehung $2k_L - k_A - k_S \approx 0$ zwischen den Wellenvektoren der drei Komponenten erfüllt ist. In Substanzen mit starker Dispersion beobachtet man das Auftreten von Antistokeslichtstrahlen, die daher rühren, dass die Streustrahlung, um die obige Beziehung erfüllen zu können, unter einem (kleinen) Winkel gegenüber der Einstrahlrichtung austritt. Beim Wasserstoff allerdings, für den wir uns hier vor allem interessieren, ist die Dispersion nur sehr gering und deshalb tritt die Antistokesstrahlung praktisch nur in Vorwärtsrichtung auf. Führt man die entsprechende Rechnung für die Stokeswelle durch ($E' = E_S = E_{S0} \cos(\omega_S t - k_S r + \varphi_S)$) so erhält man anstelle von (2.2.7):

⁺) Diese Differentialgleichung sowie die folgenden Rechnungen sind im Detail im Anhang I wiedergegeben.

$$P_s = - \left\langle \frac{dU}{dt} E_s \right\rangle = \frac{\left(\frac{d\alpha}{dx}\right)^2 \omega_s}{8m\Gamma\omega_0} \left\{ (E_{L_0} E_{S_0})^2 + (E_{L_0} E_{A_0})(E_{L_0} E_{S_0}) \cos[(2k_L - k_S - k_A)r + 2\varphi_L - \varphi_S] \right\} \quad (2.2.8)$$

Dieses Ergebnis zeigt, dass die Stokesstrahlung in allen Richtungen verstärkt wird, da der Klammerausdruck in (2.2.8) unter der Voraussetzung $E_S > E_A$ niemals negativ werden kann.

Unter der Annahme, dass $E_A \ll E_S$ kann man für die von den Molekülen an das Stokeslicht abgegebene Energie den etwas einfacheren Ausdruck

$$P'_s = \frac{\left(\frac{d\alpha}{dx}\right)^2 \omega_s}{8m\Gamma\omega_0} (E_{L_0} E_{S_0})^2 \quad (2.2.9)$$

herleiten.

An diesen Ausdruck wollen wir jetzt einige Überlegungen knüpfen, von deren Ergebnissen wir später in dieser Arbeit noch Gebrauch machen werden (Kap. 3 und 4.3).

Wir führen mit $N = N_0 - N_1$ die effektive Zahl der Moleküle pro Volumeneinheit ein, die an der Wechselwirkung teilnehmen, wobei N_0 die Molekülzahldichte im Schwingungsgrundzustand bedeutet und N_1 die Dichte im angeregten Zustand $v = 1$. Multiplizieren wir die rechte Seite von (2.2.9) mit N und ersetzen ausserdem die Feldstärken E_L, E_S vermöge der Beziehung $E_{L,S}^2 = \frac{8\pi}{cn} I_{L,S}$ durch die Intensitäten I_L und I_S ($c =$ Vakuumlichtgeschwindigkeit $n = n_L \approx n_S =$ Brechungsindex der für das Laserlicht und das Stokeslicht als gleich angenommen wird) so erhalten wir für die pro Volumen- und Zeiteinheit an das Stokeslicht übertragene Energie

$$\Pi = \frac{N \left(\frac{d\alpha}{dx}\right)^2 \omega_s 8\pi^2}{m\Gamma\omega_0 c^2 n^2} I_L I_S \quad (2.2.10)$$

Läuft nun eine Stokeslichtwelle mit der Anfangsintensität I_{S_0} in das verstärkende Medium hinein, so ist der Intensitätszuwachs $\frac{dI_S}{dx}$ gegeben durch

$$\frac{dI_S}{dx} = \Pi = g I_L I_S \quad (2.2.11)$$

wobei g definiert ist durch

$$g = \frac{N \left(\frac{d\alpha}{dx}\right)^2 \omega_s 8\pi^2}{m \Gamma \omega_0 c^2 n^2} \quad (2.2.12)$$

Integrieren wir (2.2.11) unter der Annahme, dass die Laserintensität während der Wechselwirkung konstant bleibt, so erhalten wir:

$$I_s = I_{s_0} e^{g I_c x} \quad (2.2.13)$$

Mit Hilfe dieser Formel ist es möglich, die Intensität des Stokeslichtes zu berechnen, die es nach Durchlaufen der Wechselwirkungslänge x erreicht hat. Um den hierfür benötigten Verstärkungsfaktor g ausrechnen zu können, brauchen wir jedoch noch einen Wert für $\frac{d\alpha}{dx}$. Nach Maier, Kaiser, Giordmaine /15/ kann man diesen Wert aus dem experimentell ermittelten Wirkungsquerschnitt $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ des spontanen Ramaneffektes gewinnen. Dabei erhält man zunächst aus der gewöhnlichen Streutheorie die Beziehung

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\omega_s^4}{c^4} \alpha_{01} \quad (2.2.14)$$

wobei α_{01} das Matrixelement der Polarisierbarkeit darstellt. α_{01} ist mit $\frac{d\alpha}{dx}$ durch die Beziehung

$$\alpha_{01}^2 = \left(\frac{d\alpha}{dx}\right)^2 x^2 \quad (2.2.15)$$

verknüpft.

Nimmt man nun weiterhin an, dass die Energie des harmonischen Oszillators in einer quantenmechanischen Ableitung den gleichen Wert ergibt wie in einer klassischen Ableitung, so können wir setzen:

$$x^2 = \frac{\hbar}{2m\omega_0} \quad (2.2.16)$$

und weiter

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\omega_s^4}{c^4} \alpha_{01} = \frac{\omega_s^4 \left(\frac{d\alpha}{dx}\right)^2 \hbar}{c^4 2m\omega_0} \quad (2.2.17)$$

woraus folgt:

$$\left(\frac{d\alpha}{dx}\right)^2 = \frac{2m\omega_0 c^4}{\hbar \omega_s^4} \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega} \quad (2.2.18)$$

Damit können wir nun schliesslich den Verstärkungsfaktor g (2.2.12) in der folgenden Form schreiben, wenn wir noch für $\Gamma = \Delta\omega = 2\pi c \Delta\tilde{\nu}$ die Linienbreite $\Delta\tilde{\nu}$ des spontanen Ramaneffektes einführen.

$$g = \frac{8\pi Nc}{\hbar \omega_s^3 n^2 \Delta\tilde{\nu}} \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega} \quad (2.2.19)$$

Dieser Ausdruck (2.2.19) enthält nur noch Grössen, die als bekannt vorauszusetzen sind und in der Regel aus entsprechenden Tabellenwerken entnommen werden können. (2.2.19) kann daher zur Berechnung von Zahlenwerten für g dienen.

2.3 Das Ionisationsmodell /16/

Nachdem wir nun gesehen haben, dass beim stimulierten Ramaneffekt das Antistokeslicht verstärkt werden kann, wollen wir jetzt zu der in der Einleitung gestellten Frage zurückkehren, ob es möglich ist, dass bei der Wechselwirkung des Laserlichtes mit der bestrahlten Materie Licht so hoher Quantenenergie entsteht, dass die Ionisation der Moleküle durch einfachen Photoeffekt erfolgen kann.

Es ist klar, dass die Ionisationsenergie nicht durch einen einzigen Ramanantistokesprozess erreicht werden kann, wie man sofort sieht, wenn wir unser konkretes Beispiel, den molekularen Wasserstoff, nochmals ansehen (Abb.1). Die Ionisationsgrenze liegt hier bei 15,4 eV. Der Energiezuwachs des Rubinlaserlichtes durch den Ramanantistokesprozess beträgt 0,515 eV und das Antistokeslicht erreicht somit eine Energie von immer noch erst 2,3 eV. Es besteht also nach wie vor eine erhebliche Differenz zwischen Lichtenergie und Ionisationsenergie. Selbst wenn man davon ausgeht, dass die Ionisation möglicherweise über die Zwischenstufe einer Elektronenniveauanregung erfolgt, bleibt die Differenz beachtlich, denn für die Erreichung des ersten anregbaren Elektronenniveaus $B^1\Sigma_u^+$ sind immerhin noch etwa 11 eV nötig.

Im vorigen Abschnitt (2.2) wurde nun aber gezeigt, dass das Raman-Antistokeslicht stimuliert auftreten kann, was bedeutet, dass es mit sehr hoher Intensität auftritt und dies hat wiederum zur Folge, dass das Antistokeslicht selbst einen stimulierten Ramanprozess mit Stokes- und Antistokesanteil auslösen kann. Während die Frequenz des Stokesanteils in diesem Falle identisch ist mit der Frequenz

des Laserlichtes ω_L , beträgt die Frequenz des Antistokesanteils, den wir als Antistokeslicht zweiter Ordnung bezeichnen, $\omega_L + 2 \omega_0$. Wir haben also nun bereits Licht mit einer Photonenenergie, die um den doppelten Betrag der Energie des molekularen Schwingungsüberganges gegenüber der Energie des Laserlichtes erhöht ist. Auch dieses Antistokeslicht zweiter Ordnung kann nun wieder einen stimulierten Ramanprozess auslösen und auf diese Weise Antistokeslicht dritter Ordnung mit entsprechend erhöhter Energie und Frequenz ($\omega_L + 3 \omega_0$) erzeugen. Da beim stimulierten Ramaneffekt die Konversionsrate, d.h. das Verhältnis von Streulichtintensität zu eingestrahelter Intensität sehr hoch ist (vergl. /12/), scheint es möglich, dass sich der Vorgang der Antistokeslichterzeugung bis zu sehr hohen Ordnungen fortsetzt und dabei Lichtquanten immer höherer Energie erzeugt werden. Schliesslich sollte deren Energie Werte erreichen können, die dazu ausreichen Moleküle zu ionisieren und somit die für die weitere Plasmaerzeugung notwendigen Elektronen freizusetzen. Abb.4 soll diesen Vorgang der Antistokeslichterzeugung

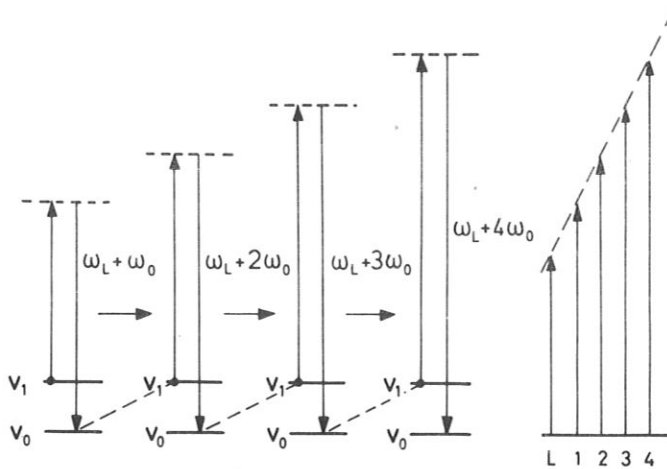


Abb.4 Erzeugung von Raman-Antistokeslicht höherer Ordnung
 v_0, v_1 bedeuten Schwingungsgrundniveau und erstes angeregtes Schwingungsniveau der Moleküle

höherer Ordnung veranschaulichen. Es sind dabei nur die beiden am Ramanübergang beteiligten Schwingungsniveaus v_0 und v_1 gezeichnet, die den beiden Niveaus $v = 0$ und $v = 1$ des $X^1\Sigma_g^+$ - Zustandes der Abb.1 entsprechen. In vier aufeinanderfolgenden Schritten ist dargestellt, wie das Antistokeslicht höherer Ordnung dadurch entsteht, dass das Antistokeslicht der jeweils vorherigen Stufe einen Übergang vom höheren Schwingungsniveau v_1 in das Grundniveau

v_0 anregt. In der rechten Hälfte der Figur sind die entsprechenden Lichtquanten durch Pfeile dargestellt. Die Pfeillänge entspricht der Quantenenergie.

Natürlich werden, wie bereits erwähnt, bei diesen Ramanprozessen auch immer die jeweiligen Stokeskomponenten erzeugt und verstärkt. Da jedoch diese Komponenten nicht unmittelbar zur Erzeugung von

Licht erhöhter Quantenenergie führen, haben wir sie in dieser Betrachtung ausser Acht gelassen.

Im Falle festen Wasserstoffes beträgt die Wellenzahldifferenz für den Ramanübergang zwischen dem Schwingungsgrundniveau und dem ersten angeregten Niveau 4152 cm^{-1} /17/. (Wir verwenden hier die in der spektroskopischen Literatur übliche Wellenzahl $\tilde{\nu}$ die mit der Kreisfrequenz ω durch die Beziehung $\omega = 2\pi c \tilde{\nu}$ verknüpft ist mit $c =$ Lichtgeschwindigkeit) Diese Wellenzahl von 4152 cm^{-1} entspricht einer Energie von $0,515 \text{ eV}$, um die also die Energie des Lichtes bei jedem Schritt erhöht wird.

In der folgenden Tabelle sind die Wellenzahlen, Wellenlängen und Photonenenergien für das Antistokeslicht von Wasserstoff bis zur 15ten Ordnung zusammengestellt. Als Lichtquelle wurde ein Rubinlaser angenommen.

	cm^{-1}	$\lambda \text{ \AA}$	E eV
Stokeslicht	10250	9753	1,27
Laserlicht	14404	6943	1,79
Antistokeslicht 1. Ordnung	18556	5390	2,30
Antistokeslicht 2. Ordnung	22708	4405	2,81
Antistokeslicht 3. Ordnung	26860	3724	3,33
Antistokeslicht 4. Ordnung	31012	3225	3,84
Antistokeslicht 5. Ordnung	35164	2845	4,36
Antistokeslicht 6. Ordnung	39316	2544	4,87
Antistokeslicht 7. Ordnung	43468	2301	5,39
Antistokeslicht 8. Ordnung	47620	2100	5,90
Antistokeslicht 9. Ordnung	51772	1932	6,42
Antistokeslicht 10. Ordnung	55924	1789	6,93
Antistokeslicht 11. Ordnung	60076	1665	7,45
Antistokeslicht 12. Ordnung	64228	1557	7,96
Antistokeslicht 13. Ordnung	68380	1462	8,48
Antistokeslicht 14. Ordnung	72532	1379	8,99
Antistokeslicht 15. Ordnung	76684	1304	9,51
Antistokeslicht 16. Ordnung	80836	1237	10,02

3. ÜBERLEGUNGEN ZUR MOLEKÜLDISSOZIATION

An die Erscheinung, dass bei der Wechselwirkung von intensivem Laserlicht mit molekularen Substanzen stimuliertes Raman-Antistokeslicht sehr hoher Intensität entsteht, haben wir im vorigen Kapitel die Vorstellung geknüpft, dass bei dieser Wechselwirkung auch Ramanantistokeslicht höherer Ordnung erzeugt wird, dessen Energie dazu ausreicht, Moleküle zu ionisieren.

Im vorliegenden Abschnitt wollen wir nun kurz auf die Möglichkeit der Dissoziation der bestrahlten Moleküle eingehen. Hierbei wollen wir uns von vornherein auf die Erörterung der Verhältnisse beim Wasserstoff beschränken, obwohl die Überlegungen im wesentlichen auch für andere zweiatomige homonukleare Moleküle zutreffen. Wenn wir uns jetzt also die Frage stellen, ob die Moleküle durch die Wechselwirkung mit dem Laserlicht auch dissoziiert werden können, stellen wir zunächst fest, dass eine einfache Photodissoziation ohne zusätzliche Effekte aus ähnlichen Gründen ausscheidet wie die Photoionisation, da die Dissoziationsenergie des Wasserstoffs mit 4,76 eV ebenfalls noch weit über der Energie des Rubinlaserquants liegt. Es wäre aber aufgrund der Überlegungen des vorigen Abschnittes 2.3 denkbar, dass die Dissoziation durch energiereichere Lichtquanten bewirkt wird, die durch den dort beschriebenen Mechanismus erzeugt wurden. Wegen der im Vergleich zur Ionisation viel niedrigeren Energie, die für die Spaltung der Moleküle notwendig ist, würde man vermuten, dass eine Dissoziation mit grösserer Wahrscheinlichkeit auftreten müsste als die Ionisation und es wäre in diesem Falle damit zu rechnen, dass durch den Dissoziationsprozess so viele Antistokesquanten entsprechend hoher Ordnung absorbiert würden, dass eine Fortsetzung der stimulierten Antistokeslichterzeugung zu höheren Ordnungen hin nicht mehr möglich wäre. Entsprechende quantenmechanische Berechnungen der Übergangswahrscheinlichkeiten (siehe Anhang II) ergeben jedoch, dass eine solche Photodissoziation beim Wasserstoff gar nicht möglich ist. Wegen des verschwindenden elektrischen Dipolmomentes derartiger Moleküle verschwinden nämlich auch sämtliche Übergangswahrscheinlichkeiten für Schwingungsdipolübergänge, d.h., dass insbesondere durch Absorption von Strahlung auch keine direkten Übergänge vom Schwingungsgrundzustand in den dissoziierten Zustand erfolgen können. Für Ramanübergänge, für die in die Übergangswahrscheinlichkeiten

nicht das permanente Dipolmoment sondern die Änderung der Polarisierbarkeit in Abhängigkeit von der Schwingungsauslenkung eingeht, erhält man das Ergebnis, dass Übergänge nur zwischen benachbarten Schwingungsniveaus ($\Delta v = \pm 1$) möglich sind. Dies bedeutet aber, dass die Wasserstoffmoleküle, die sich bei niedrigen Temperaturen praktisch alle im Schwingungsgrundzustand befinden, auch nicht durch einen Ramanübergang dissoziiert werden können.

Die Erkenntnis, dass durch den Ramaneffekt Übergänge zwischen benachbarten Schwingungsniveaus möglich sind und die Tatsache, dass auch das Ramanstokeslicht stimuliert, d.h. mit sehr grosser Intensität auftritt, lässt noch einen anderen Weg zur Moleküldissoziation gangbar erscheinen: Wegen der sehr hohen Intensität mit der das stimulierte Ramanstokeslicht auftritt ist zu erwarten, dass das erste anregbare Schwingungsniveau v_1 (vergl. Abb.5) sehr stark besetzt wird. Dauert nun während der Zeit in der

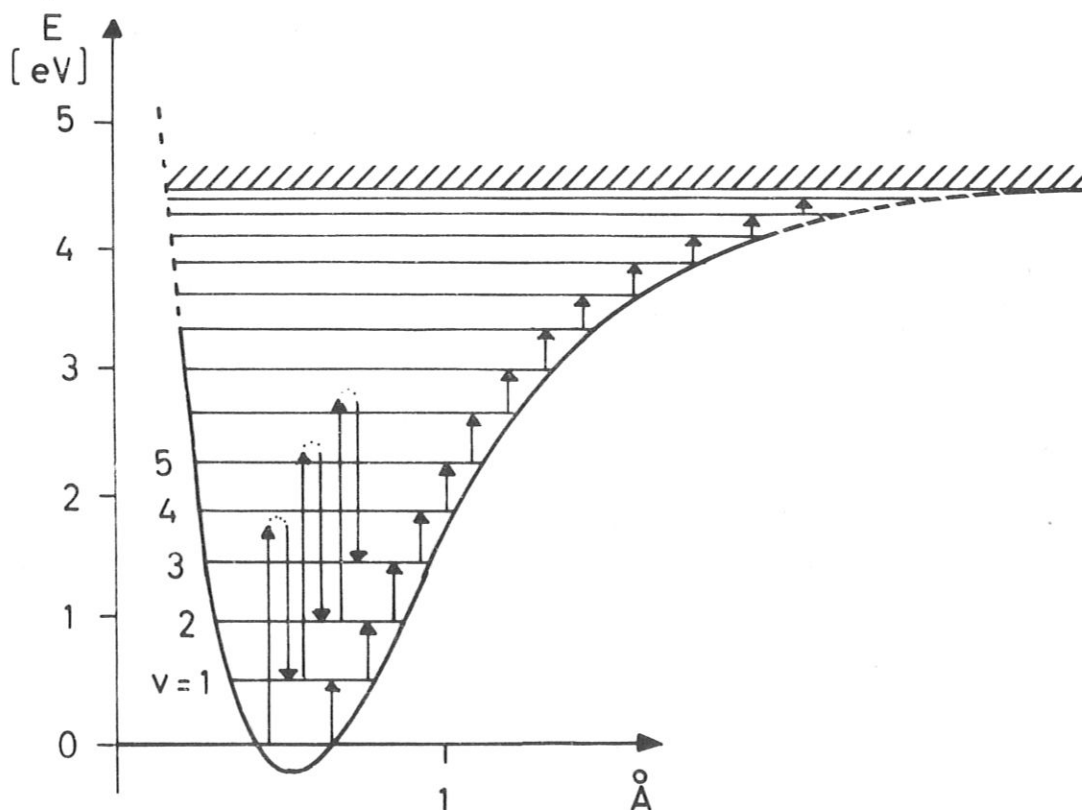


Abb.5 Potentialkurve des Wasserstoffgrundzustandes. Die Pfeile sollen die im Text besprochenen Ramanstokesübergänge andeuten

das obere Niveau v_1 schon stark bevölkert ist, die Lasereinstrahlung an, so können, in Einklang mit den quantenmechanischen Auswahlregeln, Übergänge aus diesem ersten angeregten Schwingungsniveau v_1 in das nächsthöhere Niveau v_2 erfolgen und dort eben-

falls eine starke Besetzung hervorrufen. Von hier aus könnte dann in einem weiteren Ramanstokesprozess ein Übergang ins Niveau V_3 erfolgen und von hier weiter nach V_4 , bis durch Fortsetzung dieser stufenweisen Anregung der Molekülschwingungsniveaus schliesslich die Dissoziationsgrenze erreicht wäre. Da die charakteristische Zeit für einen Ramanübergang in der Grössenordnung von 10^{-12} sec liegt, während die Impulsdauer der in den Experimenten verwendeten Riesenimpulslaser üblicherweise etwa 10^{-9} - 10^{-8} sec beträgt, würde also auch genügend Zeit für die stufenweise Anregung der höheren Schwingungsniveaus nach dem eben geschilderten Modell zur Verfügung stehen. Experimentell müsste ein solcher Vorgang spektroskopisch feststellbar sein, da wegen der Anharmonizität des Wasserstoffpotentials die Schwingungsenergieniveaus nicht äquidistant sind, sondern diese Abstände nach oben hin abnehmen (vergl. Abb.5). Die Verschiebung entsprechender Ramanlinien müsste daher ebenfalls abnehmen und die Linien der einzelnen Übergänge müssten somit getrennt beobachtbar sein. In Abschnitt 4.2 dieser Arbeit werden wir darauf zurückkommen.

4. EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNGEN

Im Kapitel 2 dieser Arbeit haben wir eine Modellvorstellung entwickelt, die es uns gestatten würde, die Freisetzung der ersten freien Elektronen eines lasererzeugten Wasserstoffplasmas durch Ramanantistokeslicht hoher Ordnung mit Hilfe des Photoeffektes zu erklären. Ausserdem haben wir in Kapitel 3 die sich aus diesen Vorstellungen ergebenden Möglichkeiten der Moleküldissoziation kurz diskutiert.

Wir wollen nun im vorliegenden Kapitel dazu übergehen, zwei Fragen, die für die Stichhaltigkeit der Überlegungen des theoretischen Teils von entscheidender Bedeutung sind, experimentell zu prüfen. Die Frage, die wir uns zuerst stellen, lautet: Tritt das Ramanantistokeslicht wirklich während der Wechselwirkung des Laserlichtes mit dem Wasserstoff auf und ist es möglich, höhere Ordnungen von Antistokeslicht nachzuweisen? Die zweite Frage richtet sich nach

der zeitlichen Entwicklung und lautet: In welcher Phase der Wechselwirkung kann gegebenenfalls das Ramanlicht beobachtet werden, d.h. tritt der stimulierte Ramaneffekt zu einem genügend frühen Zeitpunkt auf, dass ihm eine entscheidende Rolle bei der Freisetzung der ersten Elektronen überhaupt zukommen kann?

4.1 Der Versuchsaufbau

Um diese Fragen in engem Zusammenhang mit der Plasmaerzeugung durch Laser klären zu können, wurde eine Versuchsanordnung gewählt, wie sie auch für andere Experimente zur Plasmaerzeugung durch Laser verwendet wird. Es wird dabei fester Wasserstoff mit dem fokussierten Licht eines Rubinlasers hoher Leistung bestrahlt. In unserem Experiment wird dann das bei der Wechselwirkung vom Wasserstoffscheibchen ausgesandte Licht spektroskopisch und zeitaufgelöst untersucht.

4.1.1 Die Herstellung fester Wasserstofftargets

Da Wasserstoff bei Raumtemperatur gasförmig ist und sein Tripelpunkt sehr tief, bei $13,95^{\circ}\text{K}$, liegt, ist für die Überführung des Wasserstoffs in den festen Zustand eine starke Abkühlung erforderlich. Für die Herstellung der festen Wasserstoffscheibchen wurde eine bereits für frühere Untersuchungen /18/ an lasererzeugten Plasmen entwickelte Kryoapparatur verwendet, die im Folgenden anhand von Abb.6 kurz beschrieben werden soll. Mit Hilfe eines Kühlfingers, der durch strömendes flüssiges Helium (Siedetemperatur $4,2^{\circ}\text{K}$) nach dem Verdampferprinzip /19/ gekühlt wird, gelingt es, freitragende feste Wasserstoffscheibchen herzustellen. Der Kühlfinger besteht aus einem 1 mm starken Kupferblech, das mit einer geschlitzten Bohrung von 2 mm Durchmesser versehen ist. Das Kupferblech setzt sich nach oben in einen Kupferblock fort, der über eine aufgelötete Kühlschlange, in der das flüssige Helium strömt, gekühlt wird. Die Temperatur des Kupferblocks und damit des Kühlfingers kann mit Hilfe eines Dampfdruckthermometers kontrolliert werden. Der Kühlfinger befindet sich im Zentrum eines zylindrischen Vakuumsessels von 20 cm Durchmesser, der auf etwa $5 \cdot 10^{-6}$ Torr ausgepumpt wird. Ein kleines Volumen um den Kühlfinger herum kann durch eine Glasglocke gasdicht vom übrigen Kesselraum abgetrennt werden. Füllt man nun den Raum zwischen Glasglocke und Kühlfinger

Kühlfinger zur Erzeugung
von H₂-Folien.

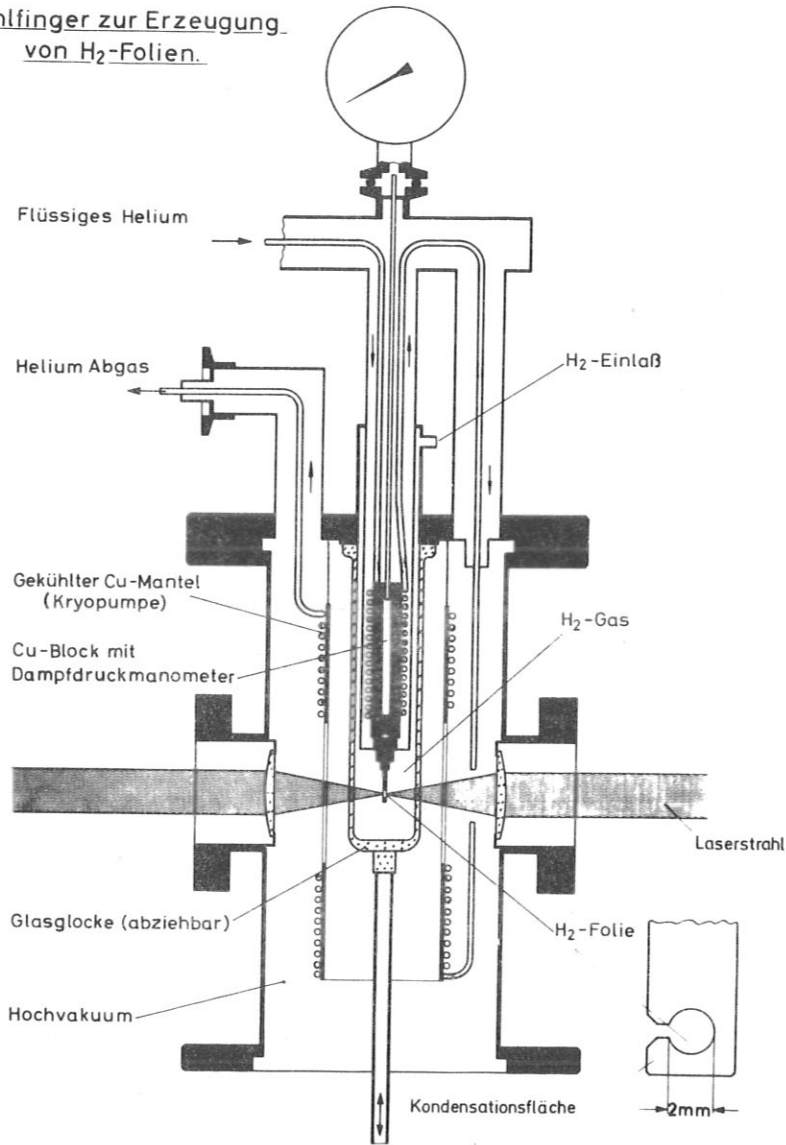


Abb.6 Kryoapparatur zur Erzeugung der festen Wasserstoffscheibchen

mit gasförmigem Wasserstoff, so kondensiert dieser Wasserstoff nach kurzer Zeit am Kühlfinger und überzieht dessen Oberfläche einschliesslich der Bohrung mit einem Film aus flüssigem Wasserstoff. Durch vorsichtige Regulierung des Heliumstromes kann man die Temperatur langsam weiter absenken, sodass man schliesslich eine schlierenfreie Verfestigung des Wasserstoffs erreicht. Die eingelassene Gasmenge muss so bemessen sein, dass sich der Finger beim Abkühlen, möglichst ohne zu tropfen, mit dem Flüssigkeitsfilm überzieht. Da der Dampfdruck des festen Wasserstoffs bei der Temperatur des sie-

denden Heliums nur noch $3,3 \cdot 10^{-7}$ Torr beträgt, kann man jetzt die Glasglocke nach unten wegziehen ohne befürchten zu müssen, dass sich das Scheibchen in kurzer Zeit durch Sublimation auflöst. Man verfügt somit über ein in der Bohrung des Kühlfingers freitragendes festes Wasserstoffscheibchen von etwa 1 - 2 mm Dicke, das in diesem Zustand mehrere Minuten haltbar ist. Dieses Scheibchen kann nun für die beabsichtigten Experimente mit dem Laser bestrahlt werden.

4.1.2 Der Laser und die Plasmaerzeugungsapparatur

Für die Versuche wurde die folgende in Abb.7 dargestellte Anordnung verwendet. Als Lichtquelle diente ein zweistufiger Rubinlaser (Korad K 1500), der Riesenlichtimpulse bei einer Wellenlänge von 6943 \AA emittiert. Die Oszillatorstufe besteht aus einem Resonator, der im

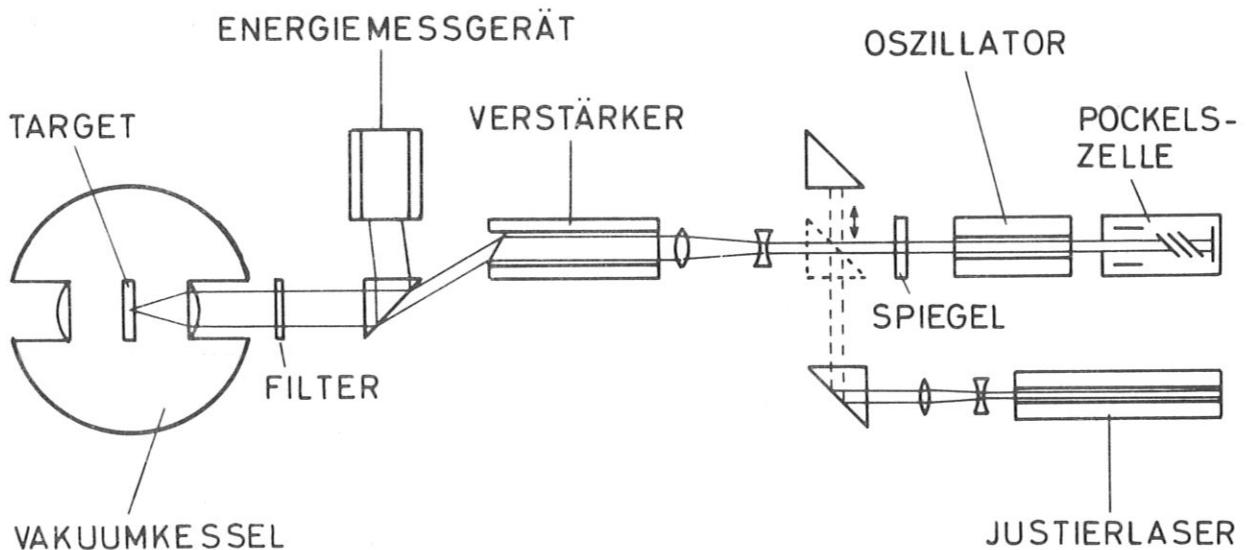


Abb.7 Schematischer Aufbau der Plasmaerzeugungsapparatur

wesentlichen einen Rubinlaserstab und die für die Güteschaltung notwendige Pockelszelle enthält. Nach dem Verlassen der Oszillatorstufe wird der Strahl durch ein teleskopisches System auf den Durchmesser des Verstärkerstabes aufgeweitet. Nach Durchgang durch den Verstärkerstab verlässt der Strahl den Rubin unter dem Brewsterwinkel, d.h. unter einem Winkel von ca. 30° zur Laserachse. Um wieder einen kreisförmigen Strahlquerschnitt zu bekommen, ist ein gleichschenkelig rechtwinkeliges Glasprisma so in den Strahlengang gestellt, dass der horizontal polarisierte Laserstrahl nahezu unter

dem Brewsterwinkel in die Basis des Prismas eintritt und das Prisma parallel zur ursprünglichen Achsenrichtung verlässt. Beim Übergang des Strahles vom Glas zur Luft werden an der Grenzfläche 4 % des Lichtes reflektiert und treten aus dem Prisma nach Totalreflexion an der Prismenbasis unter einem Winkel von etwa 90° zur Richtung des Hauptstrahles aus. Dieser Teilstrahl wird dazu benutzt, bei jedem Schuss die Energie des Lasers mit Hilfe einer geeichten Halbleiterphotodiode (hp - 4220) zu messen.

Der Hauptteil des Laserstrahles, dessen Durchmesser etwa 20 mm beträgt, wird nachdem er das Prisma verlassen hat, durch eine Kombination zweier hintereinandergesetzter Filter (3 mm Schott KG 3 + 3 mm Schott RG 695) von störenden Lichtkomponenten befreit, die, wie einige Leerversuche ergaben, offenbar aus dem Blitzlampenlicht des Laserverstärkers stammen. Die Intensität des Laserlichtes selbst wird durch diese Massnahme auf 20 % ihres ursprünglichen Wertes herabgemindert, was aber für die hier zu beschreibenden Experimente praktisch ohne Bedeutung ist. Nach dieser Filterung wird das Laserlicht schliesslich durch eine einfache plankonvexe Glaslinse von 5 cm Brennweite, die sich in einer seitlichen Öffnung des oben bereits erwähnten Vakuumkessels befindet, in die Mitte des Wasserstoffscheibchens fokussiert. Damit eine genaue Einstellung des Strahlbrennpunktes auf die Scheibchenmitte durchgeführt werden kann, ist eine Justiervorrichtung vorhanden, mit deren Hilfe es möglich ist, den Kühlfinger in kleinen Grenzen seitlich und in der Höhe zu verstellen. Um auch die Lage des Brennpunktes verschieben zu können, ist die Fokussierungslinse in Achsenrichtung verschiebbar montiert.

Die Justierung des Rubin-Impulslaserstrahles erfolgt durch einen He-Ne-Dauerstrichlaser, mit dem der Strahl des Rubinlasers simuliert wird. Zu diesem Zweck wird der Gaslaserstrahl zunächst auf den Durchmesser des Rubinoszillators aufgeweitet und mit Hilfe eines totalreflektierenden Prismas zwischen Laseroszillator und Verstärker eingespiegelt. Vor dem Laserschuss muss dieses Prisma zur Seite geschoben werden.

Der Rubinlaser emittiert einen einzelnen Riesenimpuls mit einer Energie von etwa 5 J und einer Dauer von 18 nsec (Halbwertsdauer). Aus der Winkeldivergenz des Lasers (1,4 mrad) kann ohne Berück-

sichtigung von Linsenfehlern der Brennfleckdurchmesser zu 0,14 mm errechnet werden. Daraus ergibt sich die maximal erreichte Flächenleistungsdichte zu etwa 10^{12} W/cm² (ohne Berücksichtigung der Filterverluste).

4.2 Spektroskopische Messungen

Wir haben nun eine Apparatur zur Verfügung, mit der wir Lichtintensitäten von der gleichen Größenordnung erzeugen können, wie sie bei Plasmaerzeugungsexperimenten üblicherweise verwendet werden, und können uns jetzt der Aufgabe zuwenden, das bei der Wechselwirkung zwischen Laser und Wasserstoff gestreute Licht zu analysieren und das erwartete Antistokes-Ramanlicht bis zu möglichst hohen Ordnungen hin nachzuweisen. In Abschnitt 2.2 hatten wir gesehen, dass für die Verstärkung von Ramanantistokeslicht zwischen den Wellenvektoren des Pumplichtes (k_L), des Stokes- (k_S) und des Antistokeslichtes (k_A) die Beziehung $2 k_L = k_S + k_A$ erfüllt sein muss. Für den von uns untersuchten Wasserstoff, bei dem sich der Brechungsindex über einen weiten Wellenlängenbereich im Sichtbaren und im UV nur sehr schwach ändert, bedeutet das in guter Näherung, dass das Antistokeslicht in Vorwärtsrichtung gestreut wird.

Für den Nachweis des Antistokeslichtes wurde deshalb, wie in Abb.8 dargestellt, das bei der Wechselwirkung in Vorwärtsrichtung gestreute Licht auf den Spalt eines Spektrographen fokussiert. Dies geschah

QUARZ SPEKTROGRAPH

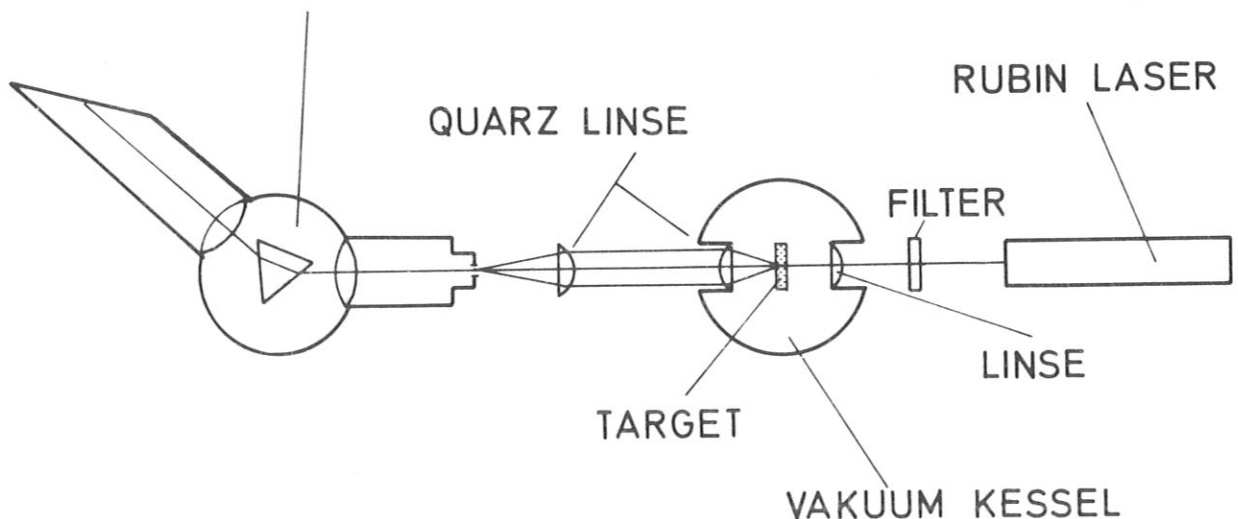


Abb.8 Experimenteller Aufbau zur Aufnahme der Spektren

mit Hilfe einer einfachen plankonvexen Quarzlinse von 5 cm Brennweite, die sich, in Strahlrichtung verschiebbar, in einer der Fokussierungslinse gegenüberliegenden Öffnung des Vakuumkessels befindet. Für die Untersuchungen wurden zwei verschiedene Spektrographen verwendet mit denen es möglich war, unterschiedliche Spektralbereiche zu erfassen. Zunächst wurde ein Dreiprismen-Glasspektrograph nach Foersterling der Optischen Werke Jena benutzt, mit dem es möglich war, im Wellenlängengebiet zwischen 3600 und 10000 Å zu arbeiten. Die Brennweite des Kollimators beträgt bei diesem Gerät 30 cm, während die der Kameralinse 27 cm beträgt. Das Öffnungsverhältnis beträgt 1 : 5,5. Die Prismen lassen sich durch einfache Bedienung von aussen so verdrehen, dass man im Bereich zwischen 3800 und 8000 Å wahlweise jede beliebige Wellenlänge in die Mitte des Kamerabildes bringen kann. Kollimatorauszug, Kameraauszug und Kameraneigung müssen entsprechend mitverstellt werden. Wir wählten für unsere Versuche eine Wellenlänge von 5876 Å, für die vom Hersteller des Gerätes feste Justierdaten angegeben waren, als Mittenwellenlänge und konnten auf diese Weise mit einer einzigen Aufnahme den Bereich zwischen 10000 Å und etwa 3900 Å photographieren. Die Lineardispersion des Spektrographen ändert sich für diese Einstellung kontinuierlich von etwa 30 Å/mm im Bereich von 5000 Å auf 350 Å/mm im Bereich von 10000 Å. Um auch die im Infraroten liegende erste Stokeslinie (9753 Å) sichtbar machen zu können, wurden für diese Aufnahmen die im IR empfindliche Kodak IZ-Platte verwendet, die, um die Empfindlichkeit im IR noch zu steigern, vor der Belichtung in einem 0,5 prozentigen Ammoniakbad bei einer Temperatur von etwa 5 °C hypersensibilisiert wurden. Da es mit diesem Spektrographen auf Anhieb gelang Antistokeslinien bis zur dritten Ordnung nachzuweisen (womit man schon an die Grenze des für diesen Glasprismenspektrographen zugänglichen Spektralbereiches stösst) wurde für weitere Experimente dieser Glasspektrograph durch den Quarzprismenspektrographen Q 24 ersetzt, der ebenfalls von den Optischen Werken Jena hergestellt wird. Dieser Spektrograph enthält ein fest justiertes Quarzprisma und ermöglicht Aufnahmen im Bereich zwischen 5800 und 2000 Å. Sein Öffnungsverhältnis ist mit 1 : 11 angegeben, während seine lineare Dispersion sich kontinuierlich von 85 Å/mm am langwelligen Ende seines Spektralbereiches auf 3,9 Å/mm am kurzwelligen Ende ändert. Als Orientierungshilfe enthält dieser Spektrograph eine Wellenlängenskala, die man zusammen mit den Spektren auf die Photoplatten photographieren kann. Die Genauigkeit dieser

Skala wird vom Hersteller am langwelligen Ende mit $\pm \leq 5 \text{ \AA}$ angegeben und verbessert sich kontinuierlich bis zum kurzwelligen Ende auf $\pm \leq 0,5 \text{ \AA}$. Diese Genauigkeit ist für unsere Zwecke völlig ausreichend, da es uns hier zunächst nur darum geht, die beobachteten Linien aufgrund ihrer Übereinstimmung mit den vorausgerechneten Wellenlängen der Tabelle auf Seite 13 als Raman-Antistokeslinien zu identifizieren. Natürlich wurde die richtige Lage der Skala vor Beginn der Messungen mit Hilfe einiger bekannter Linien aus dem Quecksilberdampfspektrum überprüft. Für die Photographie der Spektren wurden ORWO-WPl Platten verwendet, deren grösste Empfindlichkeit zwar im sichtbaren Spektralbereich liegt, die aber auch im UV noch über eine gute Empfindlichkeit verfügen. Eine Grenze für die Empfindlichkeit dieser Platten im kurzwelligen Spektralgebiet ist, wie bei allen normalen Photoplatten, durch die Absorption kurzwelligen Lichtes in der Gelatineschicht der Platten gesetzt, die etwa bei 2500 \AA einsetzt /20/ und nach kurzen Wellenlängen hin immer stärker wird. Abb.9 zeigt ein Bild, bei dem das mit dem Drei-Prismen-Glasspektrographen erhaltene Spektrum und das mit dem Quarzspektrographen erhaltene Spektrum aneinandergesetzt sind. Für den mit dem Glasspektrographen erzeugten Teil des Spektrums wurde ein einzelner Laserschuss für die Belichtung der Photoplatten benötigt, während für die Aufnahmen mit dem Quarzspektrographen, teils wegen des schlechteren Öffnungsverhältnisses, teils wegen der abnehmenden Filmempfindlichkeit in diesem Spektralbereich, fünf Schüsse für die Belichtung einer Platte gemacht wurden.

Das Spektrum zeigt nun neben der Linie des Laserlichtes bei 6943 \AA die Stokeslinie erster Ordnung bei 9753 \AA sowie eine Serie von Antistokeslinien bis hinauf zur siebten Ordnung. Die Wellenlängen der Linien entsprechen im Rahmen der Messgenauigkeit genau den Werten, die wir früher bereits rechnerisch ermittelt hatten (Abschnitt 2.3, Tabelle Seite 13). Offensichtlich findet also tatsächlich eine Erzeugung von Antistokeslicht höherer Ordnung nach dem in Abschnitt 2.3 beschriebenen Mechanismus statt. Die Energie der kürzesten beobachteten Wellenlänge von 2300 \AA entspricht $5,4 \text{ eV}$ und reicht zur Photoionisation des Wasserstoffmoleküls natürlich noch nicht aus. Linien noch höherer Ordnung konnten beim Wasserstoff jedoch nicht mehr beobachtet werden, da die zur Verfügung stehenden Nachweisapparaturen ein Vordringen zu kürzeren Wellenlängen nicht erlaubten. Es soll deshalb an dieser Stelle ausdrück-

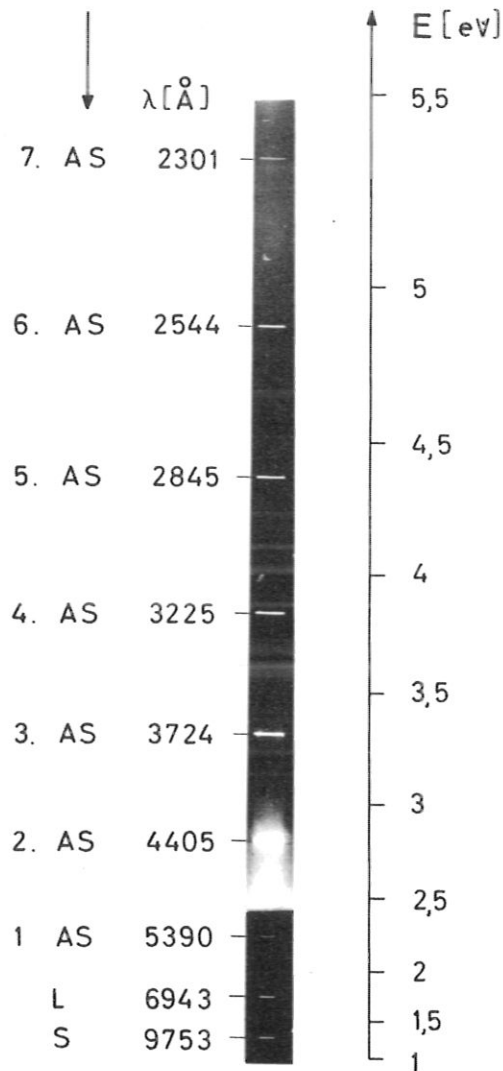


Abb.9 Spektrum des stimulierten Ramaneffektes von festem Wasserstoff bei Bestrahlung mit Rubinlaserlicht

lich betont werden, dass die gegenwärtige Begrenzung der Beobachtbarkeit zumindest nicht primär durch das Aufhören des Effektes, sondern durch die Beschränktheit der experimentellen Nachweismöglichkeiten bedingt ist. Es ist vielmehr zu vermuten, dass sich die Antistokeslichterzeugung auch jenseits des unserer Beobachtung zugänglichen Spektralbereiches fortsetzt. Für diese Vermutung spricht vor allem das Ergebnis ganz ähnlicher Experimente, die mit festem Deuterium und Stickstofftargets ebenfalls im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden. Bei diesen beiden Substanzen ist der Abstand der beiden untersten Schwingungsniveaus, die für den stimulierten Ramaneffekt massgeblich sind, kleiner als beim gewöhnlichen Wasserstoff ($0,36 \text{ eV} \hat{=} 2990 \text{ cm}^{-1}$ für D_2 und $0,29 \text{ eV} \hat{=} 2330 \text{ cm}^{-1}$ für N_2)

und daher liegen die entsprechenden Ramanantistokeslinien enger als beim Wasserstoff. Auf diese Weise war es möglich, innerhalb des uns zugänglichen Spektralbereiches entsprechend mehr Linien nachzuweisen. So zeigt Abb.10, dass man beim Deuterium Antistokeslinien bis

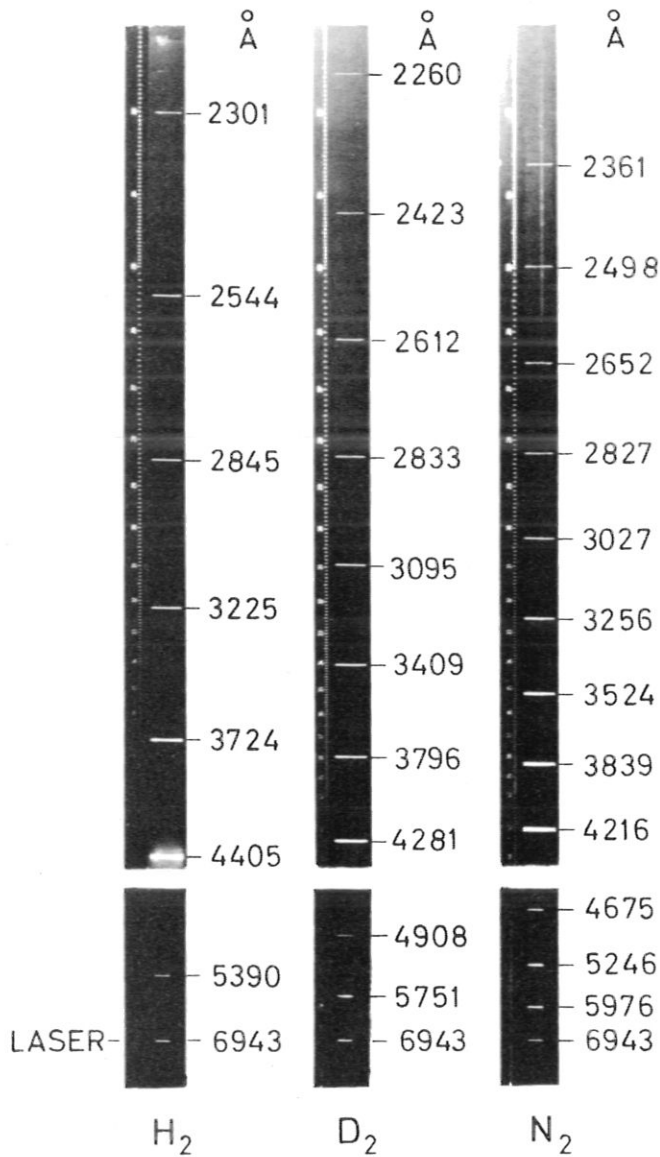


Abb.10 Stimulierte Raman-Antistokeslinien von festem Wasserstoff (H₂), Deuterium (D₂) und Stickstoff (N₂). Eingestrahelte Wellenlänge 6943 Å (Rubinlaser) +)

zur zehnten Ordnung (2257 Å) und beim Stickstoff sogar bis zur zwölften Ordnung (2360 Å) nachweisen kann. Interessanterweise liegt nun auch in diesen beiden Fällen wie beim Wasserstoff die kurzwellige Grenze der Nachweisbarkeit bei etwa 2200 Å und es ist somit klar,

+) Um einen für die Reproduktion ausreichenden Kontrast zu erreichen, mussten einige Linien im kurzwelligen Bereich der Abb.10 nachgezogen werden.

dass diese Begrenzung apparativ bedingt ist und nicht durch ein Aufhören des Effektes, zumal in allen drei Fällen verschieden hohe Ordnungen erreicht wurden.

Eine Ausdehnung der Messungen auf den Bereich wesentlich kürzerer Wellenlängen würde einen erheblichen experimentellen Mehraufwand erfordern und wurde daher im Rahmen dieser Arbeit nicht mehr angestrebt. In der gegenwärtigen Versuchsanordnung ist die Grenze bei 2200 \AA durch die Absorption des kurzwelligen Lichtes in der Gelatineschicht der Photoplatten gegeben, die schon bei etwa 2500 \AA /20/ einsetzt und nach kurzen Wellen hin immer stärker wird. Man könnte versuchen, diese Grenze durch Verwendung gelatinearmer Photoplatten, sogenannter Schumannplatten, weiter in den kurzwelligen Bereich zu verschieben; jedoch bereits bei 2000 \AA ist man am Ende des für den Quarzspektrographen zugänglichen Bereiches angelangt. Nach noch kürzeren Wellenlängen hin treten dann die bekannten Schwierigkeiten auf, dass für die Fokussierung des Streulichtes keine Quarzlinzen mehr verwendet werden können, sondern man muss andere geeignete Materialien verwenden, wie z.B. Lithiumfluorid (LiF). Der Prismenspektrograph müsste durch einen Reflexionsgitterspektrographen ersetzt werden und schliesslich müsste der gesamte Lichtweg zwischen Wasserstoffscheibchen und Photoplatte im Vakuum verlaufen, da im Spektralgebiet unterhalb etwa 1950 \AA bereits die Luft anfängt das Licht zu absorbieren /vergl. 20/. Um all diesen Schwierigkeiten in angemessener Weise begegnen zu können, würde in wesentlichen Teilen ein völlig neuer Versuchsaufbau erforderlich sein. Deshalb wurde vorläufig im Rahmen dieser Arbeit darauf verzichtet, nach Antistokeslinien noch höherer Ordnung zu suchen, zumal hiervon keine prinzipiell neuen Erkenntnisse zu erwarten sind.

Als Resultat unserer Messungen können wir schliesslich festhalten, dass es gelang Antistokeslinien höherer Ordnung bis an die oberste Grenze des uns zugänglichen Spektralbereiches nachzuweisen und dass die bisherigen Ergebnisse erwarten lassen, dass die Produktion von Antistokeslinien auch noch zu höheren Ordnungen fortgesetzt wird. Mit der Energie des kürzestwelligen bisher nachgewiesenen Raman-Antistokeslichtes des Wasserstoffs ist etwas mehr als ein Drittel des Weges vom Grundzustand zur Ionisationsgrenze und nicht ganz die Hälfte bis ins $B^1\Sigma^+$ Niveau zurückgelegt. Abb.11 zeigt einen Vergleich der Energien der bisher beobachteten Raman-Antisto-

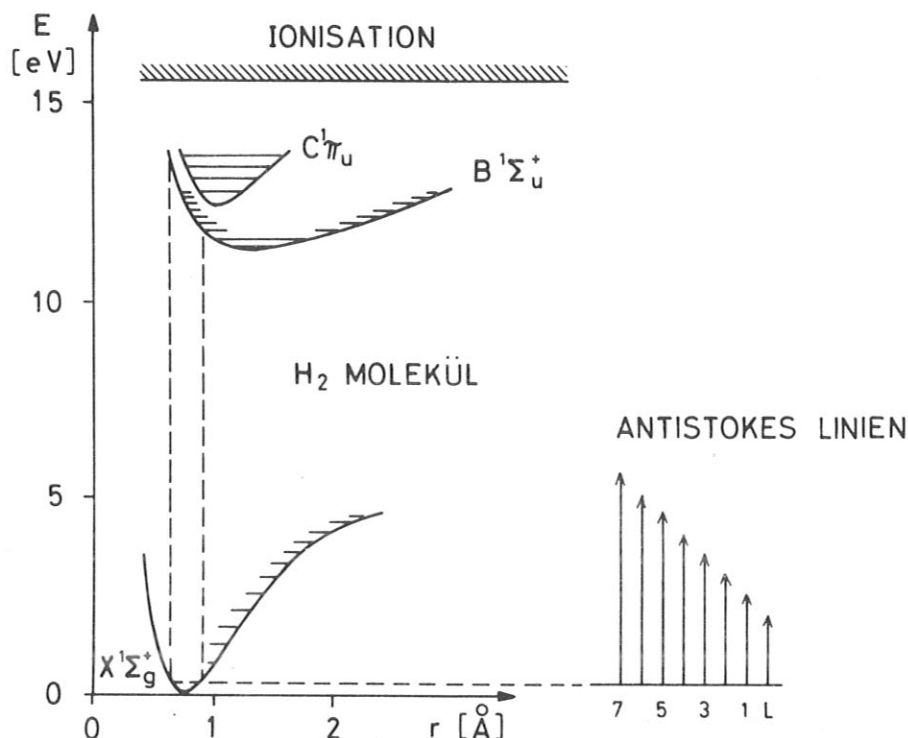


Abb.11 Vergleich der Energie des Laserlichtes (L) und der Energie des experimentell nachgewiesenen Raman-Antistokeslichtes mit der Anregungs- und Ionisierungsenergie des Wasserstoffs

keslinien (senkrechte Pfeile) mit der Ionisierungsenergie bzw. der für das Erreichen eines höheren Elektronenniveaus benötigten Energie beim Wasserstoff. Die senkrechten gestrichelten Linien deuten den Bereich an innerhalb dessen nach dem Franck-Condon-Prinzip Übergänge vom Grundniveau in das erste angeregte Elektronenniveau möglich sind.

Wir wollen nun noch auf das in Kapitel 3 erörterte Problem der Moleküldissoziation durch stufenweise Anregung von Schwingungszuständen zurückkommen. Aufgrund der im vorliegenden Kapitel gewonnenen experimentellen Ergebnisse können wir dazu jetzt eine eindeutige Aussage machen.

Wie wir schon in Kapitel 3 festgestellt hatten, nehmen die gegenseitigen Abstände der einzelnen Schwingungsniveaus nach oben hin ab (vergl. Abb.5). Das heisst aber, dass wegen der damit verbundenen Verringerung der Energiedifferenz zwischen je zwei benachbarten Niveaus auch die Verschiebung der entsprechenden Ramanlinien gegenüber der Laserlinie kleiner werden müsste. Für das experimentell

zu beobachtende Spektrum bedeutet das, es müssten neben der Stokeslinie, die dem Übergang vom Grundzustand V_0 zum ersten angeregten Niveau V_1 entspricht, noch eine Reihe weiterer etwas kürzerwelliger Linien zu beobachten sein, die den Übergängen zwischen höheren Niveaus ($V_1 \rightarrow V_2$, $V_2 \rightarrow V_3$, usw.) entsprechen. Da die zu erwartenden Linienabstände in der Größenordnung von 200 \AA liegen, müsste ein entsprechendes Liniensystem die ($V_1 \rightarrow V_0$) Antistokeslinie begleiten. Dies wird aber, wie auf Abb.9 schon zu erkennen ist, nicht beobachtet. Um das noch deutlicher zu machen, wurde in Abb.12 der Teil des experimentell erhaltenen Ramanspektrums, der zwischen der

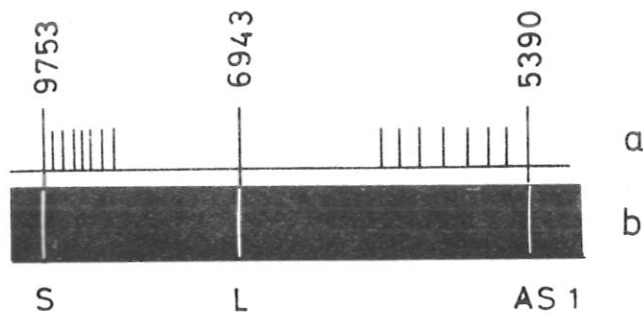


Abb.12 Theoretisch nach Kapitel 3 zu erwartendes Spektrum (a) und experimentell tatsächlich beobachtetes Ramanspektrum des Wasserstoffs im Bereich zwischen 1. Stokes- und 1. Antistokeslinie (b)

Stokeslinie und der ersten Antistokeslinie liegt, vergrößert wiedergegeben. Darüber ist unter Berücksichtigung der Dispersionskurve des Spektrographen die Lage der Linien eingezeichnet, die aufgrund der in Kapitel 3 entwickelten Vorstellungen zu erwarten wären.

Abb.12 zeigt jedoch deutlich, dass diese Linien im experimentell zu beobachtenden Spektrum nicht auftreten. Es kann also nur so sein, dass die Intensitäten, mit denen diese Linien auftreten, sehr schwach sind. Dies widerspricht dann allerdings der in Kapitel 3 gemachten Annahme, dass starke Besetzungen der höheren Schwingungsniveaus erreicht werden und dass auch die Ramanlinien der höheren Übergänge stimuliert auftreten. Somit ist es auch nicht möglich, die Dissoziation auf diesem Wege zu erreichen.

Der Grund dafür liegt vermutlich darin, dass beim stimulierten Ramaneffekt die Intensität des Streulichtes, entsprechend der Beziehung $I_S = I_{S0} \cdot e^{g \cdot I_L \cdot l}$ (mit I_{S0} = Anfangsintensität des Streulichtes, I_L = Laserintensität, l = Wechselwirkungslänge und g =

Verstärkungsfaktor) exponentiell vom Verstärkungsfaktor g abhängt, der seinerseits proportional der Frequenz des Streulichtes ist (vergl. Kap. 2.3, Formel (2.2.14) und (2.2.19)). Da ein Ramanübergang von einem tiefen Niveau (z.B. ν_1) in ein höheres (ν_2), also ein Stokesübergang, immer in Konkurrenz steht zu dem entsprechenden Übergang in ein tieferes Niveau (in unserem Beispiel $\nu_1 \rightarrow \nu_0$), also mit einem Antistokesübergang (eine Ausnahme bildet der Stokesübergang von ν_0 nach ν_1 , zu dem es keinen konkurrierenden Antistokesübergang gibt), wird sich immer diejenige Lichtwelle am schnellsten aufbauen, die den grössten Verstärkungsfaktor hat. Dies kann zur Folge haben - und das ist eine für stimulierte Prozesse ganz typische Erscheinung -, dass der Prozess mit dem grösseren g -Faktor bereits soviel von der Laserintensität schluckt, dass der schwächere Effekt nicht mehr in der Lage ist, die für die Ausbildung einer stimulierten Ramanstrahlung notwendige Schwellintensität zu erreichen. Beim Wasserstoff ergibt sich nun tatsächlich, dass der g -Faktor für die, den Übergang $\nu_1 \rightarrow \nu_0$ entsprechende Antistokesstrahlung um einen Faktor 1,82 grösser ist, als für die dem Übergang von ν_1 nach ν_2 entsprechende Stokesstrahlung. Dieser Unterschied in den g -Faktoren kann dazu ausreichen, um die Ausbildung einer stimulierten Stokeslichtwelle zu verhindern und es wird somit verständlich, dass Linien, die den höheren Ramanübergängen entsprechen würden, experimentell nicht beobachtet werden. Damit ist aber auch klar, dass der in Kapitel 3 erörterte Mechanismus der stufenweisen Anregung nicht zur Dissoziation führen kann.

4.3 Zeitaufgelöste Intensitätsmessung des Streulichtes

Wir wollen nun die Frage untersuchen, ob das stimulierte Ramanlicht tatsächlich zu einem so frühen Zeitpunkt entsteht, dass ihm eine wesentliche Rolle beim Startmechanismus der Plasmaerzeugung durch Laser zukommen kann. Plasmaerzeugung setzt bereits bei Intensitäten von etwa 10^{10} W/cm² ein /18/, das heisst also zu einer Zeit, wo der Laserimpuls erst etwa ein hundertstel seiner Maximalintensität erreicht hat. Entsprechend früh müsste dann also auch das Ramanlicht zu beobachten sein. Um diese Frage untersuchen zu können wurde die in Abb.13 dargestellte Versuchsanordnung aufgebaut die es ermöglicht, mit einem einzelnen Laserschuss gleichzeitig den zeitlichen Intensitätsverlauf des eingestrahnten Laserimpulses, des bei der

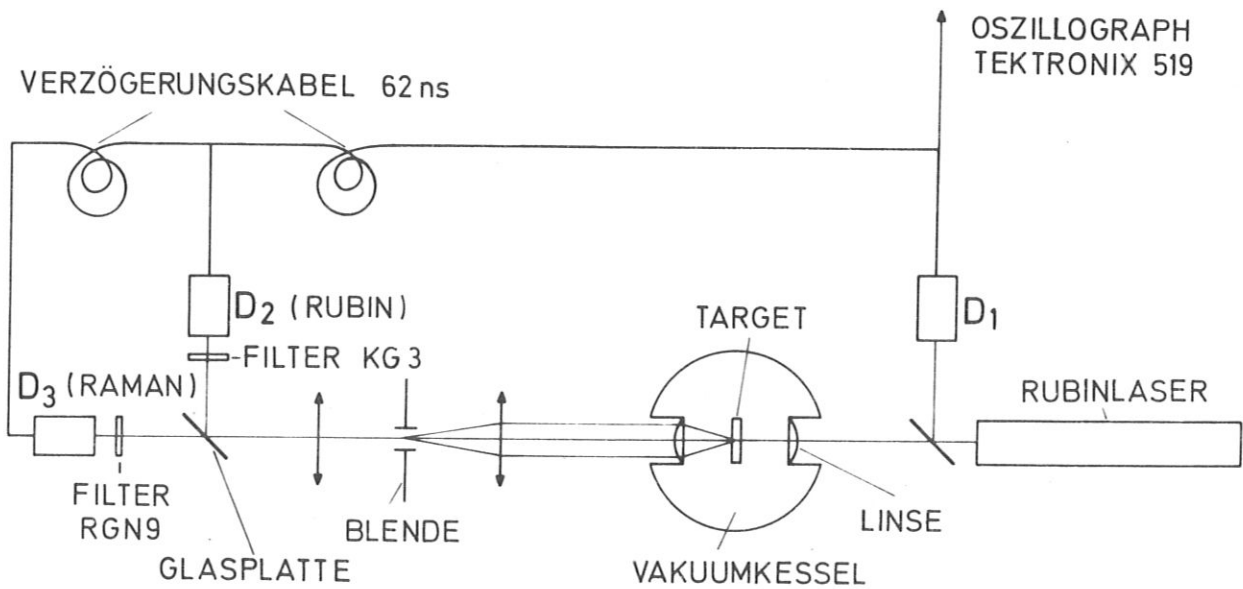


Abb.13 Schematischer Aufbau für die zeitaufgelösten Intensitätsmessungen

Wechselwirkung transmittierten (unverschobenen) Laserlichtes und des in Vorwärtsrichtung gestreuten Ramanlichtes zu beobachten. Für die Messung wurden drei schnelle Photodioden (Anstiegszeit ca. 0,5 nsec) vom Typ ITT F 4000 mit S1 Kathode in der aus Abb.13 ersichtlichen Anordnung installiert und über Koaxialkabel mit einem Tektronix 519 Oszillographen verbunden. Die Diode D_1 registriert das von dem sich unmittelbar hinter dem Verstärkerrubin befindlichen Umlenkprisma unter dem Winkel von 90° zum "Hauptstrahl" herausreflektierte Laserlicht (vergl. Abschnitt 4.2), während die Dioden D_2 und D_3 das bei der Wechselwirkung in Vorwärtsrichtung gestreute Licht registrieren. Durch Vorsetzen geeigneter Farbfilter wird erreicht, dass D_2 im wesentlichen nur das transmittierte Laserlicht sieht (Filter Schott KG 3 unterdrückt Raman-Stokeslicht des Wasserstoffs) während D_3 nur entweder das Raman-Stokeslicht sieht (Filter Schott RGN 9 unterdrückt Laserlicht und kürzere Wellenlängen) oder das Antistokeslicht 1. Ordnung (Filter Schott BG 18 + GG 495 unterdrückt Stokes, Laser und 2. Antistokeslinie). Durch zusätzliche Graufilter wurden die Dioden so abgeglichen, dass ein gut sichtbares Signal auf dem Oszillorgaphenschirm erscheint. Die Photodioden waren untereinander durch lange Koaxialkabel verbunden, die aufgrund ihrer Länge genau definierte Signalverzögerungen bewirken. Diese Verzögerungszeiten waren so bemessen, dass die Signale nacheinander den Oszillographenschirm erreichten und sich dabei nicht überlappten. Die einzelnen Signale folgen einander in den durch die Länge der Verzögerungskabel sowie durch die Laufzeit-

unterschiede des Lichtes in der Luft zwischen den einzelnen Dioden genau definierten Abständen. Auf diese Weise ist eine sehr genaue zeitliche Zuordnung der einzelnen Signale möglich (ca. ± 1 nsec). Zur Verbindung der einzelnen Kabel wurden koaxial aufgebaute T-Stücke verwendet, die zwei Siliziumdioden enthalten, um dafür zu sorgen, dass die ankommenden Signale nur in einer Richtung durchgelassen werden.

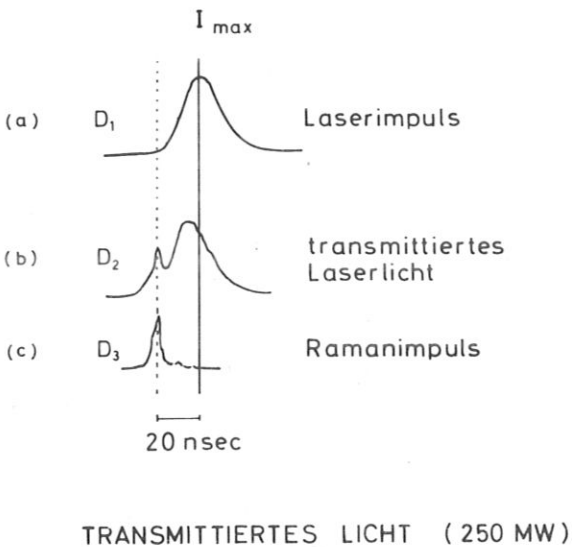


Abb.14 Oszillographenbilder der verschiedenen Photodiodensignale D_1, D_2, D_3 bei einer maximalen eingestrahlten Laserleistung $I_{\max} = 250$ MW

Abb.14 zeigt nun die drei typischen Diodensignale /21/ wie sie bei einem Laserschuss erhalten wurden, dessen Intensität im Impulsmaximum den Wert von etwa $1,8 \cdot 10^{12}$ W/cm² erreichte. Bild a zeigt die Gestalt des eingestrahlten Laserimpulses; darunter in Bild b sehen wir das transmittierte Laserlicht, das durch die erwähnten Filter von allen Ramankomponenten befreit ist und in Bild c das gefilterte Ramanstokeslicht erster Ordnung. Praktisch das gleiche Bild erhalten wir, wenn wir vor Diode D_3 die Filterkombination so wählen, dass anstelle der Stokeslinie die Antistokeslinie erster Ordnung registriert wird (siehe oben). Die drei Signale sind wegen des besseren Zeitvergleichs so untereinander gezeichnet, dass senkrecht übereinander liegende Kurven-

punkte gleichen Zeiten entsprechen. Die Intensitätsmass-Stäbe der drei Oszillographenspuren sind allerdings wegen der unterschiedlichen Filterdicken, die für den Diodenabgleich benötigt wurden, verschieden. Wir erkennen auf der Abbildung, dass der Ramanimpuls nur etwa 5 nsec dauert und dann innerhalb einer Zeit von etwa 1 nsec steil abbricht. Weiter sehen wir, dass er tatsächlich zu einer sehr frühen Zeit auftritt, lange bevor der Laserimpuls seinen Maximalwert erreicht hat. Das transmittierte Laserlicht wächst anfangs steil an, aber plötzlich zur gleichen Zeit, zu der (innerhalb unserer Messgenauigkeit von etwa 1 nsec) auch der Ramanimpuls sein Maximum hat, erreicht das transmittierte Licht ein Maximum und fällt

dann steil ab. Die Intensität kann nach dem Durchgang durch ein Minimum wieder anwachsen, worauf wir aber hier nicht näher eingehen wollen. In ergänzenden Versuchen wurde systematisch die Intensität des einfallenden Laserlichtes durch entsprechende Graufilter abgeschwächt. In allen Fällen wurde dabei beobachtet, dass das Maximum des Ramanimpulses und die Spitze des transmittierten Laserlichtes zeitlich zusammenfallen und zwar immer in dem Moment wo die Laserintensität einen Wert von etwa 10^{10} W/cm^2 erreicht hat. Die maximale Intensität des Ramanlichtes und der Spitze des transmittierten Laserlichtes war über einen weiten Bereich unabhängig von der Maximalintensität des Laserimpulses, solange diese nur über dem Wert von 10^{10} W/cm^2 blieb.

Wir können nun das beobachtete Zeitverhalten folgendermassen interpretieren. Zu Beginn der Wechselwirkung des Laserimpulses mit dem Target ist der feste Wasserstoff völlig durchsichtig und das Laserlicht wird ohne merkliche Dämpfung transmittiert. Nach kurzer Zeit, wenn die Laserintensität den erforderlichen Schwellwert überschritten hat, setzt die stimulierte Ramanstreuung ein und wächst mit zunehmender Laserintensität steil an. Die Intensität der Ramanstreuung wächst nun ihrerseits so stark an, dass Ramanantistokeslinien höherer Ordnung angeregt werden können bis dann schliesslich nach wenigen Sekunden die Ionisation des Wasserstoffs erfolgt und freie Elektronen erzeugt werden. Das Vorhandensein freier Elektronen führt nun zu verstärkter Lichtabsorption durch inverse Bremsstrahlung und damit zu schneller Aufheizung des Wasserstoffs. Wegen der starken Absorption wird nun die Lichttransmission plötzlich stark herabgesetzt und wir beobachten den scharfen Abbruch in Signal b (Abb.14). Wegen der Absorption des Laserlichtes können auch keine Ramanprozesse mehr induziert werden und dieses Signal muss daher ebenfalls steil abbrechen. Für die weitere Plasmaerzeugung spielt es auch keine Rolle mehr, da nunmehr die Ionisation über Stösse der bereits vorhandenen Elektronen erfolgen kann, wobei die Energieabsorption durch inverse Bremsstrahlung erfolgt.

Zum Abschluss wollen wir die durchgeführten Intensitätsmessungen noch quantitativ auswerten und mit der in Kapitel 2.2 behandelten Theorie vergleichen. Für die quantitative Auswertung müssen wir die Empfindlichkeit der Photodioden und des Oszillographen berücksichtigen und erhalten dabei eine Lichtempfindlichkeit von 180 W/cm Signal-

höhe. Darüberhinaus sind noch die Verluste, die durch Reflexion an der Glasplatte (vergl. Abb.13) sowie durch Absorption in den Farb- und Graufiltern entstehen, zu berücksichtigen. (Die Graufilter vor den Dioden D_2 und D_3 (in Abb.13 nicht dargestellt) waren so gewählt worden, dass die Signalhöhe auf dem Oszillographenschirm zwischen 1 und 2 cm betrug.) Hieraus und aus den gemessenen Signalhöhen ergeben sich für die Laserlichtleistung zur Zeit des Ramanmaximums 6 MW, während sich für das Ramanstokeslicht ein Wert von 450 kW ergibt.

Diese gemessenen Werte wollen wir jetzt mit der in Kapitel 2.2 behandelten Theorie vergleichen.

Wir verwenden dazu die Formel (2.2.13), die die Beziehung zwischen der eingestrahlten Laserintensität \bar{I}_L und der Streulichtintensität I_S herstellt

$$I_S = I_{s0} e^{g \bar{I}_L l} \quad (4.3.1)$$

wobei I_{s0} , die Startintensität, durch den spontanen Ramaneffekt erzeugt werden möge und daher durch die Beziehung

$$I_{s0} = N \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega} \Delta\Omega l \bar{I}_L \quad (4.3.2)$$

gegeben ist, wo N die Effektivzahl der Moleküle pro Volumeneinheit, $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ der Streuquerschnitt für spontanen Ramaneffekt, $\Delta\Omega$ der Raumwinkel in den die Streuung erfolgt, l die Wechselwirkungslänge und \bar{I}_L die Laserlichtintensität bedeuten.

Wenn wir die Ausdrücke (4.3.1) und (4.3.2) auf unser Experiment anwenden wollen, müssen wir berücksichtigen, dass die Intensität I_L wegen der Fokussierung des Laserlichtes über die Wechselwirkungslänge nicht konstant ist. Wir müssen deshalb das Produkt $\bar{I}_L \cdot l$ durch das Integral

$$\bar{I}_L \cdot l = 2 \int_a^b I_L dx \quad (4.3.3)$$

ersetzen, wobei die Lage der Integrationsgrenzen aus Abb.15 ersichtlich ist. a bezeichnet den Ort des kleinsten Strahlquerschnittes, der seinerseits in der Targetmitte liegen soll, während b den dem

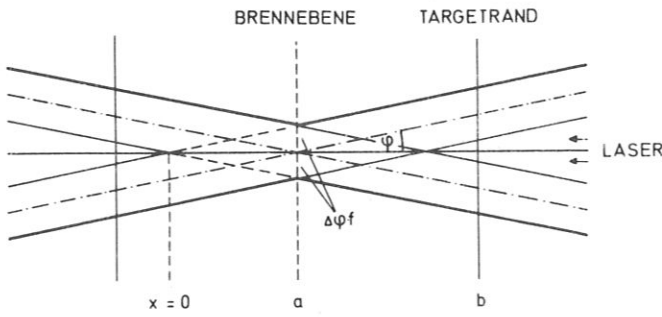


Abb.15 Schematische Darstellung zur Berechnung des ortsabhängigen Laserstrahlquerschnittes im Target. Bezeichnungen siehe Text

Laser zugewandten Targetrand bezeichnet. Um die ganze Targetdicke zu erfassen, muss das Integral also mit dem Faktor 2 multipliziert werden. Wegen der endlichen Winkeldivergenz Δ des Laserstrahles schneiden sich die Mantellinien des Lichtkegels nicht bei a sondern an der Stelle $x = 0$ (vergl. Abb.15), deren Lage durch diese Bedingung definiert wird. Für die Lage der Integrationsgrenzen a und b ergibt sich aus dieser Festlegung

$$a = \frac{\Delta\varphi \cdot f}{\operatorname{tg} \varphi} \quad \text{und} \quad b = \frac{\Delta\varphi \cdot f}{\operatorname{tg} \varphi} + \frac{l}{2} \quad (4.3.4)$$

wobei f die Brennweite der Fokussierungslinse und φ den Öffnungswinkel des Strahlkegels bedeuten. Dabei ist φ gegeben durch $\operatorname{tg} \varphi \approx \frac{d}{2f}$ wenn d der Durchmesser des Laserstrahls vor der Fokussierung ist.

Wir können nun den Ausdruck (4.3.3) weiter umformen, indem wir I_L durch das Verhältnis der als konstant betrachteten Laserleistung P_L zu dem sich mit dem Ort x ändernden Strahlquerschnitt ersetzen

$I_L = \frac{P_L}{F}$. Mit $F = \varrho^2 \pi$ und $\varrho = \operatorname{tg} \varphi x$ erhalten wir schliesslich

$$\begin{aligned} \bar{I}_L l &= 2 \frac{P_L}{\pi \operatorname{tg}^2 \varphi} \int_a^b \frac{1}{x^2} dx \\ \bar{I}_L l &= 2 \frac{P_L}{\pi \operatorname{tg}^2 \varphi} \cdot \left(\frac{1}{b} - \frac{1}{a} \right) \end{aligned} \quad (4.3.5)$$

Setzen wir dies unter Verwendung von (4.3.4) in (4.3.2) ein, so erhalten wir

$$I_{SO} = 2N \frac{d\sigma}{d\Omega} \Delta\Omega \frac{P_L}{\pi \operatorname{tg}^2 \varphi} \left(\frac{\operatorname{tg} \varphi}{\Delta\varphi \cdot f + \frac{l}{2} \operatorname{tg} \varphi} - \frac{\operatorname{tg} \varphi}{\Delta\varphi f} \right) \quad (4.3.6)$$

Durch Einsetzen der für unser Experiment zutreffenden Werte können wir daraus I_{SO} berechnen. Mit

$$\begin{aligned} N &= 3 \cdot 10^{22} \text{ Teilchen/cm}^3 \\ \frac{d\sigma}{d\Omega} &= 1,6 \cdot 10^{-31} \end{aligned}$$

$$\Delta\Omega = 0,5 \text{ sterad}$$

$$P_L = 6 \cdot 10^6 \text{ W (Messwert)}$$

$$\Delta\psi = 1,4 \cdot 10^{-3} \text{ rad}$$

$$l = 0,15 \text{ cm}$$

$$f = 5 \text{ cm}$$

$$d = 2 \text{ cm}$$

erhalten wir schliesslich:

$$I_{S0} = 4,45 \text{ W/cm}^2 \quad (4.3.7)$$

$$\bar{I}_l = 1,85 \cdot 10^9 \text{ W/cm} \quad (4.3.8)$$

und

$$\bar{I}_L = 1,23 \cdot 10^{10} \text{ W/cm}^2 \quad (4.3.9)$$

Mit diesen Werten können wir jetzt in Formel (4.3.1) eingehen, wobei natürlich ebenfalls das Produkt $I_L \cdot l$ durch das Integral $\int_a^b I_L dx$ zu ersetzen ist und durch (4.3.8) gegeben ist.

Um I_S berechnen zu können, benötigen wir jedoch noch den Wert des durch (2.2.19) gegebenen Verstärkungsfaktors g

$$g = \frac{8\pi N c}{\hbar \omega_s^2 n^2 \Delta\tilde{\nu}} \cdot \frac{d\sigma}{d\Omega}$$

Setzen wir in diesen Ausdruck neben den bereits angegebenen Grössen die folgenden Werte ein

$$c = 3 \cdot 10^{10} \text{ cm sec}^{-1}$$

$$\hbar = 1,05 \cdot 10^{-34} \text{ W sec}^2$$

$$\omega_s = 1,93 \cdot 10^{15}$$

$$n_{H_2} = 1,11$$

$$\Delta\tilde{\nu}_{H_2} = 0,4 \text{ cm}^{-1}$$

so erhalten wir für g_{H_2}

$$g_{H_2} = 9,7 \cdot 10^{-9} \quad (4.3.10)$$

Durch Einsetzen der Werte (4.3.7) bis (4.3.10) in (4.3.1) erhalten wir für die Laserintensität

$$I_s = I_{s0} \cdot e^{g_{H_2} I_L} = 4,45 \cdot e^{78} = 3 \cdot 10^8 \text{ W/cm}^2 \quad (4.3.11)$$

Um unsere gemessene Streulichtleistung von 450 kW hiermit vergleichen zu können, müssen wir diese noch durch den mittleren Strahlquerschnitt in der Wechselwirkungszone teilen. Wir können diesen mittleren Strahlquerschnitt erhalten, wenn wir die Laserleistung P_L durch die mittlere Laserintensität teilen, die durch (4.3.9) gegeben ist. Dabei erhalten wir

$$F = \frac{P_L}{I_L} = \frac{6 \cdot 10^6}{1,23 \cdot 10^{10}} \text{ cm}^2 = 4,9 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2 \quad (4.3.12)$$

Wenn wir also die gemessene Ramanlichtleistung durch diesen Wert dividieren, erhalten wir schliesslich

$$I_{s \text{ gem}} = \frac{P_s}{F} = \frac{4,5 \cdot 10^5}{4,9 \cdot 10^{-4}} = 9,2 \cdot 10^8 \text{ W/cm}^2 \quad (4.3.13)$$

in guter Übereinstimmung mit dem berechneten Wert (4.3.11).

5. ZUSAMMENFASSUNG

Bei der Plasmaerzeugung durch Laserstrahlung wird im allgemeinen angenommen, dass die Energieeinkopplung über freie Elektronen erfolgt, die durch frei-frei Absorption die Energie aus dem Laserlicht aufnehmen. Eine wichtige und interessante Frage ist in diesem Zusammenhang die Frage nach der Entstehung bzw. der Herkunft der ersten freien Elektronen, die für die Inangangsetzung des Plasmaerzeugungs und -aufheizmechanismus von entscheidender Bedeutung sind. Interessant ist diese Frage vor allem deshalb, weil die Quantenenergie des üblicherweise für solche Versuche verwendeten Rubinlaser- (1,78 eV) oder Neodymglaslaserlichtes (1,16 eV) bei weitem nicht dazu ausreicht, um zum Beispiel ein Wasserstoffmole-

kül, dessen Ionisierungsenergie 15,4 eV beträgt, durch Photoeffekt zu ionisieren. Die Frage, die man sich stellen muss, lautet also: Wie kann das Laserlicht auf andere Weise als durch den einfachen Photoeffekt Elektronen aus der festen Bindung des Moleküls herauslösen?

In der vorliegenden Arbeit wurde eine neue Modellvorstellung entwickelt, die bei molekularen Targetsustanzen in Konkurrenz zum Multiphotonenmodell treten kann. Im Gegensatz zu den Vorstellungen des Multiphotonenmodells wurde hier davon ausgegangen, dass in der Anfangsphase der Laser-Materie-Wechselwirkung, während der Laserimpuls einen bestimmten Intensitätsbereich (10^6 — 10^{10} W/cm²) durchläuft, stimulierte Ramanantistokesstrahlung erzeugt werden kann, deren Quantenenergie höher ist als die des ursprünglich eingestrahlten Laserlichtes. Wegen der ausserordentlich hohen Streulichtintensitäten, die bei diesem stimulierten Prozess auftreten, wird weiter gefolgert, dass auch das Streulicht selbst wieder zur Anregung eines stimulierten Ramanprozesses führen kann und dass durch Fortsetzung dieses Vorgangs schliesslich Ramanantistokeslicht so hoher Ordnung erzeugt wird, dass seine Energie zur Photoionisation der bestrahlten Moleküle ausreicht.

Experimentell konnte gezeigt werden, dass während des Plasmaerzeugungsprozesses tatsächlich Ramanantistokeslicht höherer Ordnung auftritt. Dieses Antistokeslicht konnte spektroskopisch bei Wasserstoff bis zur 7. Ordnung, in Deuterium bis zur 10. und bei Stickstoff bis zur 12. Ordnung nachgewiesen werden. Die obere Grenze der Nachweisbarkeit war dabei in allen drei Fällen durch die Grenzen der Nachweismethoden gegeben.

Weiter wurde durch zeitaufgelöste Beobachtung des bei der Wechselwirkung durch das Target transmittierten Laserlichtes, des Ramanlichtes sowie des eingestrahlten Laserlichtes festgestellt, dass das Ramanlicht bereits zu einem sehr frühen Zeitpunkt relativ zum Maximum des Laserimpulses auftritt und dass unmittelbar im Anschluss an das Maximum des Ramanlichtes starke Absorption des Laserlichtes im Target erfolgt. Dies wird auf das Einsetzen der Plasmabildung zu diesem Zeitpunkt zurückgeführt. Sowohl die zeitaufgelösten Intensitätsmessungen als auch die spektroskopischen Ergebnisse liefern eine gute Bestätigung für das theoretische Modell, denn eines-

teils zeigen die Spektren, dass Ramanantistokeslicht höherer Ordnung tatsächlich während der Wechselwirkung erzeugt wird, andernteils zeigen die zeitaufgelösten Messungen, dass die Plasmabildung offenbar immer zu einem ganz bestimmten Zeitpunkt einsetzt, wenn das Laserlicht einen bestimmten Intensitätswert von etwa 10^{10} W/cm² erreicht hat.

A N H A N G I

ZUR ABLEITUNG DER FORMELN (2.2.7) UND (2.2.8) IN KAPITEL 2.2

In diesem Anhang sollen die Beziehungen (2.2.7) und (2.2.8) des Kapitels 2.2 ausführlich hergeleitet werden. Dazu gehen wir aus von der Differentialgleichung (2.2.4). Da die Kraft in (2.2.4) durch (2.2.5), also durch

$$F = \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} E^2 \quad (2.2.5)$$

gegeben ist, berechnen wir unter Verwendung von (2.2.6) zunächst E^2

$$E = E_{A_0} \cos(\omega_A t - k_A r) + E_{L_0} \cos(\omega_L t - k_L r + \varphi_L) + E_{S_0} \cos(\omega_S t - k_S r + \varphi_S) \quad (2.2.6)$$

$$= \frac{1}{2} E_{A_0} (e^{i(\omega_A t - k_A r)} + e^{-i(\omega_A t - k_A r)}) + \frac{1}{2} E_{L_0} (e^{i(\omega_L t - k_L r + \varphi_L)} + e^{-i(\omega_L t - k_L r + \varphi_L)}) + \frac{1}{2} E_{S_0} (e^{i(\omega_S t - k_S r + \varphi_S)} + e^{-i(\omega_S t - k_S r + \varphi_S)})$$

$$E^2 = \frac{1}{4} E_{A_0}^2 (e^{2i(\omega_A t - k_A r)} + e^{-2i(\omega_A t - k_A r)} + 2) + \frac{1}{4} E_{L_0}^2 (e^{2i(\omega_L t - k_L r + \varphi_L)} + e^{-2i(\omega_L t - k_L r + \varphi_L)} + 2) + \frac{1}{4} E_{S_0}^2 (e^{2i(\omega_S t - k_S r + \varphi_S)} + e^{-2i(\omega_S t - k_S r + \varphi_S)} + 2) +$$

$$+ \frac{1}{2} E_{A_0} E_{L_0} (e^{i[(\omega_A + \omega_L)t - (k_A + k_L)r + \varphi_L]} + e^{i[(\omega_A - \omega_L)t - (k_A - k_L)r - \varphi_L]} + e^{-i[(\omega_A - \omega_L)t - (k_A - k_L)r - \varphi_L]} + e^{-i[(\omega_A + \omega_L)t - (k_A + k_L)r + \varphi_L]}) +$$

$$+ \frac{1}{2} E_{A_0} E_{S_0} (e^{i[(\omega_A + \omega_S)t - (k_A + k_S)r + \varphi_S]} + e^{i[(\omega_A - \omega_S)t - (k_A - k_S)r - \varphi_S]} + e^{-i[(\omega_A - \omega_S)t - (k_A - k_S)r - \varphi_S]} + e^{-i[(\omega_A + \omega_S)t - (k_A + k_S)r + \varphi_S]}) +$$

$$+ \frac{1}{2} E_{L_0} E_{S_0} (e^{i[(\omega_L + \omega_S)t - (k_L + k_S)r + \varphi_L + \varphi_S]} + e^{i[(\omega_L - \omega_S)t - (k_L - k_S)r + \varphi_L - \varphi_S]} + e^{-i[(\omega_L - \omega_S)t - (k_L - k_S)r + \varphi_L - \varphi_S]} + e^{-i[(\omega_L + \omega_S)t - (k_L + k_S)r + \varphi_L + \varphi_S]})$$

$$E^2 = \frac{1}{2} E_{A_0}^2 + \frac{1}{2} E_{L_0}^2 + \frac{1}{2} E_{S_0}^2 + \frac{1}{2} E_{A_0}^2 \cos 2(\omega_A t - k_A r) + \frac{1}{2} E_{L_0}^2 \cos 2(\omega_L t - k_L r + \varphi_L) + \frac{1}{2} E_{S_0}^2 \cos 2(\omega_S t - k_S r + \varphi_S) +$$

$$+ E_{A_0} E_{L_0} \cos[(\omega_A + \omega_L)t - (k_A + k_L)r + \varphi_L] + E_{A_0} E_{L_0} \cos[(\omega_A - \omega_L)t - (k_A - k_L)r - \varphi_L] +$$

$$+ E_{A_0} E_{S_0} \cos[(\omega_A + \omega_S)t - (k_A + k_S)r + \varphi_S] + E_{A_0} E_{S_0} \cos[(\omega_A - \omega_S)t - (k_A - k_S)r - \varphi_S] +$$

$$+ E_{L_0} E_{S_0} \cos[(\omega_L + \omega_S)t - (k_L + k_S)r + \varphi_L + \varphi_S] + E_{L_0} E_{S_0} \cos[(\omega_L - \omega_S)t - (k_L - k_S)r + \varphi_L - \varphi_S] \quad (A1.1)$$

Durch Einsetzen dieses Ausdrucks in (2.2.5) und (2.2.4), wobei wir die nicht von der Zeit abhängenden Komponenten weglassen, erhalten wir die folgende Differentialgleichung

$$\begin{aligned}
 m\ddot{x} + m\Gamma\dot{x} + m\omega_0^2 x = & \frac{1}{4} \frac{d\alpha}{dx} E_{A_0}^2 \cos 2(\omega_R t - k_R y) + \frac{1}{4} \frac{d\alpha}{dx} E_{L_0}^2 \cos 2(\omega_L t - k_L y + \varphi_L) + \frac{1}{4} \frac{d\alpha}{dx} E_{S_0}^2 \cos 2(\omega_S t - k_S y + \varphi_S) + \\
 & + \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} E_{A_0} E_{L_0} \left\{ \cos [(\omega_R + \omega_L)t - (k_R + k_L)y + \varphi_L] + \cos [(\omega_R - \omega_L)t - (k_R - k_L)y - \varphi_L] \right\} + \\
 (A1.2) \quad & + \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} E_{A_0} E_{S_0} \left\{ \cos [(\omega_R + \omega_S)t - (k_R + k_S)y + \varphi_S] + \cos [(\omega_R - \omega_S)t - (k_R - k_S)y - \varphi_S] \right\} + \\
 & + \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} E_{L_0} E_{S_0} \left\{ \cos [(\omega_L + \omega_S)t - (k_L + k_S)y + \varphi_L + \varphi_S] + \cos [(\omega_L - \omega_S)t - (k_L - k_S)y + \varphi_L - \varphi_S] \right\}
 \end{aligned}$$

Die stationäre Lösung dieser Gleichung lautet:

$$\begin{aligned}
 x = & A_{Rz} \sin 2(\omega_R t - k_R y) + B_{Rz} \cos 2(\omega_R t - k_R y) + A_{Lz} \sin 2(\omega_L t - k_L y + \varphi_L) + B_{Lz} \cos 2(\omega_L t - k_L y + \varphi_L) + \\
 & + A_{Sz} \sin 2(\omega_S t - k_S y + \varphi_S) + B_{Sz} \cos 2(\omega_S t - k_S y + \varphi_S) + \\
 & + A_{R+L} \sin [(\omega_R + \omega_L)t - (k_R + k_L)y + \varphi_L] + B_{R+L} \cos [(\omega_R + \omega_L)t - (k_R + k_L)y + \varphi_L] + \\
 & + A_{R-L} \sin [(\omega_R - \omega_L)t - (k_R - k_L)y - \varphi_L] + B_{R-L} \cos [(\omega_R - \omega_L)t - (k_R - k_L)y - \varphi_L] + \\
 (A1.3) \quad & + A_{R+S} \sin [(\omega_R + \omega_S)t - (k_R + k_S)y + \varphi_S] + B_{R+S} \cos [(\omega_R + \omega_S)t - (k_R + k_S)y + \varphi_S] + \\
 & + A_{R-S} \sin [(\omega_R - \omega_S)t - (k_R - k_S)y - \varphi_S] + B_{R-S} \cos [(\omega_R - \omega_S)t - (k_R - k_S)y - \varphi_S] + \\
 & + A_{L+S} \sin [(\omega_L + \omega_S)t - (k_L + k_S)y + \varphi_L + \varphi_S] + B_{L+S} \cos [(\omega_L + \omega_S)t - (k_L + k_S)y + \varphi_L + \varphi_S] + \\
 & + A_{L-S} \sin [(\omega_L - \omega_S)t - (k_L - k_S)y + \varphi_L - \varphi_S] + B_{L-S} \cos [(\omega_L - \omega_S)t - (k_L - k_S)y + \varphi_L - \varphi_S]
 \end{aligned}$$

mit den folgenden Abkürzungen für die Amplituden

$$A_A^2 = \frac{\left(\frac{d\alpha}{dx}\right) E_{A0}^2 \Gamma}{4m} \cdot \frac{2\omega_A}{(\omega_0^2 - 4\omega_A^2)^2 + 4\Gamma^2\omega_A^2}$$

$$B_A^2 = \frac{\frac{d\alpha}{dx} E_{A0}^2}{4m} \cdot \frac{\omega_0^2 - 4\omega_A^2}{(\omega_0^2 - 4\omega_A^2)^2 + 4\Gamma^2\omega_A^2}$$

$$A_L^2 = \frac{\frac{d\alpha}{dx} \cdot E_{L0} \Gamma}{4m} \cdot \frac{2\omega_L}{(\omega_0^2 - 4\omega_L^2)^2 + 4\Gamma^2\omega_L^2}$$

$$B_L^2 = \frac{\frac{d\alpha}{dx} \cdot E_{L0}^2}{4m} \cdot \frac{\omega_0^2 - 4\omega_L^2}{(\omega_0^2 - 4\omega_L^2)^2 + 4\Gamma^2\omega_L^2}$$

$$A_S^2 = \frac{\frac{d\alpha}{dx} E_{S0}^2 \Gamma}{4m} \cdot \frac{2\omega_S}{(\omega_0^2 - 4\omega_S^2)^2 + 4\Gamma^2\omega_S^2}$$

$$B_S^2 = \frac{\frac{d\alpha}{dx} E_{S0}^2}{4m} \cdot \frac{\omega_0^2 - 4\omega_S^2}{(\omega_0^2 - 4\omega_S^2)^2 + 4\Gamma^2\omega_S^2}$$

$$A_{A+L} = \frac{\frac{d\alpha}{dx} E_{A0} E_{L0} \Gamma}{2m} \cdot \frac{\omega_A + \omega_L}{[\omega_0^2 - (\omega_A + \omega_L)^2]^2 + \Gamma^2(\omega_A + \omega_L)^2}$$

$$B_{A+L} = \frac{\frac{d\alpha}{dx} E_{A0} E_{L0}}{2m} \cdot \frac{4\omega_A \omega_L}{16\omega_A^2 \omega_L^2 + \Gamma^2(\omega_A + \omega_L)^2}$$

(A1.4)

$$A_{A-L} = \frac{\frac{d\alpha}{dx} E_{A0} E_{L0}}{2m} \cdot \frac{1}{\omega_0 \Gamma}$$

$$B_{A-L} = 0$$

$$A_{A+S} = \frac{\frac{d\alpha}{dx} E_{A0} E_{S0} \Gamma}{2m} \cdot \frac{\omega_A + \omega_S}{[\omega_0^2 - (\omega_A + \omega_S)^2]^2 + \Gamma^2(\omega_A + \omega_S)^2}$$

$$B_{A+S} = \frac{\frac{d\alpha}{dx} E_{A0} E_{S0}}{2m} \cdot \frac{\omega_0^2 - (\omega_A + \omega_S)^2}{[\omega_0^2 - (\omega_A + \omega_S)^2]^2 + \Gamma^2(\omega_A + \omega_S)^2}$$

$$A_{A-S} = \frac{\frac{d\alpha}{dx} E_{A0} E_{S0} \Gamma}{2m} \cdot \frac{2\omega_0}{[(\omega_0^2 - 4\omega_0^2)^2 + 4\Gamma^2\omega_0^2]}$$

$$B_{A-S} = \frac{\frac{d\alpha}{dx} E_{A0} E_{S0}}{2m} \cdot \frac{\omega_0^2 - 4\omega_0^2}{[\omega_0^2 - 4\omega_0^2]^2 + 4\Gamma^2\omega_0^2}$$

$$A_{L+S} = \frac{\frac{d\alpha}{dx} E_{L0} E_{S0} \Gamma}{2m} \cdot \frac{\omega_L + \omega_S}{[\omega_0^2 - (\omega_L + \omega_S)^2]^2 + \Gamma^2(\omega_L + \omega_S)^2}$$

$$B_{L+S} = \frac{\frac{d\alpha}{dx} E_{L0} E_{S0}}{2m} \cdot \frac{\omega_0^2 - (\omega_L + \omega_S)^2}{[\omega_0^2 - (\omega_L + \omega_S)^2]^2 + \Gamma^2(\omega_L + \omega_S)^2}$$

$$A_{L-S} = \frac{\frac{d\alpha}{dx} E_{L0} E_{S0}}{2m} \cdot \frac{1}{\omega_0 \Gamma}$$

$$B_{L-S} = 0$$

Setzen wir in diese Ausdrücke für die Amplituden entsprechende Zahlenwerte ein (für Wasserstoff und Rubinlaserlicht gilt:

$\omega_A = 3,5 \cdot 10^{15}$, $\omega_L = 2,7 \cdot 10^{15}$, $\omega_S = 1,9 \cdot 10^{15}$, $\omega_0 = 0,75 \cdot 10^{15}$, $\Gamma = \Delta\omega = 7,6 \cdot 10^{10}$ (vergl. S.35)), so sehen wir sofort, dass die

Amplituden A_{A-L} und A_{L-S} der resonanten Glieder ($\omega_A - \omega_L = \omega_L - \omega_S = \omega_0$) um mehrere Zehnerpotenzen grösser sind als die Amplituden der nicht-resonanten Glieder (dabei ist angenommen, dass $E_A \approx E_S \gg 10^{-5} E_L$).

Wir können daher diese nichtresonanten Glieder in (4.1.3) vernachlässigen und uns in den folgenden Rechnungen auf die Glieder mit den Amplituden A_{A-L} und A_{L-S} beschränken.

Berechnen wir also nun das Dipolmoment μ nach Formel (2.2.2) unter Berücksichtigung von (2.2.6), so erhalten wir

$$\begin{aligned}
 \mu = & \alpha_0 E_{A0} \cos(\omega_A t - k_A r) + \alpha_0 E_{L0} \cos(\omega_L t - k_L r + \varphi_L) + \alpha_0 E_{S0} \cos(\omega_S t - k_S r + \varphi_S) + \\
 & + \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} A_{A-L} \cdot E_{A0} \left\{ \sin[\omega_L t + k_L r - \varphi_L] + \sin[(2\omega_A - \omega_L)t - (2k_A - k_L)r - \varphi_L] \right\} + \\
 & + \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} A_{A-L} \cdot E_{L0} \left\{ \sin[(\omega_A - 2\omega_L)t - (k_A - 2k_L)r - 2\varphi_L] + \sin[\omega_A t - k_A r] \right\} + \\
 (A.1.5) \quad & + \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} A_{A-L} \cdot E_{S0} \left\{ \sin[(\omega_A - \omega_L - \omega_S)t - (k_A - k_L - k_S)r - \varphi_L - \varphi_S] + \sin[(\omega_A - \omega_L + \omega_S)t - (k_A - k_L + k_S)r + \varphi_L + \varphi_S] \right\} + \\
 & + \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} A_{L-S} \cdot E_{A0} \left\{ \sin[(\omega_L - \omega_S - \omega_A)t - (k_L - k_S - k_A)r + \varphi_L - \varphi_S] + \sin[(\omega_L - \omega_S + \omega_A)t - (k_L - k_S + k_A)r + \varphi_L - \varphi_S] \right\} + \\
 & + \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} A_{L-S} \cdot E_{L0} \left\{ \sin[-\omega_S t + k_S r - \varphi_S] + \sin[(2\omega_L - \omega_S)t - (2k_L - k_S)r + 2\varphi_L - \varphi_S] \right\} + \\
 & + \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} A_{L-S} \cdot E_{S0} \left\{ \sin[(\omega_L - 2\omega_S)t - (k_L - 2k_S)r + \varphi_L - 2\varphi_S] + \sin[\omega_L t - k_L r + \varphi_L] \right\}
 \end{aligned}$$

Dieser Ausdruck (A.1.5) ist nun wegen (2.2.3) nach der Zeit zu differenzieren. Hierbei werden, abgesehen von den entsprechenden Änderungen der Koeffizienten, die sinus-Funktionen durch cosinus ersetzt, wobei die Argumente dieser Funktionen erhalten bleiben. Es ist deshalb schon an dem obigen Ausdruck (A.1.5) leicht zu erkennen, dass bei der Multiplikation des differenzierten Ausdruckes $\frac{d\mu}{dt}$ mit $E' = E_{A0} \cos(\omega_A t - k_A r)$ Glieder entstehen werden, die die zeitunabhängigen Faktoren $\cos 0 (= 1)$ bzw. $\cos[(2k_L - k_A - k_S)r + 2\varphi_L - \varphi_S]$ enthalten. (In (A.1.5) sind die Glieder die diese Beiträge liefern unterstrichen.) Bei der anschliessenden zeitlichen Mittelung stellt sich dann schliesslich heraus, dass nur diese Glieder einen Beitrag zur Energieübertragung leisten können, weil alle anderen Glieder - wegen $\frac{1}{T} \int_{t_0}^{t_0+T} \cos \Omega t dt$ für alle Ω - bei der zeitlichen Mittelung verschwinden.

Wir können uns daher für die weitere Rechnung auf die Behandlung der in (A.1.5) unterstrichenen Glieder beschränken. Durch Differentiation nach der Zeit erhalten wir dann also zunächst

$$\frac{d\mu}{dt} = \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} A_{A-L} E_{L0} \omega_A \cos(\omega_A t - k_A r) + \frac{1}{2} \frac{d\alpha}{dx} A_{L-S} E_{L0} (2\omega_L - \omega_S) \cdot \cos[(2\omega_L - \omega_S)t - (2k_L - k_S)r + 2\varphi_L - \varphi_S] \quad (A.1.6)$$

Multipizieren wir dies nun entsprechend (2.2.3) mit $E' = E_A = E_{A0} \cos(\omega_{A0} t - k_A r)$, so erhalten wir

$$\begin{aligned} \frac{dU}{dt} E_A &= \frac{1}{4} \frac{d\alpha}{dx} A_{A-L} E_{L0} E_{A0} \omega_A [\cos 0 + \cos(2\omega_A t - 2k_A r)] + \\ &+ \frac{1}{4} \frac{d\alpha}{dx} A_{L-S} E_{L0} E_{A0} (2\omega_L - \omega_S) \cdot \left\{ \cos[(2k_L - k_S - k_A)r + 2\varphi_L - \varphi_S] + \cos[(2\omega_L - \omega_S + \omega_A)t - \right. \\ &\left. - (2k_L - k_S + k_A)r + 2\varphi_L - \varphi_S] \right\} \end{aligned} \quad (\text{A.1.7})$$

Bei der zeitlichen Mittelung verschwinden die zeitabhängigen Glieder und wir erhalten mit $2\omega_L - \omega_S = \omega_A$:

$$\left\langle \frac{dU}{dt} E_A \right\rangle = \frac{1}{4} \frac{d\alpha}{dx} A_{A-L} E_{L0} E_{A0} \omega_A + \frac{1}{4} \frac{d\alpha}{dx} A_{L-S} E_{L0} E_{A0} \omega_A \cos[(2k_L - k_S - k_A)r + 2\varphi_L - \varphi_S]$$

Führen wir nun wieder die Amplituden A_{A-L} und A_{L-S} aus (A.1.4) ein, so erhalten wir schliesslich

$$\left\langle \frac{dU}{dt} E_A \right\rangle = \frac{\left(\frac{d\alpha}{dx}\right)^2 \omega_A}{8m\Gamma\omega_0} \left\{ (E_{A0} E_{L0})^2 + (E_{A0} E_{L0})(E_{L0} E_{S0}) \cos[(2k_L - k_S - k_A)r + 2\varphi_L - \varphi_S] \right\} \quad (\text{A.1.8})$$

Dieser Ausdruck ist identisch mit der in Kapitel 2.2. angegebenen Formel (2.2.7). Führen wir die entsprechende Rechnung für die Stokeskomponente durch, so erhalten wir ganz entsprechend Formel (2.2.8)

$$\left\langle \frac{dU}{dt} E_S \right\rangle = - \frac{\left(\frac{d\alpha}{dx}\right)^2 \omega_S}{8m\Gamma\omega_0} \cdot \left\{ (E_{L0} E_{S0})^2 + (E_{L0} E_{S0})(E_{L0} E_{A0}) \cos[(2k_L - k_A - k_S)r + 2\varphi_L - \varphi_S] \right\} \quad (\text{A.1.9})$$

ÜBERGANGSWAHRSCHEINLICHKEITEN UND AUSWAHLREGELN FÜR DIPOL- UND RAMANÜBERGÄNGE ZWISCHEN DEN MOLEKÜLSCHWINGUNGSNIVEAUS DES WASSERSTOFFS

Die Übergangswahrscheinlichkeiten für Übergänge der Moleküle von einem Schwingungszustand ν' in einen anderen Schwingungszustand ν'' sind gegeben durch das Quadrat der diesen Übergängen entsprechenden Matrixelemente (vergl. /5/). Im Folgenden sollen diese Matrixelemente im Hinblick auf die Gegebenheiten wie sie beim Wasserstoffmolekül vorliegen näher betrachtet werden.

Um die Wahrscheinlichkeit für Dipolübergänge zu erhalten, betrachten wir das Molekül als einen harmonischen Oszillator, der in der Richtung der Kernverbindungsline schwingt. In die Richtung dieser Kernverbindungsline legen wir, um möglichst einfach rechnen zu können, die x-Achse unseres Koordinatensystems. Das Molekül soll in der Gleichgewichtslage ein Dipolmoment μ haben, das sich linear mit der Abweichung x des Kernabstandes von der Gleichgewichtslage um den Betrag $\mu_1 x$ ändert. Das sich ändernde Dipolmoment ist dann gegeben durch

$$\mu = \mu_0 + \mu_1 x$$

Setzt man nun diesen Ausdruck in den bekannten Ausdruck für das Matrixelement $R_x^{n,m} = \int \psi_n^* \mu_x \psi_m d\tau$ ein, wobei die Indizes den Schwingungszuständen ν' bzw. ν'' zugeordnet sind, so erhält man

$$R_x^{\nu'\nu''} = \mu_0 \int \psi_{\nu'}^* \psi_{\nu''} dx + \mu_1 \int x \psi_{\nu'}^* \psi_{\nu''} dx$$

Der erste Ausdruck auf der rechten Seite verschwindet für $\nu' \neq \nu''$ wegen der Orthogonalität der Eigenfunktionen. Der zweite Term müsste für beliebige zweiatomige Moleküle an sich noch weiter ausgewertet werden, da wir uns aber hier speziell nur für den Fall des homonuklearen Wasserstoffs und Deuteriums interessieren genügt es festzustellen, dass μ_1 für alle zweiatomigen homonuklearen Moleküle gleich Null ist und somit auch der zweite Ausdruck auf der rechten Seite verschwindet. Insgesamt folgt daraus, dass das Matrixelement $R_x^{\nu'\nu''}$ verschwindet und damit auch die Übergangswahrschein-

lichkeit für Dipolübergänge zwischen den einzelnen Schwingungsniveaus, d.h. Dipolübergänge sind bei zweiatomigen homonuklearen Molekülen verboten.

Anders liegt der Fall für Ramanübergänge. Hierfür ist nicht das Vorhandensein eines sich ändernden Dipolmoments erforderlich, sondern nach Placzek /14/ ist die Änderung der Polarisierbarkeit die entscheidende Grösse.

Betrachten wir jetzt das entsprechende Matrixelement

$$S^{nm} = \int \psi_n^* P \psi_m d\tau$$

wobei ψ_n, ψ_m wieder die Eigenfunktionen zweier betrachteter Schwingungszustände ν' und ν'' sind. Für P hat man jetzt den klassischen Ausdruck der Polarisierbarkeit einzusetzen

$$P = \alpha F$$

wo F die elektrische Feldstärke bedeutet.

Da ψ_n^*, ψ_m und P die Zeitfaktoren $e^{i\frac{E_n}{\hbar}t}$, $e^{-i\frac{E_m}{\hbar}t}$ und $e^{2\pi i\nu t}$ enthalten, variiert S^{nm} mit der Frequenz $\nu' + (E_n - E_m)/h$

Für die Amplitude erhalten wir

$$S^{nm} = |F| \int \psi_n^* \alpha \psi_m d\tau$$

Wenn für zwei Zustände ν_n und ν_m das Integral von Null verschieden ist, kann ein Übergang von n nach m unter dem Einfluss des einfallenden Lichtes stattfinden und gleichzeitig wird das gestreute Licht die Frequenz $\nu + (E_n - E_m)/h$ haben, d.h. es erscheinen Ramanlinien, die um den Betrag $(E_n - E_m)/h$ verschoben sind.

Das Quadrat des Integrals ist proportional zur Übergangswahrscheinlichkeit, die die Intensität der einzelnen Ramanlinien bestimmt.

Wenn die Polarisierbarkeit α konstant ist, kann sie vor das Integral gezogen werden. Wegen der Orthogonalität der Eigenfunktionen werden dann alle Integrale zu Null, ausser für den Fall $n = m$. Ein

Ramanübergang kann daher nur stattfinden, wenn sich die Polarisierbarkeit während der betrachteten Schwingung ändert.

Um das Matrixelement für einen harmonischen Oszillator auszuwerten, müssen wir die Schwingungseigenfunktionen und einen Ausdruck für die Polarisierbarkeit α substituieren. In erster Näherung nehmen wir wieder eine lineare Änderung von α mit der Auslenkung x aus der Gleichgewichtslage an

$$\alpha = \alpha_0 + \alpha_1 x$$

Hierbei ist $\alpha_1 = \frac{d\alpha}{dx}$ die Änderung der Polarisierbarkeit mit x . Substituiert man dies in das Integral, so erhalten wir

$$S^{v'v''} = |F| \alpha_0 \int \psi_{v'}^* \psi_{v''} dx + |F| \alpha_1 \int x \psi_{v'}^* \psi_{v''} dx$$

Wegen der Orthogonalität der Eigenfunktionen ist das erste Integral auf der rechten Seite gleich Null, ausser für $v' = v''$ (Rayleighstreuung). Der zweite Ausdruck auf der rechten Seite enthält das Integral

$$\int x \psi_{v'}^* \psi_{v''} dx$$

Dieses Integral können wir auswerten, wenn wir für ψ_n, ψ_m die bekannten Eigenfunktionen des harmonischen Oszillators

$$\psi_v = N_v \cdot H_v(\xi) e^{-\frac{\xi^2}{2}}$$

und die Grösse

$$\xi = x \sqrt{\gamma}$$

einführen.

Wir erhalten dann

$$x_{v'v''} = \int_{-\infty}^{+\infty} x \psi_{v'}^* \psi_{v''} dx = \frac{N_{v'} N_{v''}}{\alpha} \int_{-\infty}^{+\infty} \xi H_{v'}(\xi) H_{v''}(\xi) e^{-\xi^2} d\xi$$

N_v stellt dabei eine Normierungskonstante dar, während $H_v(\xi)$ ein sogenanntes Hermite'sches Polynom darstellt.

Für solche Hermite'schen Polynome gilt die folgende Rekursionsformel

$$\xi H_n(\xi) = \frac{1}{2} H_{n+1}(\xi) + n H_{n-1}(\xi)$$

Führen wir nun diese Beziehung in unser Integral ein, so erhalten wir schliesslich

$$x_{v',v''} = \frac{N_{v'} N_{v''}}{\alpha} \left[\frac{1}{2} \int H_{v'}(\xi) H_{v''+1}(\xi) \cdot e^{-\xi^2} d\xi + v'' \int H_{v'}(\xi) H_{v''-1}(\xi) e^{-\xi^2} d\xi \right]$$

Wegen der Orthogonalität der Eigenfunktionen verschwindet das erste Integral in der Klammer in allen Fällen, ausser für $v' = v'' + 1$, während das zweite Integral für alle Fälle, ausser für $v' = v'' - 1$, verschwindet.

Wir haben damit die Auswahlregel für Ramanübergänge gefunden. Es sind nur Übergänge erlaubt, die der Bedingung

$$\Delta v = \pm 1$$

entsprechen. Eine weitere Bedingung ist natürlich, dass die Änderung der Polarisierbarkeit α_1 nicht verschwinden darf, da sonst ebenso wie im Falle der Dipolübergänge der zweite Term im Ausdruck für das Matrixelement S^{nm} verschwinden würde. Im Gegensatz zum Dipolmoment und dessen Änderung, die für homonukleare zweiatomige Moleküle exakt gleich Null sind, verschwinden die Polarisierbarkeit und deren Änderung für kein zweiatomiges Molekül exakt. Für Ionenmoleküle ist α_1 allerdings im allgemeinen sehr klein, aber im Falle der homeopolaren Bindung, wie sie beim Wasserstoff vorliegt, wird die Bindung durch die Elektronen zwischen den Kernen bewerkstelligt. Hier kann die Änderung der Polarisierbarkeit mit dem Kernabstand beträchtlich sein, d.h. man bekommt relativ starke Ramanlinien.

L i t e r a t u r v e r z e i c h n i s

- 1 P.D. Maker, R.W. Terhune, C.M. Savage: Quantum Electronics Proc. of the third Int. Congress (P. Grivet and N. Bloembergen eds.), p. 1559, Columbia University Press New York (1964)
- 2 J.K. Wright: Proc. Phys. Soc. 84, 41 (1964)
- 3 W.J. Fader: Phys. of Fluids 11, 2200 (1968)
- 4 P. Mulser: Z. f. Naturforsch. 25a, 282 (1970)
- 5 G. Herzberg: Spectra of Diatomic Molecules, Van Nostrand Company (1950)
- 6 M. Young, M. Hercher: J. Appl. Phys. 38, 4393 (1967)
- 7 B.A. Tozer: Phys. Rev. 137, 1665 (1965)
- 8 A. Gold, H.B. Bebb: Phys. Rev. Lett. 14, 60 (1964)
- 9 G.S. Voronov, N.B. Delone: JETP Lett. 1, 66 (1965)
- 10 S.L. Chin: Can. Journ. Phys. 48, 1314 (1970)
- 11 E.J. Woodbury, W.K. Ng: Proc. IRE 50, 2347 (1962)
- 12 M. Schubert, B. Wilhelmi: Einführung in die nichtlineare Optik, Teubner Leipzig (1971)
- 13 E. Garmire, F. Pandarese, C.H. Townes: Phys. Rev. Lett. 11, 160 (1963)
- 14 G. Placzek: E. Marx Handbuch d. Radiologie, Bd. VI, Teil II, S. 205 (Leipzig 1934)
- 15 M. Maier, W. Kaiser, J.A. Giordmaine: Phys. Rev. 177, 580 (1969)
- 16 H. Mennicke: Phys. Lett. 37A, 381 (1971)

- 17 S.S. Bhatnagar, E.J. Allin, H.L. Welsh: Can. Journ. Phys. 40, 9 (1962)
- 18 R. Sigel: Z. f. Naturforsch. 25a, 488 (1970)
- 19 G. Klipping: Kältetechnik 13, 250 (1961)
- 20 B. Edlen: Reports on Progress in Physics XXVI, 181 (1963)
- 21 H. Mennicke: Phys. Lett. 36A, 127 (1971)
- 22 T.E. Sharp: Atomic Data, Vol.2, 119 (1971)

Herrn Prof. Dr. H. Maecker danke ich für die Übernahme dieser Arbeit und dafür, dass er mir die Möglichkeit gab, an der Technischen Universität München zu promovieren. Herrn Prof. Dr. R. Wienecke und Herrn Dr. S. Witkowski bin ich für das Interesse, das sie dieser Arbeit entgegenbrachten sowie dafür, dass sie es mir ermöglichten, die Arbeit im Max-Planck-Institut für Plasma-physik durchzuführen, zu Dank verpflichtet.

Den Herren Dr. K. Büchl, Dr. P. Mulser und Dr. R. Sigel von unserem Institut sowie Herrn Dr. M. Maier von der TU München danke ich für mehrere nützliche Diskussionen und Ratschläge. Meinen besonderen Dank möchte ich Herrn H. Kolenda für seine sorgfältige Betreuung der Apparaturen sowie für seine umsichtige und zuverlässige Mitarbeit bei der Durchführung der Experimente aussprechen. Fräulein H. Brändlein möchte ich für die Herstellung der Abbildungen und Fräulein C. Wallner für die sorgfältige Niederschrift der Arbeit danken.