

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR PLASMAPHYSIK

GARCHING BEI MÜNCHEN

PHOTOCHEMISCHER JODLASER:

Kinetische Grundlagen
für den
Riesepulsbetrieb

K. Hohla

IPP IV/33

Dezember 1971

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.

December 1971 (in German)

ABSTRACT

This report discusses a gas laser which uses excited iodine atoms $5^2P_{1/2}$ as the active material. The goal of this investigation was to determine the potential of this laser for high power operation. A parameter of prime importance for the generation of giant pulses is the storage of energy in the amplifying medium. This is limited by two factors, uncontrolled oscillations and loss of inversion by chemical quenching deactivation.

Responsible for the first of these is the small linewidth of gaseous laser media. It is being demonstrated in this work that the effective linewidth can be broadened by inhomogeneous magnetic fields. The energy E_s that can be stored is related to the maximum magnetic field strength H assuming a constant field gradient along the laser axis according to

$$E_s = 10^{-3} H \left[\text{Joule/cm}^2 \right] .$$

The cross section for stimulated emission σ has been measured as a function of the CF_3I pressure and the field strength by small- and large-signal gain measurements.

Small-signal gain measurements have also been used to investigate the loss by collisions of excited iodine and, therefore, of the population inversion as a function of time. The deactivation rates found in this way show that no chemical limitations exist under the experimental conditions chosen for the storage of energy. The measurements also show the existence of a chemical pumping process in addition to the photolysis. This process is quite effective. Its origin has, however, not been analyzed yet.

The optical properties of this gas laser system permit very fast pumping rates. Accordingly this permits the use of gain switching for the generation of giant pulses. This technique has been successfully employed here.

PHOTOCHEMISCHER JODLASER:
KINETISCHE GRUNDLAGEN FÜR DEN RIESENPULSBETRIEB

A) EINLEITUNG	1
B) GRUNDLAGEN DER RIESENPULSERZEUGUNG	3
a) Theorie des Laser Oszillators	5
b) Anschwingen und Gleichgewichtswerte - Laserenergie	11
c) Energie im ersten Laserpuls - Trägheitslaser	15
d) Wirkungsweise eines Laserverstärkers ..	22
e) Energiespeicherung im Verstärker	26
f) Einfluss eines Magnetfeldes auf die Energiespeicherfähigkeit	28
C) DER JODLASER ALS CHEMISCHES SYSTEM	36
a) Photochemischer Primärprozess	37
b) Folgeprozesse	40
D) EXPERIMENTELLER AUFBAU	48
a) Untersuchungsmethode	49
b) Aufbau der Apparatur	51
E) EXPERIMENTELLE ERGEBNISSE	62
a) Oszillatormessungen	62
b) Verstärkungsexperiment	68
b1) Homogenität des Verstärkers	68
b2) Messung des Wirkungsquerschnittes für induzierte Emission in Abhän- gigkeit vom Druck	71
b3) Einfluss eines inhomogenen Magnet- feldes auf die Verstärkung	77
b4) Die Inversion als Funktion der Zeit	79
F) ZUSAMMENFASSUNG	88
Verzeichnis der verwendeten Symbole	93
Verzeichnis der Abbildungen	96
Literaturverzeichnis	98

A) EINLEITUNG

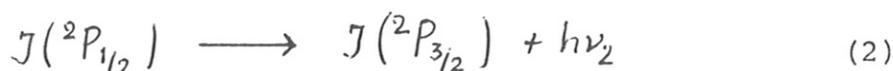
Die Schwierigkeiten bei dem Bau von Höchstleistungslasern mit Festkörpermaterialien führten in den letzten Jahren zur Suche nach geeigneten gasförmigen Lasersubstanzen. Gaslaser haben einige entscheidende Vorteile im Vergleich zu Festkörperlasern: grosse geometrische Dimensionen können relativ leicht erreicht werden und die Lasersubstanz kann schnell und ohne grosse Kosten ersetzt werden. Die optische Qualität ist unabhängig von der Grösse des Aufbaus, die Zerstörungsgrenze liegt um ein bis zwei Grössenordnungen über der in Festkörpern. Schliesslich können beugungsbegrenzte Strahlqualitäten ohne grosse Probleme erreicht werden. Auf der anderen Seite gibt es schwerwiegende Begrenzungen für Gaslaser: der grosse Wirkungsquerschnitt für induzierte Emission führt zu so hohen Verstärkungen bei geringen Inversionen, dass der Laser schon bei kleinen gespeicherten Energien zur Selbsterregung neigt. Weiterhin wirken sich Stossdeaktivierungen begrenzend aus.

Ein in den letzten Jahren diskutierter Laser mit einem Gas als aktivem Material ist der Jodlaser. Er wurde im Jahre 1964 von Kasper und Pimentel /1/ entdeckt und benützt Alkyljodide, meistens Trifluormethyljodid, zur Erzeugung von elektronisch angeregten Jodatomen.

In dem photochemischen Dissoziationsprozess des Trifluormethyljodids



entstehen die Radikale $CF_3\cdot$ und $J\cdot$, wobei das Jod in dem angeregten Zustand (${}^2P_{1/2}$) gebildet wird. Die Photolyse erfolgt durch Bestrahlung in der Absorptionsbande bei 2700 \AA ($h\nu_1 = 4,75 \text{ eV}$). Dem magnetischen Dipol-Übergang zum Grundzustand



entspricht ein Einstein-Koeffizient für spontane Emission $A = 8 \text{ sec}^{-1}$ (Lebensdauer $\tau_H = 130 \text{ msec}$); das hierbei emittierte Quant hat eine Energie von $0,95 \text{ eV}$ entsprechend einer Wellenlänge von 13150 \AA . Dieser elektronische Übergang wird in einer Resonatoranordnung stimuliert und führt zur Laserstrahlung.

Abbildung 1 zeigt in einem Schema die sich während und nach der Photolyse abspielenden Reaktionen.

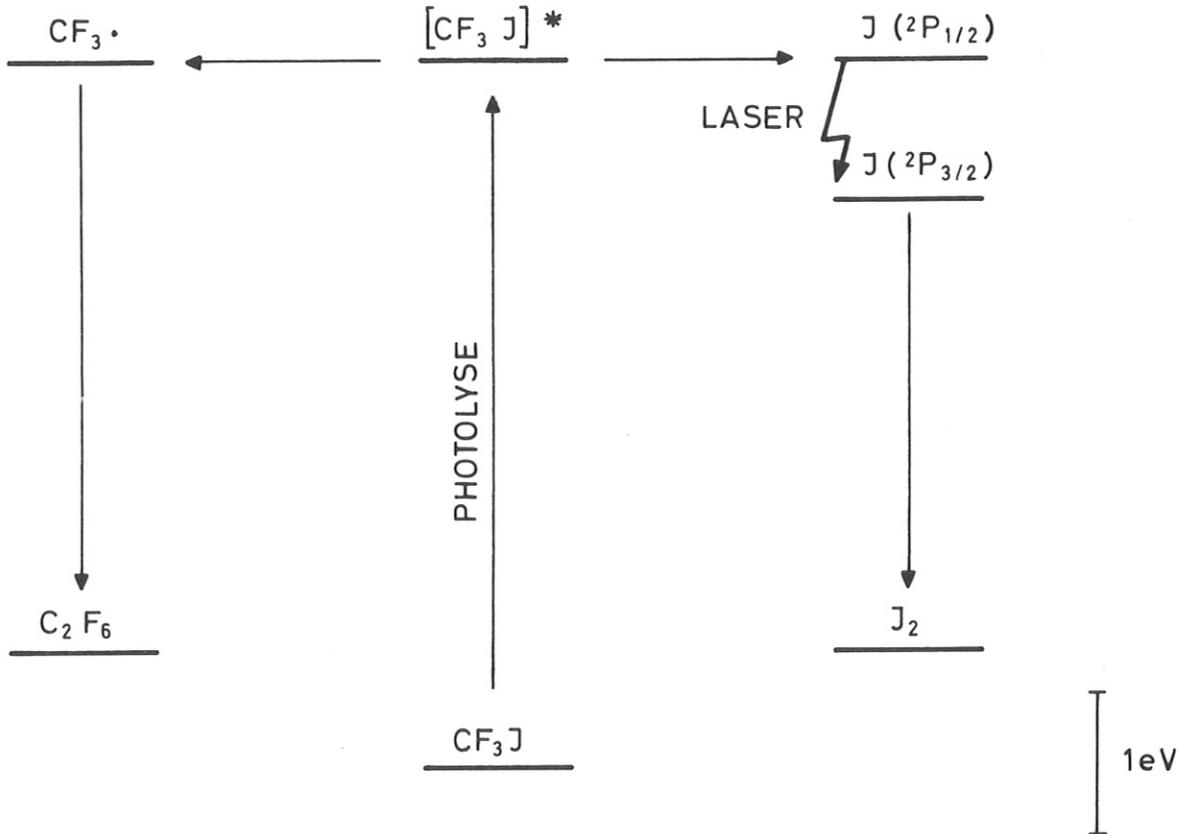


Abb. 1
Reaktionen im CF₃J-Photolyaselaser

Die in der Reaktion (1) erzeugten CF₃-Radikale können mit Jodatomen zu CF₃J rekombinieren oder zu Hexafluoräthan dimerisieren. Neben diesen beiden Reaktionen kommt es zu einer Folge von Desaktivierungsprozessen von angeregtem Jod (M = Stosspartner)



die die Laseremission stark beeinflussen.

Die breite Absorptionsbande (s. Kap. C) des Trifluormethyljodids bietet eine wirksame Pumpmöglichkeit des Lasers. So berichten De Maria

und Ultee /2/ im Jahre 1966 über Laserpulse im Millisekundenbereich von ~ 60 Joule. Die lange Lebensdauer der angeregten Jodatome sollte es zudem ermöglichen, die Strahlungsenergie zu speichern und durch Güteschaltung des Resonators in kurzer Zeit abzurufen. 1967 gelang es Ferrar /3/ durch Q-switch-Versuche mit Ultraschall-Schaltern Pulse von $2 - 10$ nsec zu erzielen, wobei Spitzenleistungen von 1 MW erreicht wurden. Eine Kombination beider Experimente sollte zu einem Gaslaser sehr hoher Leistung führen. Ein wesentliches Ziel dieser Arbeit ist es, die Voraussetzungen für den Riesenpulsbetrieb in diesem System zu untersuchen. Dabei sind zwei Fragestellungen von besonderer Bedeutung: 1. Die Messung des Wirkungsquerschnitts für induzierte Emission und 2. die Untersuchung der chemischen Desaktivierung von $J(^2P_{1/2})$.

Theoretische Analysen des Jodlasersystems wurden von Zaleskii und Venediktov 1969 /4/ sowie von O'Brien und Bowen (1969 und 1971) /5/ durchgeführt. Diese Überlegungen richten sich vor allem auf die Interpretation von Oszillatorexperimenten. Aus dem Vergleich der Lasersignale mit den Blitzlampenpulsen, die 100 μ sec und länger andauern, wird die Bedeutung der einzelnen Desaktivierungsprozesse diskutiert. Da ausser der Emissionscharakteristik selbst keine weitere Diagnostikmethode zur Verfügung stand, war unter den experimentellen Bedingungen eine Trennung der auf unterschiedlichen Zeitskalen ablaufenden chemischen Prozesse nur schwer möglich.

In der vorliegenden Arbeit wird versucht, die Zeitauflösung durch Verwendung sehr kurzer Anregungspulse ($1 - 5$ μ sec Dauer) zu verbessern. Die chemischen Prozesse werden durch Oszillator-Verstärker-Experimente untersucht. Zu verschiedenen Zeitpunkten nach dem Photo-lyseblitz wird mit Hilfe eines kurzen Oszillatorpulses (~ 100 nsec Dauer) die Inversion und damit die Konzentration an $J(^2P_{1/2})$ gemessen. Diese Technik liefert allgemein Aussagen über Energie-Übertragungsprozesse in Systemen mit Besetzungsinversionen.

B) GRUNDLAGEN DER RIESENPULSERZEUGUNG

Die Erzeugung von Riesenpulsen erfolgt im allgemeinen in zwei Stufen (Abb. 2); in der ersten Stufe, der Oszillatoreinheit, wird ein kurzer Lichtpuls erzeugt, dessen Dauer in der Grössenordnung von einigen

Nanosekunden liegt. Dieser Puls soll bereits die von dem Laser hinsichtlich Kohärenz und Winkeldivergenz geforderten Eigenschaften besitzen. Die Energie des Oszillatorpulses ist demgegenüber von geringerer Bedeutung, da deren Verstärkung die Aufgabe der zweiten Stufe ist. Die Verstärkereinheit soll vor allem die Energie vergrößern, ohne die anderen Eigenschaften des Laserpulses zu ändern.

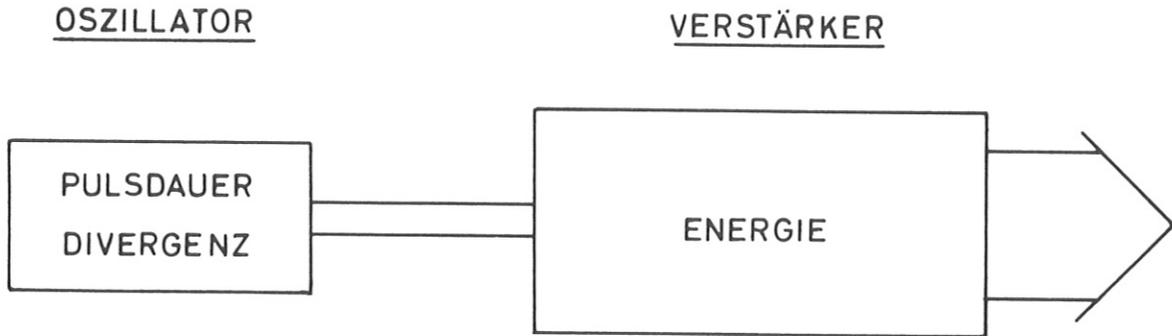


Abb. 2

Schema der Riesenpulserzeugung

Diese Technik der Riesenpulserzeugung beruht im wesentlichen auf dem Konzept der Energiespeicherfähigkeit des Lasermaterials. Die durch den Pumpprozess aufgenommene Energie muss so lange gespeichert werden können, bis sie durch Güteschaltung des Resonators in der Oszillatoreinheit bzw. durch den Oszillatorpuls in den Verstärkungsstufen abgerufen wird. Neben der Flächenbelastbarkeit des Materials, d.h. der Leistung pro Flächeneinheit bei der das Lasermaterial zerstört wird, ist die pro cm^2 speicherfähige Energie ein Mass für die Tauglichkeit eines Lasermaterials für den Riesenpulsbetrieb. Die in dieser Hinsicht bislang besten Lasersubstanzen sind Rubine und Neodymgläser, also Festkörper. Bei der Verwendung von Gasen treten gegenüber diesen Materialien besondere Schwierigkeiten auf, die sich zum einen aus der hohen Verstärkung schon bei geringen Inversionen, d.h. bei geringer gespeicherter Energie und zum anderen durch strahlungslose Verlustprozesse durch Stösse der angeregten Atome (bzw. Moleküle) ergeben. Die Materialbelastbarkeit in Gasen liegt als Folge der geringen Teilchendichte dagegen wesentlich höher als in Festkörpern. In diesem Abschnitt sollen die laserphysikalischen Grundlagen der Riesenpulser-

zeugung unter Berücksichtigung der Schwierigkeiten, die sich aus der hohen Verstärkung in Gasen ergeben, dargestellt werden.

a) Theorie des Laser-Oszillators

Betrachtet wird eine laserfähige Substanz, in der auf Grund eines Pumpmechanismus eine Inversion herrscht. Die Dichte der angeregten Teilchen wird mit n_1 , die der Teilchen im Grundzustand mit n_2 bezeichnet. In Abbildung 3 sind die möglichen Strahlungsübergänge zwischen zwei Niveaus angedeutet.

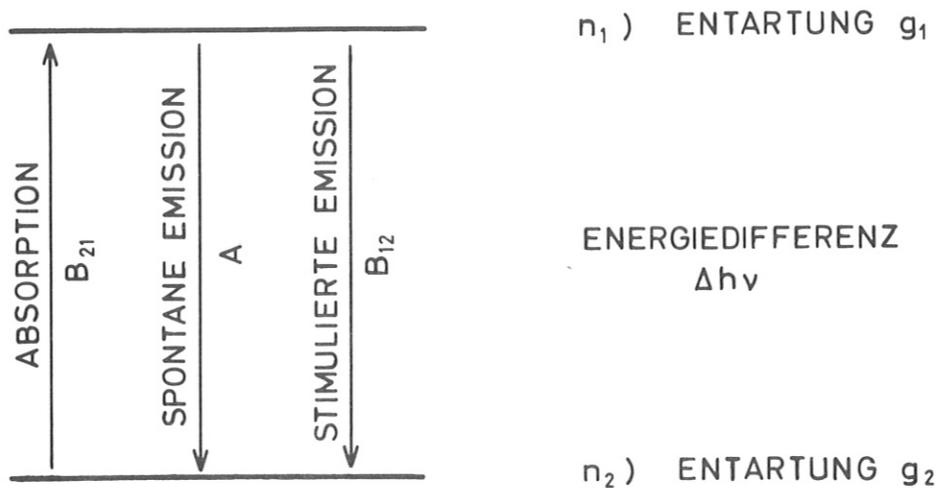


Abb. 3

Strahlungsübergänge zwischen zwei Niveaus

Im Fall des Jodatomlasers ist der angeregte Zustand der ($5^2P_{1/2}$) Zustand mit einem Entartungsgrad 2, der durch Spinumkehr in den Grundzustand ($5^2P_{3/2}$) übergeht, dessen Entartungsgrad 4 ist. Zwischen diesen Niveaus sind spontane Übergänge möglich (Halbwertsdauer $\tau_H = 130$ msec), zu denen unter dem Einfluss eines äusseren Strahlungsfeldes der Frequenz ν die Prozesse Absorption und stimulierte Emission treten.

Befindet sich die Lasersubstanz in einem Resonator (Abb. 4), so wird ein Teil der spontan emittierten Quanten so von den Spiegeln reflektiert, dass er in dem invertierten Material wiederholt ver-

stärkt wird. Überwiegt der Gewinn die Verluste im Resonator, so kommt es zum "Anschwingen des Lasers".

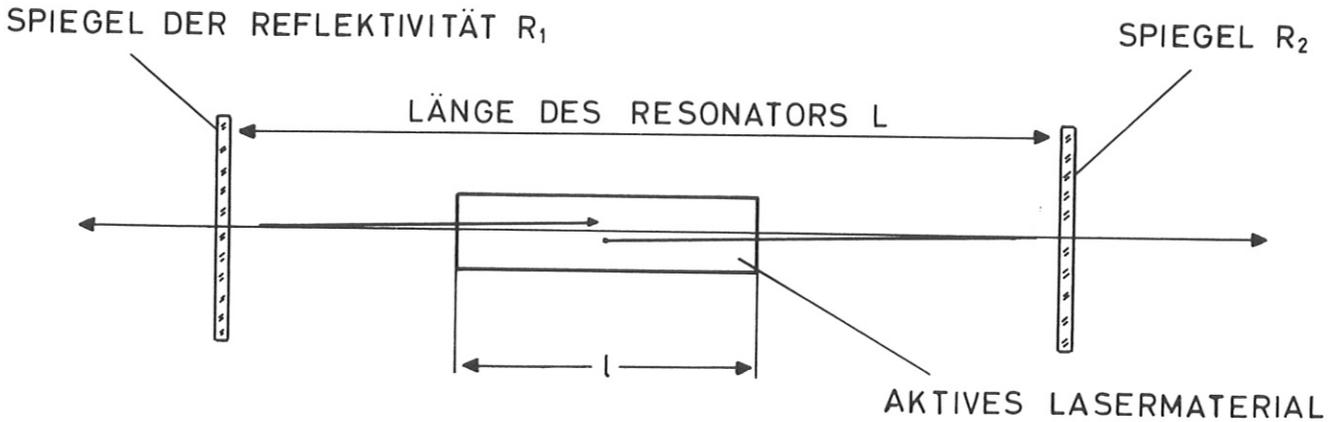


Abb. 4
Laseroszillator

Für die Zahl der Quanten Q pro Flächeneinheit im gesamten Resonator lässt sich folgende Gleichung aufstellen /6/:

$$\frac{dQ}{dt} = bAN_1' + B_{12} \frac{N_1'}{l} \frac{Q}{L} l - B_{21} \frac{N_2'}{l} \frac{Q}{L} l - \beta Q \quad (3)$$

Der erste Term bAN_1' beschreibt die Änderung der Quanten mit der Zeit infolge der spontanen Emission. N_1' ist die Gesamtzahl der angeregten Atome pro cm^2 , die die Frequenz ν des Laserübergangs aussenden können. b bezeichnet den Anteil der spontan emittierten Quanten, die in Richtung der Resonatorachse emittiert werden, A ist der Einstein-Koeffizient für spontane Emission.

Der zweite Term beschreibt die Änderung von Q durch die stimulierten Emissionsprozesse. Sie sind proportional der Dichte der Quanten $q = \frac{Q}{L}$ und der Dichte der angeregten Atome $n_1' = \frac{N_1'}{l}$. B_{12} , der Proportionalitätsfaktor, ist der Einstein-Koeffizient für induzierte Emission. Der dritte Term kennzeichnet analog die Absorptionsprozesse, während der vierte Term die Auskoppelverluste beschreibt.

B_{21} ist der Einstein-Koeffizient für Absorption. Zwischen B_{12} , B_{21} und A besteht folgender Zusammenhang:

$$g_1 B_{12} = g_2 B_{21}$$

g_i sind die Entartungsfaktoren der beiden Niveaus,

$$\frac{A}{B_{12}} = \frac{8\pi\nu^2}{c^3} \quad (c = \text{Lichtgeschwindigkeit}).$$

Mit diesen Beziehungen lässt sich Gleichung (3) umformen:

$$\frac{dQ}{dt} = bAN_1' + B_{12} \frac{Q}{L} \left(N_1' - \frac{g_1}{g_2} N_2' \right) - \beta Q \quad (4)$$

N_1' und N_2' sind die Teilchen, die mit der Laserfrequenz ν des Strahlungsfeldes wechselwirken können. Diese Teilchenzahlen lassen sich durch die Gesamtteilchenzahlen N_1 bzw. N_2 ausdrücken. Die Emissionslinie für den Übergang zwischen dem oberen Niveau 1 und dem unteren Niveau 2 ist im allgemeinen verbreitert (Doppler-, Druckverbreiterung, usw.). Die Linienbreite sei $\Delta\lambda$ entsprechend einer Energieunschärfe $h\Delta\nu$ (Abb. 5).

ν_0 FREQUENZ DES ÜBERGANGS
 $\Delta\nu_0$ HALBWERTSBREITE
 ν' FREQUENZ DES STRAHLUNGSFELDES

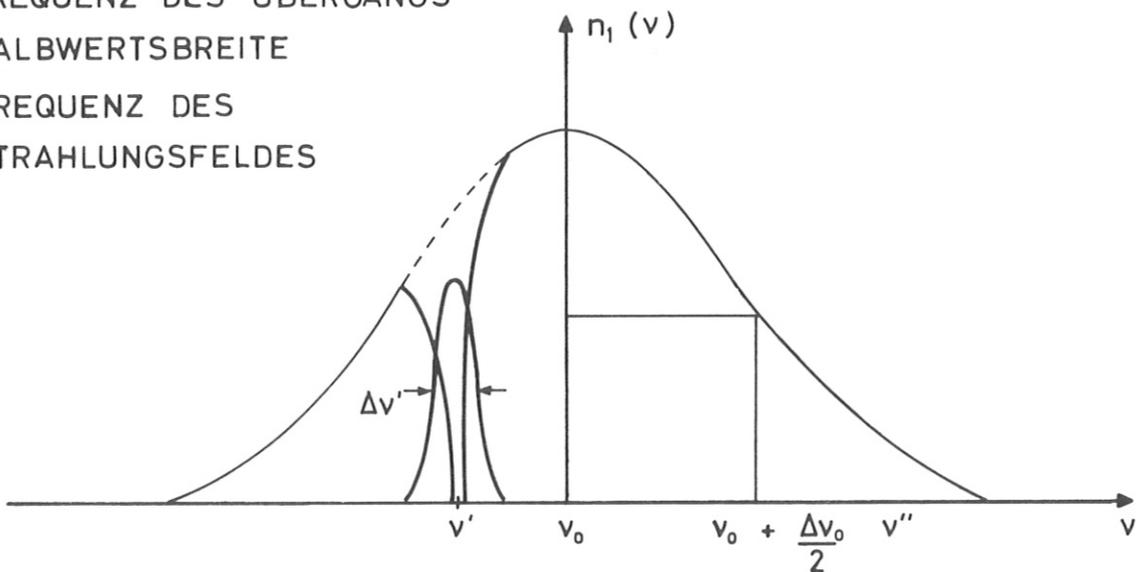


Abb. 5

Frequenzabhängigkeit der Teilchendichte

Die Teilchenzahl N_i' bei einer bestimmten Frequenz ν lässt sich dann durch einen Linienformfaktor $g(\nu)$, die Halbwertsbreite $\Delta\nu_0$ und durch die Gesamtteilchenzahl N_i darstellen:

$$N_i' = \frac{N_i}{\Delta\nu_0} g(\nu) \quad \text{mit} \quad \int_{-\infty}^{+\infty} N_i' d\nu = N_i \quad (5)$$

Der Formfaktor liegt in der Linienmitte bei Gauss- und Lorentzprofilen in der Größenordnung von 1,

$$g(\nu_0) \Big|_{\text{Gauss}} = 0.94$$

$$g(\nu_0) \Big|_{\text{Lorentz}} = 0.64$$

Das Frequenzspektrum des Strahlungsfeldes ν' ist im allgemeinen nicht beliebig scharf ($\Delta\nu'$), dies soll die gestrichelte Linie in Abb. 5 verdeutlichen. Je nach der Zeitdauer T , die ein Teilchen benötigt, das sich ausserhalb dieses Spektrums z.B. bei ν'' befindet, um in die "Wechselwirkungszone" $\Delta\nu'$ zu gelangen, unterscheidet man 2 Fälle:

- a) die homogene Linienverbreiterung $T \ll tq$
- b) die inhomogene Linienverbreiterung $T \gg tq$

tq bedeutet hierbei die Zeitspanne, während der das Strahlungsfeld herrscht. Bei der homogenen Verbreiterung ändert ein Teilchen seine Lage im Frequenzspektrum sehr rasch. Der Grund hierfür kann in Gitterrelaxationen (z.B. im Rubin) oder in einer hohen Stosszahl liegen (z.B. bei druckverbreiterten Gasen). Für die Laseremission bedeutet dies im Fall homogener Verbreiterung: Durch die stimulierte Emission wird im Bereich der Laserlinienbreite $\Delta\nu'$ die Teilchendichte herabgesetzt und sofort aus den Nachbargebieten wieder aufgefüllt. Dies vollzieht sich so lange, bis die gesamte Inversion ($N_1 - \frac{g_1}{g_2} N_2$) abgebaut ist. In diesem Fall kann Gleichung (5) direkt benützt werden.

Bei der inhomogenen Verbreiterung ist eine "Diffusion" der Teilchen zwischen den verschiedenen Spektralbereichen der Linie nur in grösseren Zeitdauern möglich. So kann z.B. eine zu geringe Stosszahl bei Gaslasern zur inhomogenen Verbreiterung führen. In Nd-Gläsern erfolgt die Verbreiterung durch verschieden starke lokale Felder, sie ist ebenfalls inhomogen. Diese Art der Verbreiterung hat zur Folge, dass nur die Teilchen zur Strahlungsfeldverstärkung beitragen können, die sich innerhalb von $\Delta\nu'$ befinden, die Gleichung für N_i (5) muss mo-

difiziert werden /6/. Die wirksame Inversion bei der Frequenz ν ist gegenüber dem Fall der homogenen Verbreiterung wesentlich kleiner (bei gleicher Anfangsinversion).

Ob homogene oder inhomogene Verbreiterung auftritt, hängt von der Pulslänge des Strahlungsfeldes ab. Im Falle des CF_3J -Lasers liegt entweder Doppler- oder Druckverbreiterung vor. In beiden Fällen sind Stösse zwischen den Teilchen für die "Diffusionsgeschwindigkeit" innerhalb des Linienprofils verantwortlich. Die Zeit zwischen zwei Stössen eines Teilchens t_s lässt sich darstellen zu:

$$t_s = \frac{1}{n_0 \bar{v} \sigma_{kin}} \approx 2 \cdot 10^{-9} \text{ sec}$$

hier ist: n_0 die Gesamteilchendichte $\approx 3 \cdot 10^{18}$ für 100 Torr
 \bar{v} die mittlere Geschwindigkeit $\approx 2 \cdot 10^4$ cm/sec für 400 °K
 σ_{kin} der gaskinetische Stossquerschnitt $\approx 6 \cdot 10^{-15}$ cm² (Schätzung)

Der Wert für 100 Torr CF_3J von $2 \cdot 10^{-9}$ sec zeigt, dass man bei Pulsen mit $t_q \gg 15$ nsec sicher mit einer homogenen Verbreiterung rechnen darf /8/.

Führt man (5) in Gleichung (4) ein, so wird

$$\frac{dQ}{dt} = bA \frac{N_1}{\Delta\nu} g(\nu) + \sigma c \frac{Q}{L} \left(N_1 - \frac{g_1}{g_2} N_2 \right) - \beta Q \quad (6)$$

$\left(N_1 - \frac{g_1}{g_2} N_2 \right) = \Delta N$ ist die Inversion pro Flächeneinheit.

Die Grösse

$$\sigma = \frac{B_{12} g(\nu)}{c \Delta\nu} \quad (7)$$

hat die Dimension einer Fläche und wird als der Wirkungsquerschnitt für induzierte Emission bezeichnet.

Der Zuwachsrate der Quanten im Resonator durch spontane und induzierte Emission stehen die Auskoppel- und Streuverluste gegenüber, die durch den vierten Term in Gl. (4) beschrieben werden. Da sie immer einen festen Bruchteil der Quanten umfassen, gilt:

$$\left. \frac{dQ}{dt} \right|_{\text{Verlust}} = -\beta Q \Rightarrow Q = Q_0 e^{-\beta t} \quad (8)$$

$\tau_c = 1/\beta$ ist die Lebensdauer der Quanten im Resonator. τ_c lässt sich durch die Spiegelreflektivitäten R_1 und R_2 sowie durch die Transmission T des aktiven Materials beschreiben:

$$\tau_c = \frac{2L}{c \ln(1/T^2 R_1 R_2)} \quad (9)$$

Falls die Lichtgeschwindigkeit im aktiven Material von der in Luft verschieden ist, muss diese Beziehung geringfügig geändert werden. Der häufig verwendete Begriff der Güte \tilde{Q} /7/ eines Resonators ist mit τ_c verknüpft durch $\tilde{Q} = 2\pi \nu \tau_c$.

Für eine vollständige Beschreibung der Quantenzahl im Resonator muss die Änderung der Teilchenzahlen N_1 und N_2 durch die Strahlungsprozesse berücksichtigt werden. Wird mit P_i die Pumprate der Teilchen N_i durch einen äusseren Pumpprozess beschrieben, so gilt

$$\frac{dN_1}{dt} = +P_1 - \sigma c \frac{Q}{L} \Delta N - AN_1 \quad (10)$$

und

$$\frac{dN_2}{dt} = P_2 + \sigma c \frac{Q}{L} \Delta N + AN_1, \quad (11)$$

da jeder Zunahme der Quantenzahl eine entsprechende Abnahme in der Teilchenzahl N_1 entspricht. Die Pumpraten P_1 und P_2 sind im Falle des CF_3J -Lasers nicht nur Funktionen der Blitzlampenintensität, sondern auch der chemischen Folgereaktionen der Photolyseprodukte. Eine genauere Diskussion dieser Reaktionen erfolgt in Kapitel C.

Die Gleichungen (6), (10) und (11) beschreiben das Verhalten des Lasers nur für den Fall einer räumlich konstanten Quantendichte. Die Grössen q , n_1 und n_2 hängen nicht vom Ort, jedoch von der Zeit ab. Daher war auch der Übergang von den Dichten zu den Teilchenzahlen auf die eben beschriebene Art möglich. Während die Bedingung einer konstanten Inversion über die gesamte Laserlänge im Experiment meistens vorliegt, setzt eine räumlich konstante Quantendichte q voraus, dass die sich im Resonator ausbildenden Schwingungsformen, die sogenannten Moden, das aktive Material gleichmässig erfassen, sodass keine lokalen Schwankungen auftreten. Bei nur einem anschwingenden

Mod müssten die Intensitätsunterschiede in den Schwingungsbäuchen und -knoten sowie die Diffusion der angeregten Teilchen zwischen diesen Bereichen berücksichtigt werden.

Der Frequenzabstand zweier axialer Moden $\Delta \nu_{aM}$ bestimmt sich aus der Bedingung, dass die Feldstärke des Strahlungsfeldes auf der Spiegelfläche Null wird:

$$\Delta \nu_{aM} = \frac{c}{2L}$$

Bei Resonatorlängen von 10^2 cm wird

$$\Delta \nu_{aM} = 1,5 \cdot 10^8 \text{ Hz}$$

Für den Übergang des angeregten Jods in den Grundzustand wurde in /9/ ein Wert von

$$\Delta \nu \gg 12 \cdot 10^8 \text{ Hz}$$

bei einem Druck von 20 Torr des umgebenden C_3F_7J -Gases angegeben. Das bedeutet, dass innerhalb der Frequenzbreite des Übergangs mehr als 7 axiale Moden anschwingen können. In den weiteren Überlegungen wird daher davon ausgegangen, dass die anschwingenden Moden eine konstante Quantendichte im invertierten Material besitzen und obiges Gleichungssystem das Verhalten des Lasers mit genügender Genauigkeit beschreibt.

b) Anschwingen und Gleichgewichtswerte - Laserenergie

Der oben beschriebene Prozess des Anschwingens des Lasers setzt ein, sobald die Inversion den Schwellwert erreicht, bei dem der Gewinn bei doppeltem Resonatordurchgang gerade die Verluste kompensiert. Diese Schwellinversion berechnet sich aus der Bedingung, dass die Quantenzahl im Resonator von diesem Zeitpunkt an nicht mehr abnimmt sondern anwächst. Es gilt daher beim Erreichen der Schwelle $\frac{dQ}{dt} = 0$

Mit Hilfe von (6) erhält man unter Vernachlässigung der spontanen Emission für die Schwellinversion:

$$\Delta N / \text{Schwelle} = \frac{\ln(R_1 R_2 T^2)^{-1}}{2\sigma} \left[\frac{1}{\text{cm}^2} \right] \quad (12)$$

Berücksichtigt man, dass die Verstärkung V eines Photons bei einmaligem Durchgang $V = \exp(\Delta N \cdot \sigma)$ ist, so ergibt sich hieraus die bekannte Anschlagbedingung von Schawlow und Townes.

$$R_1 R_2 T^2 V^2 = 1 \quad (13)$$

Setzt man konstante Pumpraten voraus, so kommt es nach Erreichen der Schwellinversion zu einem starken Anstieg der Quantenzahl Q . Die Inversion wird als Folge der induzierten Prozesse abgebaut und kann unter geeigneten Verhältnissen unter die Schwellinversion sinken. Weiteres Pumpen führt zu einer Wiederholung dieses Vorgangs. Allerdings setzt der Anschlagprozess, da die Quanten eine endliche Lebensdauer im Resonator besitzen, früher ein und die Inversion erreicht nicht mehr den alten Wert. Es kommt zu einer gedämpften Schwingung der Inversion. Nach einer gewissen Zeit wird unter der Voraussetzung konstanter Pumpraten ein konstanter Wert erreicht, der Laser ist eingeschwingen. Da auch in diesem Zustand $\frac{dQ}{dt} = 0$ wird, bedeutet dies, dass die Schwellinversion gleich der Inversion im eingeschwingenen Zustand ist. In Abbildung 6 ist dieser Verlauf am Beispiel des Jodlasers dargestellt.

Die gesamte Pumprate lässt sich in 2 Teile aufspalten, von denen der eine zur Aufrechterhaltung der Schwellinversion dient, während der andere direkt in Laserleistung umgesetzt wird. Für die Laserstrahlung steht nur der über die Schwelle hinausragende Teil der Inversion zur Verfügung. Ist durch die verschiedenen Pumpprozesse in dem Lasermaterial eine maximal erzielbare Inversion ΔN_{\max} vorgegeben, so trägt hiervon nur der Teil ΔN_{Nutz} zur Laserstrahlung bei.

$$\Delta N_{\text{Nutz}} = \Delta N_{\max} - \Delta N_{\text{Schwelle}}$$

Die erzielbare maximale Energie ist daher:

$$E = \frac{1}{1 + \frac{g_1}{g_2}} h\nu \left(\Delta N_{\max} - \frac{\ln(R_1 R_2 T^2)^{-1}}{2\sigma} \right) \quad (14)$$

Trägt man E als Funktion von $R_1 R_2 T^2$ auf, so erhält man für verschiedene Lasermaterialien die in Abbildung 7 dargestellte Kurvenschar,

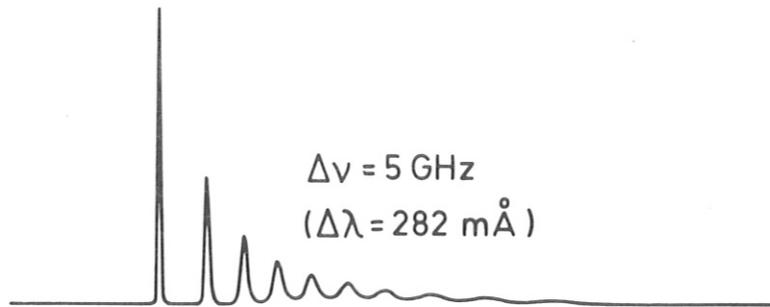


Bild 1

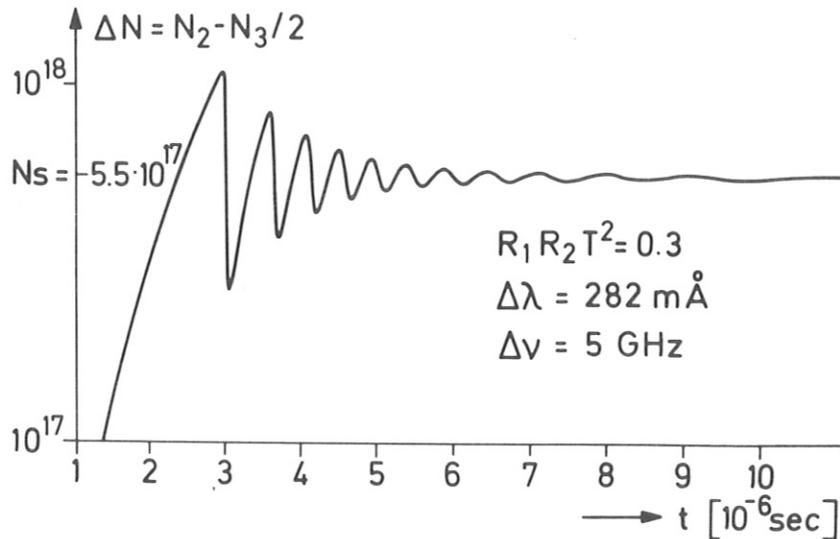


Bild 2

Abb. 6

Berechneter Verlauf der Quantendichte (Bild 1) und der Inversion (Bild 2) als Funktion der Zeit

Die Bilanzgleichungen wurden für die Werte des Jodlasers numerisch gelöst. Die Linienbreite des Übergangs wurde mit $\Delta\nu = 5 \cdot 10^9 \text{ Hz}$ angenommen. Der Resonatorparameter $R_1 R_2 T^2$ soll einen Wert von 0.3 besitzen. Die chemischen Prozesse (Kap. C) sind nicht berücksichtigt. Bild 1 zeigt die Abhängigkeit der Quantendichte von der Zeit in relativen Einheiten. Im Bild 2 ist die zugehörige Inversion angegeben. Nach Erreichen der Schwelle N_s schwingt die Inversion gedämpft um N_s und bleibt ab ca. 10^{-5} sec konstant bei N_s stehen.

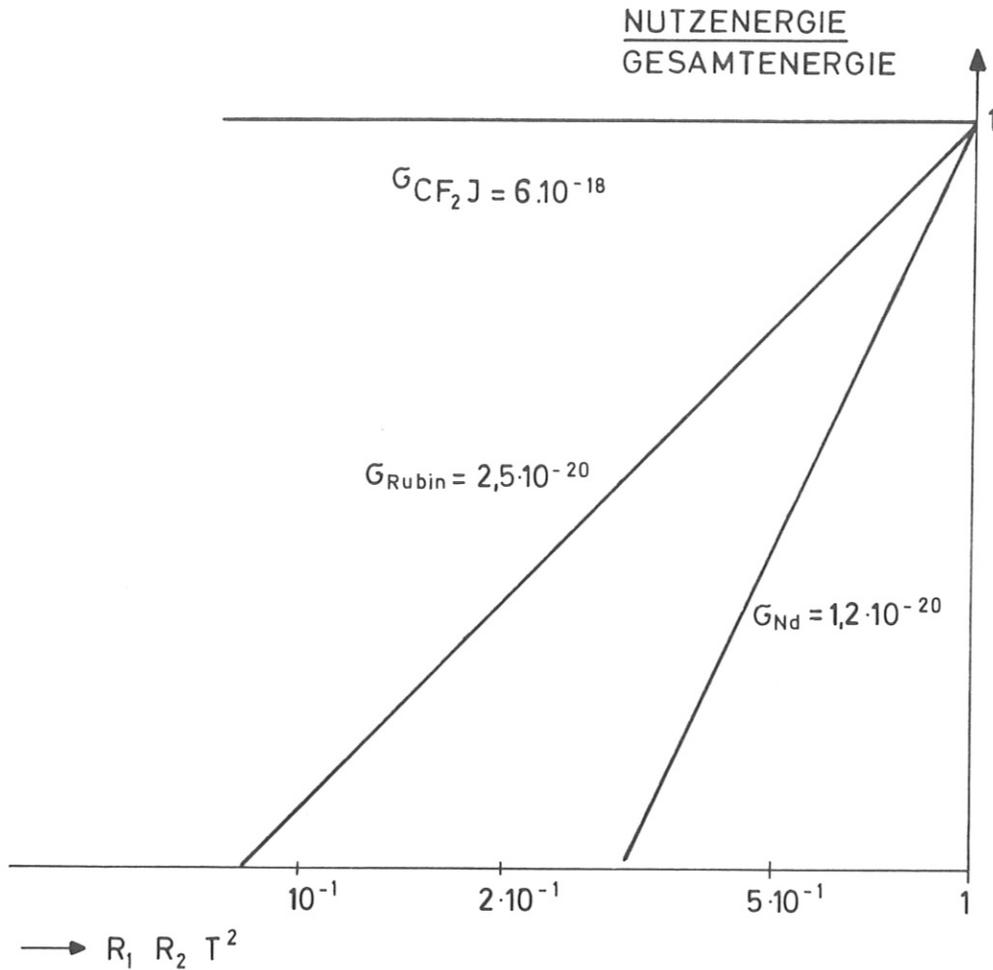


Abb. 7

Nutzenergie eines Oszillators als Funktion der Reflektivität und Transmission

Für eine Gesamtinversion von $\Delta N = 5 \cdot 10^{19}$ Teilchen cm^{-2} wurde E nach Gl. (14) als Funktion von $R_1 R_2 T^2$ berechnet. Das Verhältnis der maximal erzielbaren Strahlungsenergie, der Nutzenergie, zur gesamten gespeicherten Energie hänge in dieser logarithmischen Darstellung linear von $R_1 R_2 T^2$ ab. Die Steigung der Geraden ist proportional zu σ^{-1} . Bei einer angenommenen Gesamtinversion von $5 \cdot 10^{19}$ Teilchen cm^{-2} erreicht man die Schwelle für Rubin bei einer Reflektivität $R_1 R_2 T^2$ von $\sim 8 \cdot 10^{-2}$ bei Nd-Glas schon bei $3,5 \cdot 10^{-1}$. Beim Jodlaser ist die Nutzenergie dagegen nahezu unabhängig von den Resonatorparametern.

wobei der Wirkungsquerschnitt für induzierte Emission σ der Parameter ist. Man erkennt den geringen Einfluss der Verluste auf die Laserenergie bei grossem σ (also kleiner Linienbreite) im Fall des Jodlasers. Je kleiner σ ist, desto einschneidender werden Veränderungen in der Resonatorgüte; die Energie hängt stark von der Justiergenauigkeit ab, wie man beim Experimentieren mit Rubin- und Nd-Lasern beobachten kann.

c) Energie im ersten Laserpuls = "Trägheitslaser"

Für schnelle Pumpprozesse, d.h. hohen Pumpraten P_1 , wie man sie mit koaxialen Blitzlampen erreichen kann (vergl. Kap. D), wird der erste Laserpuls des Oszillators sehr intensiv. Die Entwicklung dieses ersten Pulses, sein zeitlicher Verlauf und seine Energie in Abhängigkeit von der Pumprate und den Laserparametern soll im folgenden untersucht werden.

Aus Gleichung (10) und (11) erhält man durch Subtraktion:

$$\frac{d}{dt} \left(N_1 - \frac{g_1}{g_2} N_2 \right) = \left(P_1 - \frac{g_1}{g_2} P_2 \right) - \left(1 + \frac{g_1}{g_2} \right) \sigma c \frac{Q}{L} \Delta N - \left(1 + \frac{g_1}{g_2} \right) A N_1$$

Die spontane Emission kann in den hier interessierenden Zeiten vernachlässigt werden. Setzt man weiterhin $(P_1 - \frac{g_1}{g_2} P_2) = P$, so erhält man

$$\frac{d \Delta N}{dt} = P - \left(1 + \frac{g_1}{g_2} \right) \sigma c \frac{Q}{L} \Delta N \quad (10a)$$

Für die Quantenzahl Q folgt aus (6)

$$\frac{d Q}{dt} = \sigma c \frac{Q}{L} \Delta N - \beta Q \quad (6a)$$

In der ersten Phase nach dem Erreichen der Schwelle ist Q noch so klein, dass man die stimulierten Prozesse vernachlässigen kann. Solange die Beziehung

$$P > \sigma c \frac{Q}{L} \Delta N$$

gilt, erhält man für eine konstante Pumprate P

$$\frac{d \Delta N}{dt} = P \quad \text{und} \quad \Delta N = P t + \Delta N_s$$

Für die Zunahme der Quantenzahl erhält man dann:

$$\frac{dG}{dt} = \sigma c \frac{Q}{L} (Pt + \Delta N_s) - \beta Q$$

mit $\beta = \frac{\sigma c \Delta N_s}{L}$ wird $\frac{dQ}{dt} = \sigma c \frac{Q}{L} P \cdot t$.

Hieraus ergibt sich für das Anwachsen der Quantenzahl Q nach Erreichen der Schwelle

$$Q = Q_0 \exp\left(\frac{\sigma c P}{2L} t^2\right) \quad (15)$$

Diese Abhängigkeit gilt bis zu dem Zeitpunkt $t = t_{\max}$, zu dem die Quantendichte einen Wert erreicht, bei dem die stimulierten Prozesse die Zunahme durch die Pumprate ausgleichen:

$$P = \frac{\sigma c Q_0}{L} \exp\left(\frac{\sigma c P}{2L} t_{\max}^2\right) (P \cdot t_{\max} + \Delta N_s)$$

Daraus folgt $t_{\max}^2 = \frac{2L}{\sigma c P} \ln \frac{L \cdot P}{\sigma c Q_0 (P t_{\max} + \Delta N_s)}$

Um einen möglichst intensiven Puls zu erzielen, soll $P \cdot t_{\max} \gg \Delta N_s$ sein. Daraus ergibt sich

$$t_{\max}^2 = \frac{2L}{\sigma c P} \ln \frac{L}{\sigma c Q_0 t_{\max}}$$

Q_0 ist die Zahl der Quanten, die sich beim Erreichen der Schwelle in dem gewünschten Mod im Resonator aufhalten. Für eine rohe Abschätzung wird für Q_0 die Zahl der Quanten gewählt, die während der Resonatorverweilzeit τ_c durch spontane Emission bei der Schwellinversion emittiert werden.

$$Q_0 = b A \cdot N_{1s} \cdot \tau_c$$

Mit der Annahme, dass das Niveau N_2 nicht besetzt wird, d.h. $P_2 = 0$ ist, wird $N_{1s} = \Delta N_s$. Für eine anschwingende Mode erhält man unter Berücksichtigung von Gl. (9) und (12) $Q_0 = 1$.

Beim Jodlaser liegen ~ 10 axiale Moden innerhalb der Bandbreite des Übergangs, damit wird $Q_0 \approx 10$. Um t_{\max} abzuschätzen, wird das Argument

des Logarithmus für die im Experiment gefundenen Werte bestimmt (für experimentelle Einzelheiten vergl. Kap. E).

Mit

$$\begin{aligned} t_{\max} &= 10^{-6} \text{ sec} \\ L &= 2 \cdot 10^2 \text{ cm} \\ \sigma &= 10^{-18} \text{ cm}^2 \end{aligned} \quad \text{erhält man}$$

$$\ln \frac{L}{\sigma c \bar{Q}_0 t_{\max}} = \ln \frac{2 \cdot 10^2}{10^{-18} \cdot 3 \cdot 10^{10} \cdot 10 \cdot 10^{-6}} \approx \ln 10^{15} \approx 35$$

Man erhält dann

$$t_{\max} = \sqrt{\frac{2L}{\sigma c P} 35} \approx 8 \sqrt{\frac{L}{\sigma c P}} \quad (16)$$

Die zu diesem Zeitpunkt erreichte Inversion beträgt:

$$\Delta N_{\max} = \Delta N_S + 8 \sqrt{\frac{P \cdot L}{\sigma c}}$$

Mit $\Delta N_S = \frac{\ln(1/R_1 R_2 T^2)}{2\sigma}$ erhält man

$$\Delta N_{\max} = \frac{\ln(1/R_1 R_2 T^2)}{2\sigma} + 8 \sqrt{\frac{P L}{\sigma c}} = \Delta N_S + \Delta N_T \quad (17)$$

Der zweite Term beschreibt die Steigerung der Inversion über die Schwelle hinaus als Folge der "Trägheit" des Systems. Die im invertierten Material erzeugten Quanten werden über die ganze Resonatorlänge verteilt und tragen daher nur entsprechend dieser Verdünnung zu den stimulierten Prozessen bei.

Die Bedeutung dieses zweiten Terms ergibt sich aus seinem Verhältnis zur Schwellinversion. Die unterschiedliche Wahl dieser Schwellinversion bei Oszillator- und Verstärkereinheiten führt zu verschiedenen Fragestellungen.

Bei Verstärkeranordnungen wird die Schwelle so hoch wie möglich gelegt. Dies erreicht man durch Vermeidung reflektierender Flächen. Der Trägheitsterm wird dann einen merklichen Einfluss haben, wenn die durch ihn erzielte Inversionssteigerung mindestens gleich der Schwellinversion ist:

$$g \sqrt{\frac{PL}{\sigma c}} = \frac{h\nu (1/R_1 R_2 T^2)}{2\sigma}$$

$$PL = \frac{4 \cdot 10^{-3} c h\nu^2 (1/R_1 R_2 T^2)}{\sigma}$$

Für ein Zahlenbeispiel wird $R_1 R_2 T^2 \approx 10^{-6}$ und $\sigma = 10^{-18}$ (Abb. 7) gewählt.

Dann erhält man für P·L einen Wert von:

$$PL = 2,2 \cdot 10^{28}$$

Bei Pumpraten von 10^{+25} Teilchen·cm⁻², wie sie experimentell ohne allzu grossen Aufwand erzielt werden können, erfordert diese Bedingung Verstärkerlängen von 22 m. Die damit erzielte Inversion beträgt $\sim 2,2$ Joule/cm² (bei einer angenommenen Quantenenergie von ~ 1 eV). Der Aufwand zur Steigerung der Inversion um den Faktor 2 ist also unverhältnismässig hoch, hohe Pumpraten und lange Verstärkeranordnungen sind experimentell nur schwer zu beherrschen. Wählt man Laser-substanzen mit noch geringerem Wirkungsquerschnitt σ so erhält man z.B. für Rubin und Nd-Glas Längen > 100 m. Dieses Prinzip ist daher nur für solche Substanzen anwendbar, die hohe Wirkungsquerschnitte und damit sehr niedrige Schwellinversionen haben.

In Oszillatoreinheiten wird demgegenüber die Schwelle niedrig gehalten, um gemäss Gl. (14) eine hohe Nutzenergie zu erzielen. Zudem soll der erste sich entwickelnde Oszillatorpuls in kurzer Zeit abgegeben werden, um eine möglichst hohe Leistung zu bekommen. Die Halbwertsdauer dieses Pulses lässt sich abschätzen /10/, wenn der Laserpuls in so kurzen Zeiten emittiert wird, dass die Pumprate während der Pulsdauer vernachlässigt werden kann. Aus Gl. (6a) und (10a) erhält man dann:

$$\frac{d \Delta N}{dt} = \left(1 + \frac{g_1}{g_2}\right) \sigma c \frac{Q}{L} \Delta N$$

$$\frac{dQ}{dt} = \sigma c \frac{Q}{L} \Delta N - \beta Q$$

Diese Gleichungen liefern für Q folgende Beziehung:

$$Q(t) - Q(0) = \Delta N_s h\nu \frac{\Delta N(t)}{\Delta N(0)} - \Delta N(t) + \Delta N(0)$$

($Q(0)$ = Quantenzahl für $t = 0$, $\Delta N(0)$ = Inversion für $t = 0$)
 Endet der Pumpprozess mit dem Laserpuls, so wird $Q(t \rightarrow \infty) = 0$, da zu-
 dem $Q(0) \ll \Delta N(0) - \Delta N(\infty)$ ist, erhält man folgende Beziehung zwischen
 Anfangs- und Endinversion bei der Entwicklung des ersten Pulses

$$\Delta N(0) - \Delta N(\infty) = \Delta N_s \ln \frac{\Delta N(0)}{\Delta N(\infty)} \quad (18)$$

In Abb. 8 ist $\Delta N(\infty)/\Delta N(0)$ als Funktion von $\Delta N(0)/\Delta N_s$ aufgetragen.

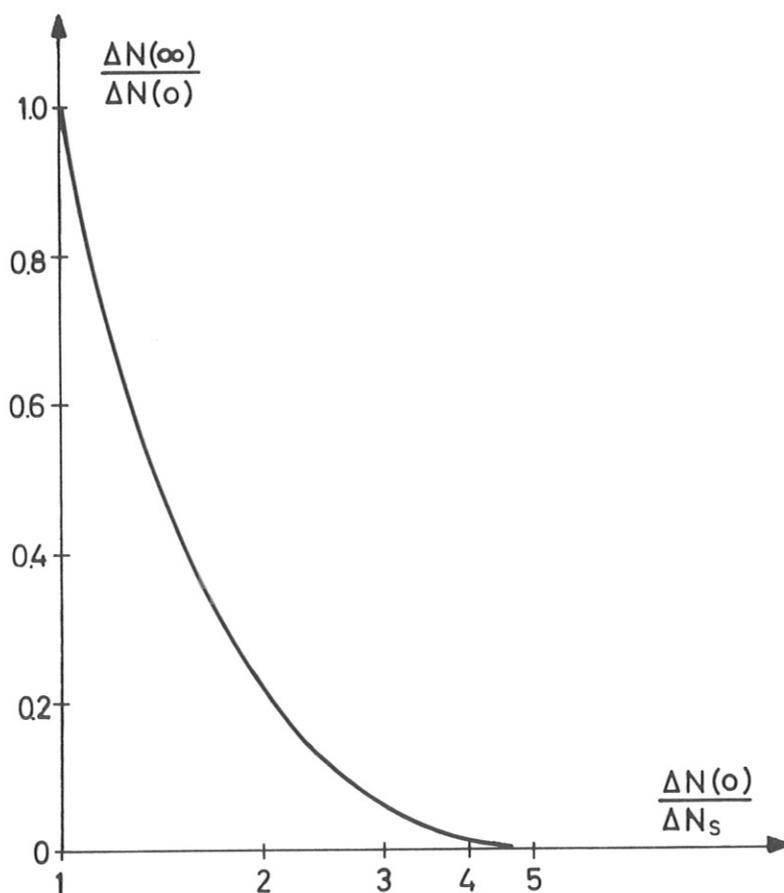


Abb. 8

Beziehung zwischen Endinversion und Anfangsinversion
 bei der Riesenpulserzeugung

Für die Halbwertsdauer des Pulses t_H lässt sich genähert folgende
 Darstellung angeben /6/:

$$t_H = 2.5 \tau_c \left(\frac{\Delta N(o)}{\Delta N_S} - \ln \frac{\Delta N(o)}{\Delta N_S} - 1 \right)^{-1/2} \quad (19)$$

Wird vom ersten Oszillatorpuls gefordert, dass in ihm die gesamte Pumpenergie erscheint, so muss gelten:

1. $\Delta N(\infty) \ll \Delta N(o)$
2. $t_p = t_s + t_{\max}$

t_p ist hierbei die Zeitdauer des Pumpprozesses und t_s die Zeitdauer bis zum Erreichen der Schwellinversion. Punkt 2 bedeutet, dass im Maximum der Inversion der Pumpprozess gerade aufhört. Aus diesen Bedingungen folgen Forderungen für die geometrische Dimensionierung des Resonators sowie für σ , den Wirkungsquerschnitt für induzierte Emission.

Aus Abb. 8 geht hervor, dass $\Delta N(o)$ dann sehr viel grösser als $\Delta N(\infty)$ ist, wenn

$$\frac{\Delta N(\infty)}{\Delta N_S} = 2.5 \quad \text{gilt.} \quad \frac{\Delta N_S + \Delta N_T}{\Delta N_S} = 2.5, \quad \frac{\Delta N_T}{\Delta N_S} = 1.5$$

mit Gleichung (17) erhält man dann:

$$\begin{aligned} \Delta N(o) = \Delta N_{\max} &= P t_p = \Delta N_S + 1.5 \Delta N_S \\ \Rightarrow \frac{\ln(RT^2)^{-1}}{2\sigma} &= \frac{P \cdot t_p}{2.5} \quad \text{bzw.} \quad \frac{\ln(RT^2)^{-1}}{\sigma} = 0.8 P \cdot t_p \end{aligned} \quad (20)$$

$(R = R_1 R_2)$

Eine Beziehung zwischen σ und der Länge L erhält man aus

$$\Delta N_T = 8 \sqrt{\frac{LP}{\sigma c}} = 1.5 \Delta N_S, \quad \Rightarrow \quad \frac{L}{\sigma} = 1.7 \cdot 10^8 P \cdot t_p^2 \quad (21)$$

Bei gegebener Pumprate und Pumpdauer ist also der Quotient $\frac{L}{\sigma}$ konstant. Je grösser σ ist, umso länger muss der Resonator sein. Anhand der Gleichung (20) erkennt man den Zusammenhang zwischen den Spiegelreflektivitäten und σ : Je kleiner σ ist, umso höher muss die Reflektivität sein. Ein Zahlenbeispiel soll das erläutern. Unter bestimmten Umständen (vergl. Kap. E) können im Experiment folgende Daten verwirklicht werden:

$$\begin{aligned}
 P &= 5 \cdot 10^{24} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1} \\
 t_p &= 2 \cdot 10^{-6} \text{ sec} \\
 \sigma &= 10^{-19} \text{ cm}^2
 \end{aligned}$$

Hieraus würden für L und $R_1 R_2$ folgende Werte folgen:

$$\begin{aligned}
 L &= 3,40 \cdot 10^2 \\
 R_1 R_2 &= 47 \%
 \end{aligned}$$

Damit wird eine Inversion von 10^{19} Teilchen $\cdot \text{cm}^{-2}$ erzeugt. Bei einem Wert von $\sigma = 10^{-18}$ müsste der Resonator schon 34 m lang werden, um die gleiche Inversion zu erreichen.

Die mittlere Leistung \bar{L} in dem ersten Puls erhält man mit Gleichung (19) ($\tau_c = L/\sigma c \Delta N_s$):

$$\bar{L} = \frac{\Delta N(o)}{\left(1 + \frac{g_1}{g_2}\right) t_H} = \frac{P t_p \sigma \Delta N_s}{2.5 \frac{L}{c} \left(1 + \frac{g_1}{g_2}\right)} \left(\frac{\Delta N(o)}{\Delta N_s} - \ln \frac{\Delta N(o)}{\Delta N_s} - 1 \right)^{1/2}$$

Führt man für L/c den Wert aus Gl. (21) ein und berücksichtigt, dass $\Delta N_s = P t_p / 2.5$ ist, so wird

$$\bar{L} = 2.4 \cdot 10^{-18} \cdot P \left[\frac{W}{\text{cm}^2} \right] \quad (22)$$

Für obigen Wert von $P = 5 \cdot 10^{24}$ ergibt das eine Leistung von $L = 12 \text{ MW}$ in einer Zeit von $t_H = 90 \text{ nsec}$.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass bei schnellen Anregungsmechanismen bei geeigneter Wahl der Resonatorgrößen und bei passendem Wirkungsquerschnitt für induzierte Emission die gesamte Energie in dem ersten Oszillatorpuls abgegeben werden kann. Die Leistung des Pulses ist direkt proportional zur Pumprate. Ein auf diesem Prinzip beruhender Oszillator hat den Vorteil, ohne Schaltelemente auszukommen. In Lasern mit Güteschaltern muss dagegen die Energie so lange gespeichert werden, bis durch ein Schaltelement (Drehspiegel, Pockels-, Kerrzelle, sättigbarer Absorber, usw.) die Güte des Resonators in kurzer Zeit stark erhöht wird. Als Folge sinkt die Schwellinversion ab und der Laser schwingt an. Da der Pumpprozess zum Zeitpunkt der Schaltung abgeschlossen ist, wird die Energie in einem Puls hoher Leistung abgegeben. Die zeitliche Entwicklung dieses Pulses kann analog mit dem

oben erläuterten Verfahren beschrieben werden / 6/. Da im Verlauf dieser Arbeit im wesentlichen mit Laserpulsen nach dem Trägheitsprinzip experimentiert wurde, wird auf eine Diskussion der eigentlichen Q-switch-Technik verzichtet.

d) Wirkungsweise eines Laserverstärkers

Die vom Oszillator erzeugten Pulse besitzen für die meisten Anwendungen eine zu geringe Energie. Deshalb wird dem Oszillator häufig eine Verstärkereinheit nachgeschaltet, die aus einer oder mehreren Verstärkerstufen besteht. Die in diesen Stufen gespeicherte Energie wird von dem Oszillatorpuls ganz oder teilweise abgerufen, wobei die Höhe der Verstärkung V von der Energie des Eingangspulses E_0 , der gespeicherten Inversion und vom Wirkungsquerschnitt σ abhängt /10/. Der Zusammenhang zwischen diesen Größen soll im folgenden dargestellt werden.

Betrachtet wird ein Lasermaterial der Länge l (Abb. 9) in dem eine durch einen Pumpprozess erzeugte Inversionsdichte ΔN herrscht. Unter der Annahme, dass nur das obere Niveau n_1 gepumpt wird, ist $\Delta n = n_1 = n$.

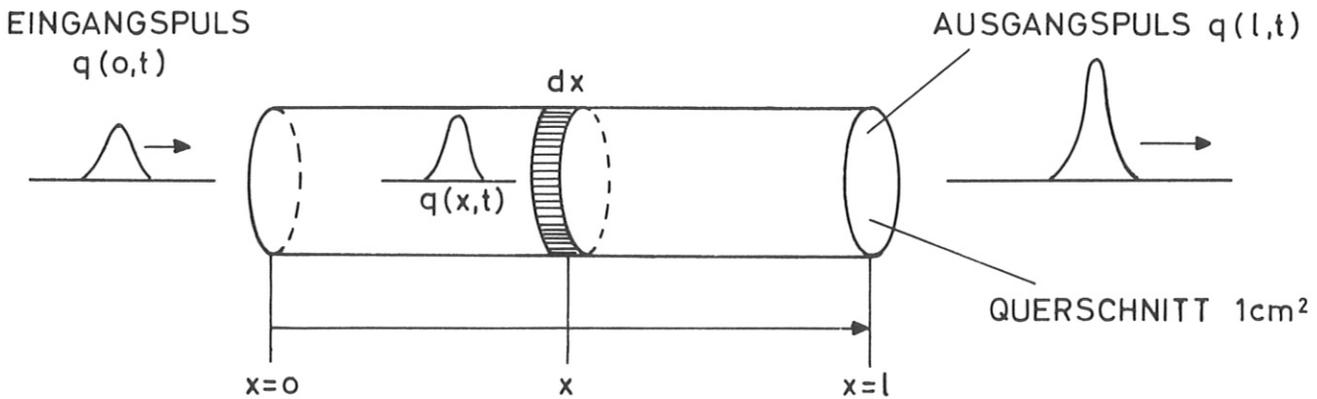


Abb. 9

Verstärkung in einem invertierten Material

Von links ($x = 0$) falle eine Lichtwelle der Quantendichte $q(0,t)$ ein. Für die Änderung von $q(x,t)$ durch die Verstärkung im Volumenelement $\Delta V = \Delta X$ gilt dann die Zeitabhängigkeit /11/

$$\frac{\partial q(x,t)}{\partial t} = -c \frac{\partial q(x,t)}{\partial x} + \sigma c q n - \alpha q \quad (23)$$

Der erste Term $c \frac{\partial q}{\partial t}$ beschreibt die Änderung in ΔV durch den Zufluss bzw. Abfluss der Photonen. Durch den zweiten Term wird der Zuwachs auf Grund der stimulierten Prozesse ausgedrückt und der letzte Term αq kennzeichnet die Verluste von q in ΔV infolge von Streuung oder Absorption. Dieser Verlustterm ist in gasförmigen Lasermaterialien gegenüber den stimulierten Prozessen sehr klein und kann vernachlässigt werden.

Die Änderung von $n(x,t)$ wird beschrieben durch

$$\frac{dn(x,t)}{dt} = -\sigma c b q n \quad \text{mit } b = 1 + \frac{g_1}{g_2} \quad (24)$$

Hierbei wird vorausgesetzt, dass der Pumpmechanismus bereits abgeschlossen ist und die spontanen Prozesse gegenüber den stimulierten vernachlässigt werden können.

Eliminiert man n in Gleichung (23) mit Hilfe von (24) so wird

$$\frac{\partial q(x,t)}{\partial t} + c \frac{\partial q(x,t)}{\partial x} + \frac{1}{b} \frac{dn(x,t)}{dt} = 0.$$

Integration dieser Gleichung nach der Zeit liefert unter Berücksichtigung von

$$e \int_0^{t_e} q dt = E(x) = \frac{\text{Gesamtquantenzahl}}{\text{cm}^2}$$

$$\text{und wegen } q(0) = q(t_e) = 0$$

$$\frac{dE(x)}{dx} + \frac{1}{b} (n(x, t_e) - n(x, 0)) = 0$$

t_e ist der Zeitpunkt an dem der Puls endet.

Integration der Gleichung (24) ergibt:

$$\int_{n(x,0)}^{n(x,t_e)} \frac{dn}{n} = -b\sigma \int_0^{t_e} q dt = -\frac{b\sigma}{c} E(x)$$

$$n(x, t_e) = n(x, 0) \exp\left(-\frac{b\sigma}{c} E(x)\right)$$

Das heisst, die Inversion an der Stelle x hängt nur von der an dieser Stelle vorbeigeflossenen Energie und nicht von der Leistung ab. Damit erhält man

$$\frac{dE(x)}{dt} + \frac{n(x, 0)}{b} \left(1 - e^{-b\sigma E(x)}\right) = 0$$

Diese Gleichung lässt sich integrieren:

$$E(l) = \frac{1}{b\sigma} \ln \left\{ 1 + \left(e^{b\sigma E(0)} - 1 \right) e^{\sigma n(0) l} \right\} \quad (25)$$

und für die Verstärkung V gilt:

$$V = \frac{1}{b\sigma E(0)} \ln \left\{ 1 + \left(e^{b\sigma E(0)} - 1 \right) e^{\sigma n(0) l} \right\} \quad (25')$$

Für verschieden starke Eingangssignale zeigt der Verstärker also ein unterschiedliches Verhalten /lo/. Im Kleinsignalbereich, d.h. für verschwindende Eingangsenergie gilt:

$$V_{\text{klein}} = \lim_{E(0) \rightarrow 0} V = e^{\sigma n(0) l} \quad ; \text{ die Verstärkung ist unabhängig von der Eingangsenergie.}$$

Diese Beziehung gilt, solange $b\sigma E(0) \ll 1$ und $b\sigma E(0) \cdot e^{\sigma n(0) l} \ll 1$ ist.

Dann kann nämlich der Logarithmus entwickelt werden:

$$\ln(1+x) = x - \frac{x^2}{2} + \frac{x^3}{3} \mp \dots$$

Das heisst, zwischen der Inversion $N = n(0) l$ und dem Eingangssignal muss die Beziehung

$$N \ll \frac{\ln(5 b \sigma E(0))^{-1}}{\sigma} \quad (26)$$

herrschen.

Im Grossignalbereich, der etwa gekennzeichnet wird durch

$$e^{b\sigma E(o)} \gg 5$$

erhält man:

$$V_{\text{gross}} = 1 + \frac{n(o)}{b E(o)} \ell \quad (27)$$

Und für die Ausgangsenergie $E(\ell)$ folgt

$$E(\ell) = E(o) + \frac{n(o)}{b} \ell \quad (28)$$

Im Grosssignalbereich wird also die gesamte gespeicherte Energie dem Verstärker entzogen. Die Verstärkung ist unabhängig von Wirkungsquerschnitt für induzierte Emission σ und proportional der Gesamtinversion. Die Differenz von Ausgangs- und Eingangssignal ist gleich der abrufbaren Energie.

Definiert man die Effektivität ϵ eines Verstärkers als das Verhältnis aus abgerufener zu abrufbar gespeicherter Energie, so wird:

$$\epsilon = \frac{E(\ell) - E(o)}{b n \ell} \quad (29)$$

Im Grosssignalbereich wird $\epsilon = 1$, die hierfür nötige Eingangsenergie, die Sättigungsenergie, ist:

$$E_s(o) = \frac{2}{b\sigma} \quad (30)$$

Das bedeutet, dass die Sättigungsenergie allein vom Wirkungsquerschnitt σ abhängt, also von der gespeicherten Energie unabhängig ist. Beim Bau von Oszillator-Verstärkeranordnungen sollte daher der Bündelquerschnitt immer so gewählt werden, dass die Sättigungsbedingung annähernd erfüllt wird. So beträgt sie (mit den σ -Werten von Abb. 7) für

Rubin: $E_s = 9,5 \text{ Joule/cm}^2$ und für

Neodymglas: $E_s = 27 \text{ Joule/cm}^2$, Bei Pulsen im Nanosekunden-

bereich erreicht man also schon Intensitäten, die zur Zerstörung des Lasermaterials führen.

Bei der bisherigen Betrachtung der Wirkungsweise eines Verstärkers wurde vor allem die Energieverstärkung untersucht. Es zeigt sich,

dass kleine Energien mehr verstärkt werden als grosse. Als Folge hiervon kommt es ausser im Kleinsignalbereich zu einer Änderung der Form des Pulses bei dem Verstärkungsprozess. Der Anfang eines Pulses wird mehr verstärkt also die nachfolgenden Teile, d. h. der Puls wird aufgesteilt. Eine genauere Diskussion dieses Phänomens wird in /10/ gegeben.

e) Energiespeicherung im Verstärker

Wie oben beschrieben, beruht das Konzept der Riesenpulserzeugung auf dem Prinzip der Energiespeicherfähigkeit. Die Verstärker müssen die Strahlungsenergie so lange speichern können, bis diese durch einen Oszillatorpuls abgerufen wird. Die Speicherfähigkeit wird in Gaslasern durch zwei Effekte begrenzt:

- a) durch strahlungslose Verlustprozesse, z.B. Desaktivierungsstösse oder chemische Reaktionen der angeregten Teilchen;
- b) durch Strahlungsprozesse, die zu unkontrollierten Laseroszillationen im Verstärker führen.

Der Punkt a) wird in Kapitel C) ausführlicher behandelt, während b) hier diskutiert werden soll.

Die Energie pro Flächeneinheit in einem Verstärker kann so lange erhöht werden, bis auf Grund der unvermeidbaren Reflexionen an begrenzenden Flächen oder Staubteilchen der Umgebung die Schwellinversion erreicht wird. Nach Gl. (12) ist sie gegeben durch

$$\Delta N_s = \frac{\ln(1/R_1 R_2 T^2)}{2 \sigma} \quad (12)$$

Nimmt man für $R_1 R_2 T^2$ einen experimentell noch erreichbaren Wert von 10^{-6} an, so erhält man für die speicherfähige Energie E_s :

$$E_s = \frac{7}{\sigma} h\nu \quad (31)$$

Je kleiner also σ ist, umso mehr Energie kann gespeichert werden. In der Tabelle 1 sind zum Vergleich die Werte für Rubin, Neodym-Glas und für den Jodlaser angegeben:

	Rubin	Nd-Glas	Jod (20 Torr)
ν Hz	$4,33 \cdot 10^{14}$	$2,84 \cdot 10^{14}$	$2,28 \cdot 10^{14}$
$h\nu$ eV	1,8	1,16	0,95
τ_H sec	$3 \cdot 10^{-3}$	$0,7 \cdot 10^{-3}$	$130 \cdot 10^{-3}$
$\Delta\nu$ Hz	$2 \cdot 10^{11}$	$2 \cdot 10^{13}$	$1,1 \cdot 10^9$
σ cm ²	$1,5 \cdot 10^{-20}$	$1,2 \cdot 10^{-20}$	$5 \cdot 10^{-18}$
E_S Joule/cm ²	80 Joule	160 Joule	0,21 Joule

Tabelle 1

Der Wert für Nd-Glas bedarf allerdings einer Korrektur, da die Linie inhomogen verbreitert ist. Es können zwar 160 Joule insgesamt gespeichert werden, die abrufbare Energie ist jedoch geringer, da die anschwingenden Moden nicht das gesamte Spektrum ausfüllen.

Der geringe Wert von E_S für den Jodlaser ist eine Folge der kleinen Linienbreite $\Delta\nu$. σ lässt sich nach Gl. (7) durch die Frequenz des Übergangs, die Lebensdauer und die Linienbreite ausdrücken ($g(\nu) \approx 1$):

$$\sigma = \frac{A c^2}{8\pi \nu^2 \Delta\nu} \quad (32)$$

Je kleiner $\Delta\nu$ ist, umso grösser wird σ . Die speicherfähige Energie ist proportional $\Delta\nu$

$$E_S \sim \Delta\nu$$

Da in Festkörpern die Linien prinzipiell um mehrere Grössenordnungen breiter sind als in Gasen (bei einigen 100 Torr Druck) bedeutet das, dass Gase nur schlecht für den Riesenpulsbetrieb geeignet sind. Die speicherfähige Energie pro Flächeneinheit ist gering. Der Weg über grosse Querschnitte der Verstärker führt sehr bald zu nicht realisierbaren Abmessungen.

Einen Ausweg aus diesen Schwierigkeiten bieten Verbreiterungsmechanismen, etwa mit Hilfe des Zeeman-Effekts [12], wie im nächsten Abschnitt genauer diskutiert wird.

f) Einfluss eines Magnetfeldes auf die Energiespeicherfähigkeit
Befindet sich ein Atom in einem Magnetfeld, so werden die Niveaus des Atoms, die ein magnetisches Dipolmoment besitzen, verschoben (Zeeman-Effekt, s.z.B./13/). Die Grösse dieses Effekts soll im folgenden am Beispiel des Laserübergangs im Jod diskutiert werden.

Der Laserübergang im Jod erfolgt zwischen den Niveaus $^2P_{1/2}$ und $^2P_{3/2}$. Die Gesamtdrehimpulsquantenzahl J ändert sich von $1/2$ auf $3/2$. Die Bahndrehimpulsquantenzahl ist l und der Spin hat den Wert $1/2$ entsprechend der Multiplizität von 2 . Setzt man LS-Kopplung (Russell-Saunders-Kopplung) der Drehimpulse voraus, so erhält man den Gesamtdrehimpuls \vec{J} aus der Vektoraddition des Gesamtspins \vec{S} und des Gesamtbahndrehimpulses L :

$$\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$$

Das bedeutet, dass der Laserübergang zwischen zwei Niveaus erfolgt, deren Energiedifferenz aus dem Umklappen des Spins (von antiparallel auf parallel) relativ zum Gesamtdrehimpuls gegeben ist. Die Einstellung von \vec{J} zu einer durch ein Magnetfeld H vorgegebenen Richtung wird durch die magnetische Quantenzahl m_J beschrieben. Die Einstellmöglichkeiten dürfen sich nur um ± 1 unterscheiden. Dementsprechend gibt es für $J = 1/2$ zwei Einstellmöglichkeiten $m_J = \pm 1/2$ und für $J = 3/2$ die vier Einstellmöglichkeiten $m_J = 3/2; 1/2; -1/2; -3/2$ (Abb. 10). Mit dem Bahndrehimpuls ist ein magnetisches Moment μ verbunden, das bei den verschiedenen Einstellmöglichkeiten von J zu H zu unterschiedlichen Energien der einzelnen m_J führt. Infolgedessen spaltet das Niveau $J = 1/2$ in zwei Niveaus und das Niveau $J = 3/2$ in vier Niveaus auf (Abb. 11).

Die Grösse der Aufspaltung richtet sich nach der Grösse von μ . Da sich J aus L und S zusammensetzt, gilt für μ :

$$\vec{\mu} = \vec{\mu}_L + \vec{\mu}_S$$

Mit $\mu_L = \sqrt{L(L+1)} \cdot \mu_B$ und $\mu_S = 2 \sqrt{S(S+1)} \mu_B$; (μ_B ist das Bohrsche Magneton) erhält man ein μ , das nicht parallel zu J liegt. Der Grund ist durch die magnetomechanische Anomalie des Spins gegeben, die durch den Faktor 2 für μ_S zum Ausdruck kommt (Abb. 12).

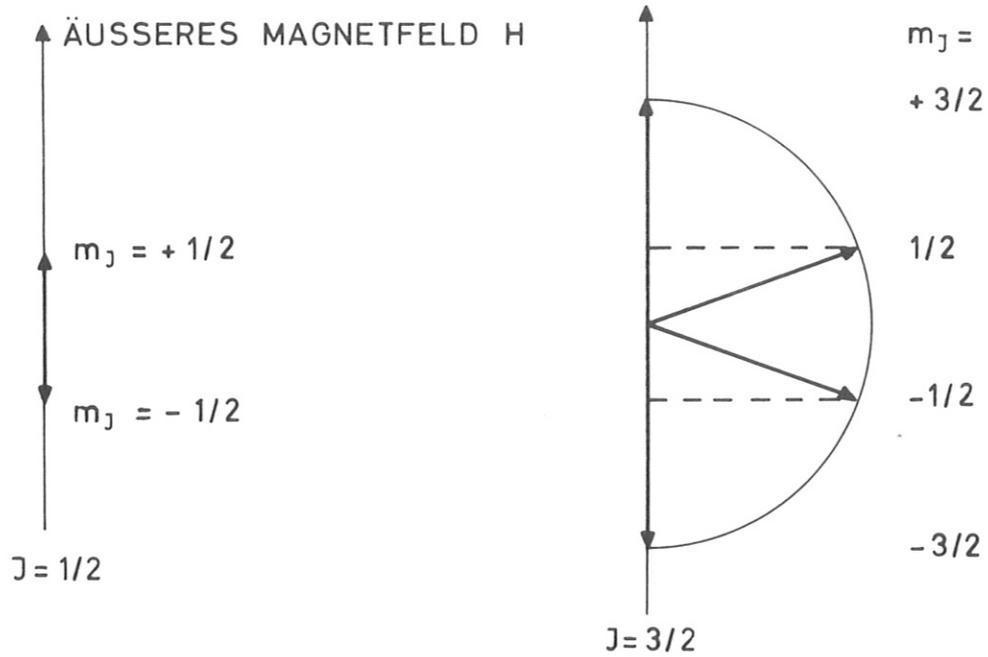


Abb. 10

Einstellmöglichkeiten von J zu einem äusseren Magnetfeld

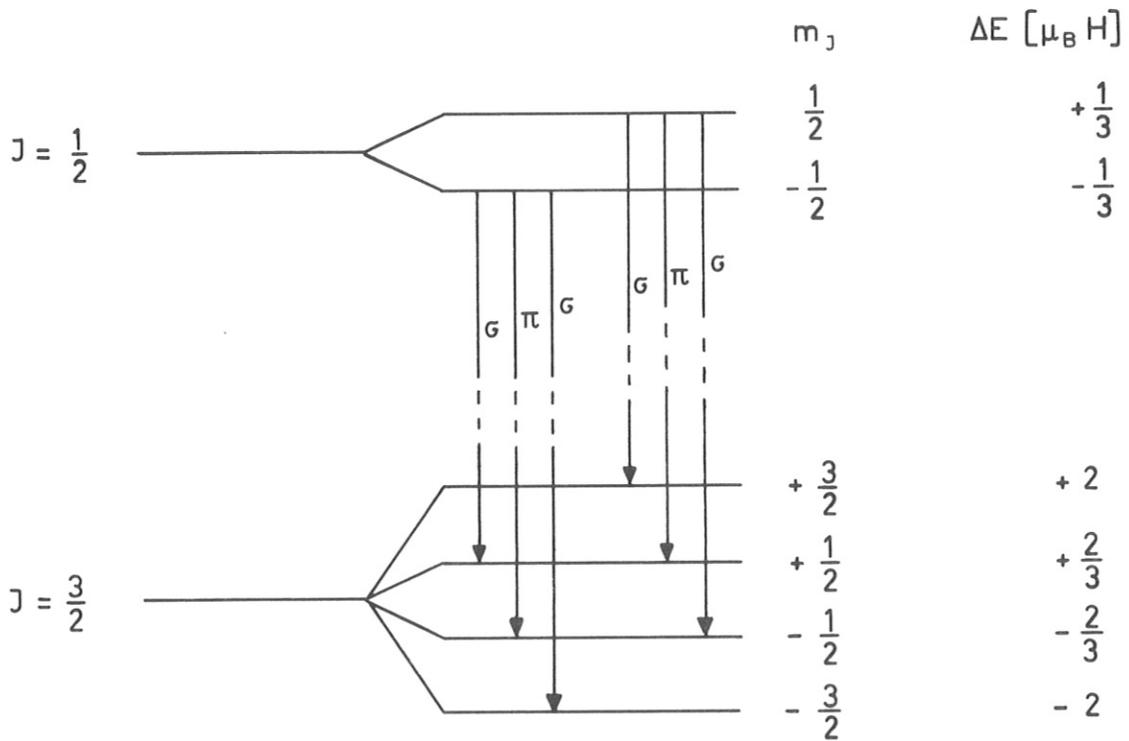


Abb. 11

Aufspaltung der Laserniveaus in einem Magnetfeld

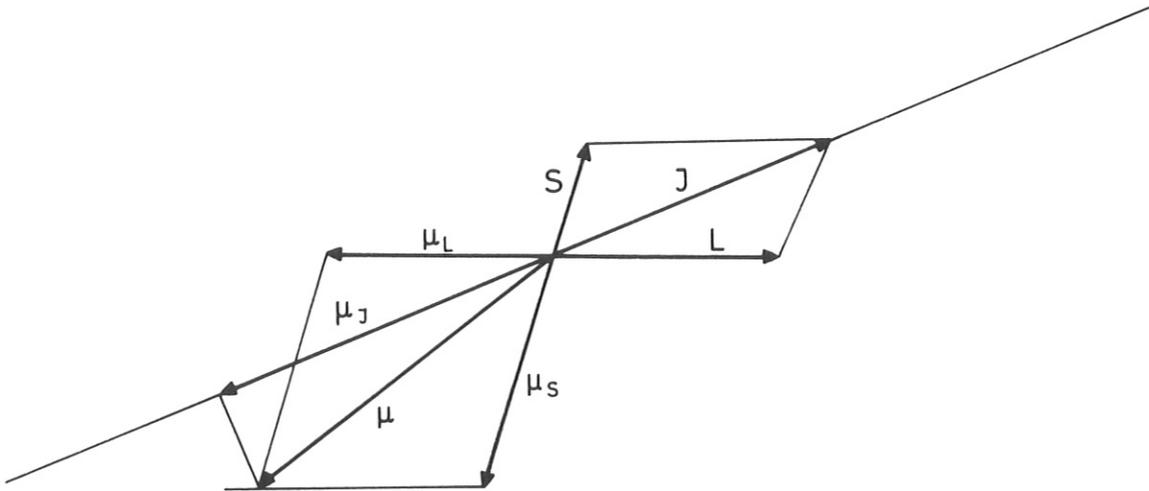


Abb. 12

Zusammensetzung des magnetischen Moments bei SL-Kopplung

μ präzediert um die Richtung von J . Im zeitlichen Mittel bleibt nur die Komponente μ_J von μ in Richtung von J wirksam:

$$\mu_J = g_J \sqrt{J(J+1)} \cdot \mu_B$$

Der Faktor g_J (Landé-Faktor) lässt sich mit Hilfe des Cosinussatzes aus Abb. 12 berechnen:

$$g_J = 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)}$$

Die Aufspaltung der Energieniveaus erfolgt durch die verschiedenen Einstellungen des Dipols in dem Magnetfeld; die Energiedifferenz für die magnetische Quantenzahl m_J beträgt:

$$\Delta E = g_J m_J \mu_B H \quad (33)$$

Die Aufspaltung ist symmetrisch zur Lage der Ausgangsenergie.

Für die Übergänge zwischen den möglichen aufgespaltenen Niveaus gilt die Auswahlregel:

$$\Delta m_J = \pm 1, 0$$

In Abb. 11 sind die erlaubten Übergänge eingezeichnet. Die Energiedifferenzen der Niveaus zum ursprünglichen Niveau sind in Einheiten von $(\mu_B H)$ in der rechten Spalte angegeben. (Der Landé-Faktor für das Niveau $^2P_{1/2}$ beträgt $2/3$, und für $^2P_{3/2}$ ist er $4/3$.) Diese unterschiedlichen Energiedifferenzen für das obere und untere Niveau führen zu einer Aufspaltung der Linie in sechs einzelne Linien, die symmetrisch zur unverschobenen Frequenz angeordnet sind. In Abb. 13 sind die einzelnen Zeemanlinien eingezeichnet, und zwar die linear polarisierten (mit π bezeichneten) nach oben und die zirkular polarisierten (mit σ bezeichneten) nach unten.

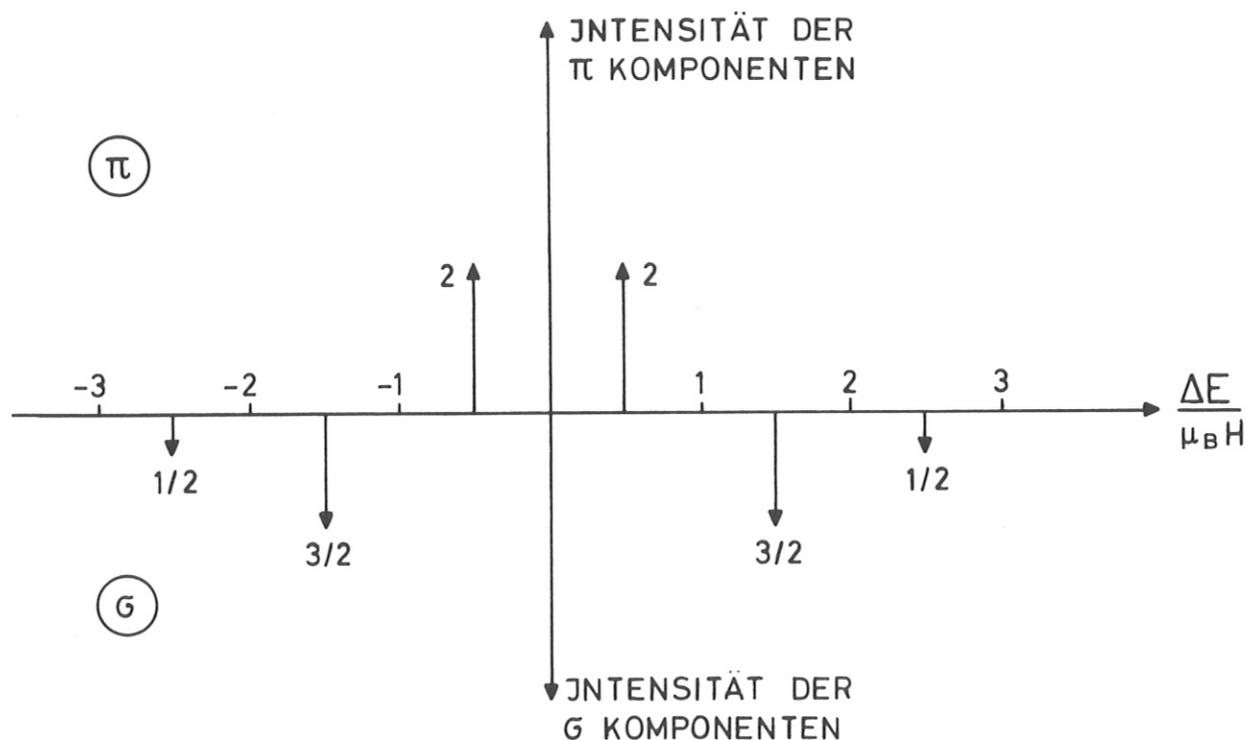


Abb. 13

Aufspaltung der Zentrallinie ($^2P_{1/2} \rightarrow ^2P_{3/2}$) in einem Magnetfeld

Dem Übergang $\Delta m = 0$ entspricht eine linear polarisierte Welle, die senkrecht zum Magnetfeld emittiert wird (π -Komponente). $\Delta m = \pm 1$ ergibt links- und rechtszirkular polarisiertes Licht, das in Richtung des Magnetfeldes emittiert wird (σ -Komponente). Die relativen Intensitäten der einzelnen Linien sind durch die Länge der Pfeile angedeutet /13/. Bildet die Beobachtungsrichtung den Winkel φ mit dem Magnetfeld, so müssen die entsprechenden Intensitäten mit $(1 + \cos^2 \varphi)$ für die σ -Komponenten und mit $\sin^2 \varphi$ für die π -Komponenten multipliziert werden /14/.

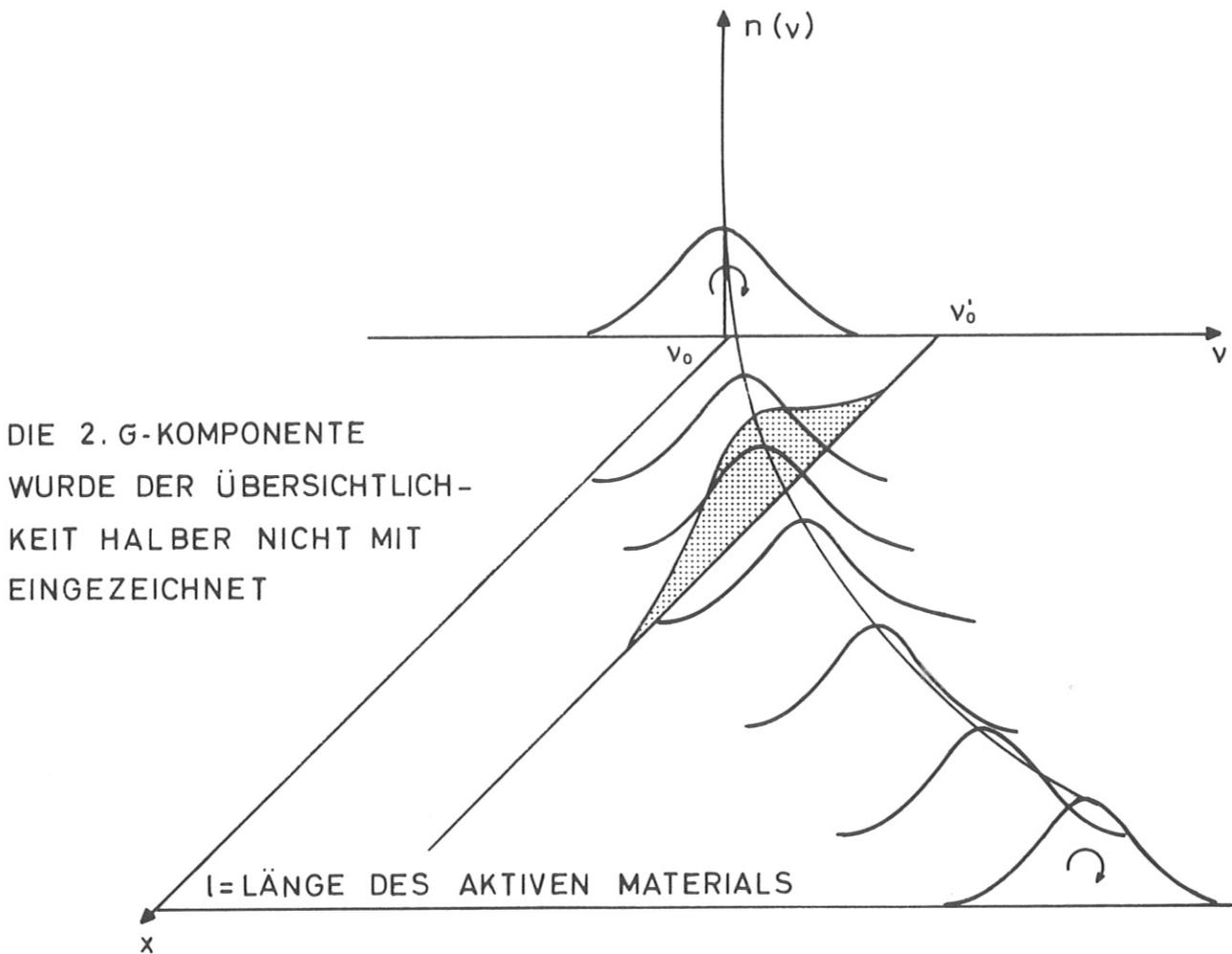


Abb. 15

In einem inhomogenen Magnetfeld wird die wirksame Inversion bei einer bestimmten Frequenz ν'_0 (schraffierte Fläche) weiter herabgesetzt (vergl. Abb. 14)

Für einen Ansatz zur Berechnung von $\Delta N(\nu)$ wird angenommen, dass das Magnetfeld in Richtung der Laserachse verläuft. Das bedeutet, dass linear polarisierte Zeeman-Komponenten nicht berücksichtigt werden müssen. Zur Vereinfachung wird in den weiteren Überlegungen N_2 gleich Null gesetzt. Dann wird $\Delta N = N_1 = N$.

Die ursprüngliche Verteilungsfunktion $n(\nu, \ell)$ wird gegeben durch

$$n(\nu, \ell) = n \cdot f(\nu) \quad (\text{unabhängig von } \ell)$$

mit

$$\int_0^{\infty} \int_0^L n(\nu, \ell) d\nu dL = N_{\text{gesamt}}$$

und

$$\int_0^{\infty} f(\nu_0) d\nu = 1 .$$

Für das Profil einer dopplerverbreiterten Linie gilt /6/

$$f_D(\nu, \nu_0) = \frac{2}{\Delta \nu_D} \frac{\ln 2}{\pi} \exp - \left(\frac{2(\nu - \nu_0)}{\Delta \nu_D} \ln 2 \right)^2 \quad (34)$$

$\Delta \nu_D = \text{Dopplerbreite}$

und für eine "Lorentzlinie" /6/

$$f_L(\nu, \nu_0) = \frac{2 \Delta \nu_L}{\pi} \frac{1}{2(\nu - \nu_0)^2 + \Delta \nu_L^2} \quad (35)$$

$\Delta \nu_L = \text{Lorentzhalbwidthsbreite}$

Die Verteilungsfunktion der Linie im Magnetfeld lässt sich dann (für eine σ -Komponente) folgendermassen beschreiben:

$$n(\nu, \ell) = \frac{n}{2} \left(\frac{3}{4} f_1(\nu, \nu_1) + \frac{1}{4} f_2(\nu, \nu_2) \right)$$

mit

$$\nu_1 = \nu_0 + \frac{3}{2} \mu_B H(\ell) ; \quad \nu_2 = \nu_0 + \frac{5}{2} \mu_B H(\ell)$$

Die Gesamtteilchenzahl bei der Frequenz ν erhält man durch Integration.

$$N(\nu) = \int_0^L n(\nu, \ell) d\ell =$$

$$= \frac{n}{2} \int_0^L \left(\frac{3}{4} f(\nu_0 + \frac{3}{2} \mu_B H(\ell)) + \left(\frac{1}{4} f(\nu_0 + \frac{5}{2} \mu_B H(\ell)) \right) \right) d\ell$$

Für die Auswertung des Integrals muss die Funktion $H(\ell)$ bekannt sein, zusätzlich muss man Annahmen über das Linienprofil der unverschobenen Linien machen. Eine Abschätzung für die Grössenordnung der benötigten maximalen Magnetfelder und für die benötigten Magnetfeldgradienten erhält man mit folgenden Vereinfachungen:

- a) Die Linienbreite wird durch ein Kastenprofil mit einer Breite von $\Delta \nu$ angenähert,
- b) das Magnetfeld H soll einen konstanten Gradienten besitzen.

$$H = \nabla H \cdot \ell ; \quad 0 \leq \ell \leq L$$

Die Funktionen f_1 und f_2 lassen sich dann folgendermassen beschreiben:

$$f_1 = \begin{cases} \frac{1}{\Delta\nu} & \text{für } \nu_0 + \frac{3}{2} \mu_B \nabla H \ell + \frac{\Delta\nu}{2} > \nu > \nu_0 + \frac{3}{2} \mu_B \nabla H \ell - \frac{\Delta\nu}{2} \\ 0 & \text{sonst} \end{cases}$$

$$f_2 = \begin{cases} \frac{1}{\Delta\nu} & \text{für } \nu_0 + \frac{5}{2} \mu_B \nabla H \ell + \frac{\Delta\nu}{2} > \nu > \nu_0 + \frac{5}{2} \mu_B \nabla H \ell - \frac{\Delta\nu}{2} \\ 0 & \text{sonst} \end{cases}$$

Die Integration der Gleichung für $N(\nu)$ liefert:

$$N(\nu) = 0,3 \frac{n(\nu_0) \Delta\nu}{\mu_B \nabla H}$$

Mit dem angenommenen Linienprofil ist $n(\nu_0) \Delta\nu$ aber gerade die gesamte Teilchendichte n , also gilt für die Inversion pro cm^2 im inhomogenen Magnetfeld bei einer bestimmten Frequenz ν :

$$N(\nu) = \frac{0,3 n}{\mu_B \nabla H} \quad (36)$$

Das bedeutet aber, dass $N(\nu)$ unabhängig von der Linienbreite $\Delta\nu$ des Übergangs ist. Voraussetzung hierfür ist, dass die Linie mindestens um den Betrag der Linienbreite $\Delta\nu$ verschoben wurde.

Ohne Magnetfeld gilt für die gesamte Inversion pro cm^2 bei der Frequenz ν :

$$N_0(\nu) = \frac{n}{\Delta\nu} \ell \quad (37)$$

Aus einem Vergleich von Gleichung (36) mit (37) lässt sich eine effektive Linienbreite $\Delta\nu_M$ im inhomogenen Magnetfeld definieren.

$$\Delta\nu_M = \frac{\mu_B \nabla H \ell}{0,3} = 5 \cdot 10^6 H \quad (38)$$

Damit ergibt sich ein effektiver Wirkungsquerschnitt für induzierte Emission im Magnetfeld zu

$$\sigma_{\epsilon H} = \frac{A c^2}{8\pi \nu^2 5 \cdot 10^6 H} = \frac{1,1 \cdot 10^{-15}}{H} \quad (39)$$

Bei einem Magnetfeld von $H = 10^3$ Gauss ist beim Jodlaser daher der Wert für σ und damit bei gegebener Inversion die Verstärkung $V = \exp \sigma N$ schon um den Faktor 5 gesunken ($\Delta\nu_{\text{Jod}} = 10^9$).

Die speicherfähige Energie, die den Ausgangspunkt der Diskussion darstellte, ist nach Gleichung (31) und (32) gegeben durch

$$E_s = \frac{7.8 \pi \nu^3 h}{A c^2} \Delta \nu$$

und in einem Magnetfeld mit konstantem Gradienten erhält man

$$E_s = \frac{7.8 \pi \nu^3 h}{A c^2} 5 \cdot 10^6 H$$

Setzt man die Werte für den Jodlaser ein, so wird

$$E_s \approx 10^{-3} H \left[\text{Joule} \cdot \text{cm}^{-2} \right] \quad (40)$$

Für die gesamte Teilchenzahl folgt

$$N_s \approx 6.5 \cdot 10^{15} H \left[\text{Teilchen} \cdot \text{cm}^{-2} \right] \quad (41)$$

Magnetfelder von 10^4 Gauss führen also bereits zu speicherfähigen Energien von $10 \text{ Joule} \cdot \text{cm}^{-2}$, während man mit den stärksten noch gut handhabbaren Feldern ($> 10^5$ Gauss) in den 100 Joule -Bereich pro cm^2 gelangen kann. Das bedeutet aber, dass der Jodlaser in Verbindung mit inhomogenen Magnetfeldern Werte für den Verstärkerbetrieb aufweisen sollte, wie sie sonst nur mit Festkörpermaterialien erreicht werden können.

C) DER JODLASER ALS CHEMISCHES SYSTEM

Die Energiespeicherfähigkeit ist, wie oben schon erwähnt, nicht nur durch die Strahlungsprozesse, die zu unkontrollierten Oszillationen führen, begrenzt. Die angeregten Atome erleiden während der Zeit, in der die Energie gespeichert werden muss, d.h. im wesentlichen während der Pumpdauer, Stöße mit den anderen Molekülen im Gas. Legt man eine Pumpdauer von $\sim 10^{-5}$ sec zugrunde, so erfolgen bei 100 Torr Druck etwa $3 \cdot 10^3$ Stöße, bei denen die elektronische Anregungsenergie verloren werden kann. Die Wahrscheinlichkeit für einen solchen Desaktivierungsstoß hängt von den Energiezuständen der Stosspartner ab und ist deshalb für die einzelnen Molekülsorten sehr verschieden /16/.

Neben diesen Desaktivierungsstößen sind Reaktionen der angeregten und nichtangeregten Atome für die Lasertätigkeit von Bedeutung. Um einen Überblick über die möglichen chemischen Reaktionen zu erhalten, soll als erstes der primäre Photolyseschnitt diskutiert werden.

a) Photochemischer Primärprozess

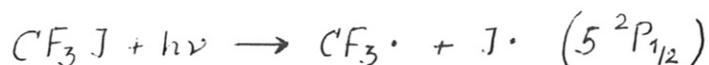
Die perfluorierten Alkyljodide, von denen das Trifluormethyljodid bislang am gründlichsten untersucht wurde, besitzen im Bereich von 2200 - 3100 Å eine Absorptionsbande. In Abb. 16 sind die Absorptionsspektren von CF₃J und i-C₃F₇J dargestellt /15,17/. Für CF₃J folgt aus diesem Spektrum ein maximaler Absorptionsquerschnitt α_{\max} bei 2660 Å von $5,5 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$. Die Breite des Absorptionsbereiches $\Delta\lambda_{abs}$ ist 330 Å. Die Werte für C₃F₇J sind zum Vergleich in Tab. 2 eingetragen:

	λ_{\max}	eV	$\Delta\lambda$	α_{\max}
CF ₃ J	2660 Å	4,65	330 Å	$5,5 \cdot 10^{-19}$
i-C ₃ F ₇ J	2730 Å	4,58	400 Å	$7 \cdot 10^{-19}$

Tab. 2

UV-Absorption von CF₃J und i-C₃F₇J

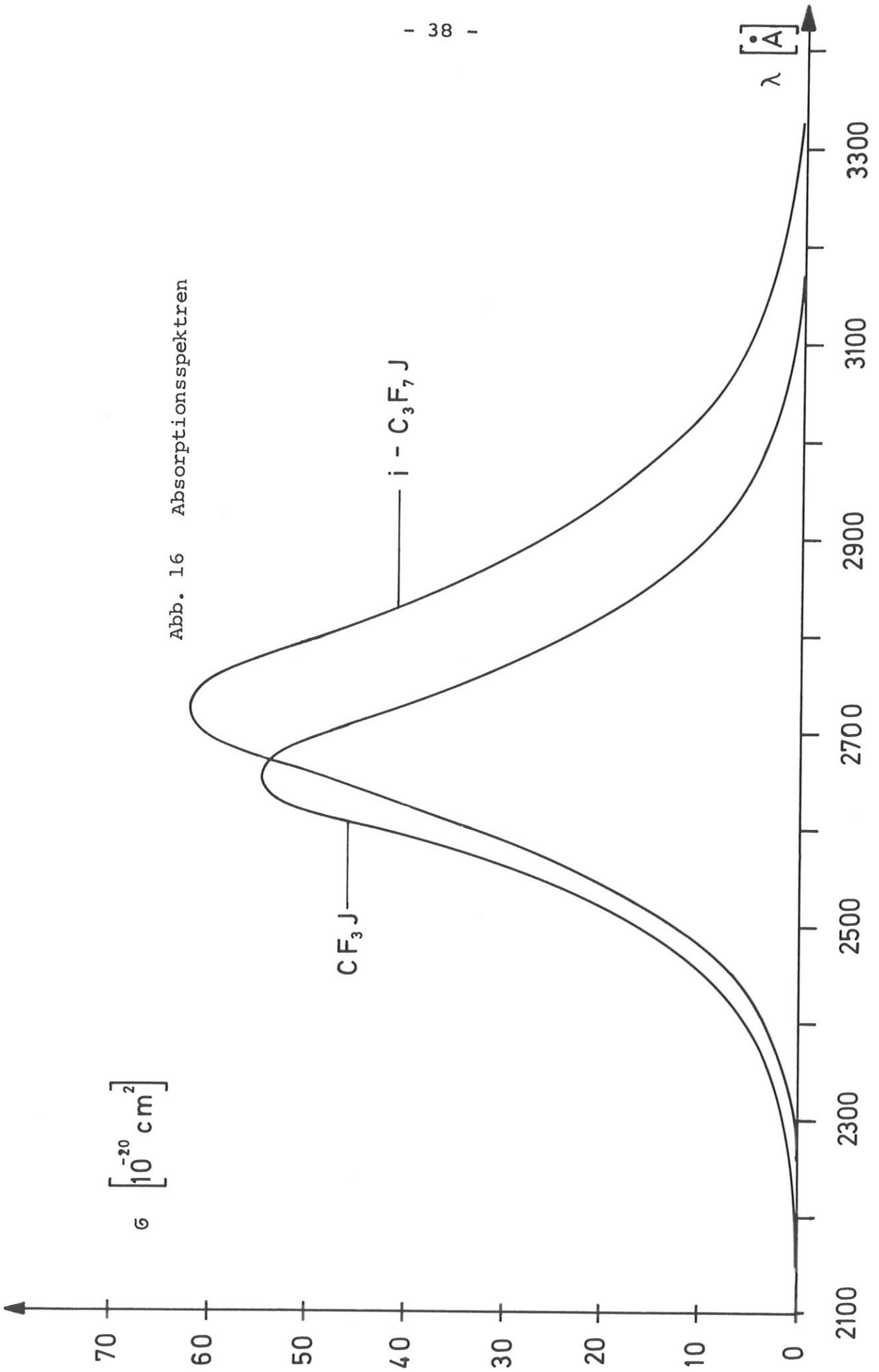
Bei der Absorption eines Photons in diesem Wellenlängenbereich wird die J - C Bindung aufgebrochen, wobei das gebildete Jodatom im elektronisch angeregten Zustand ($5^2P_{1/2}$) entsteht /19/:



Die Photolyserate, die angibt, wieviele Teilchen pro cm³ und sec gebildet werden, wird mit P₁(t) bezeichnet. Neben dem angeregten Jod entsteht ebenfalls Grundzustandsjod, allerdings mit einer wesentlich geringeren Wahrscheinlichkeit /19/. Für die weiteren Diskussionen wird daher die Bildung von J($^2P_{3/2}$) vernachlässigt.

Betrachtet man die umgesetzten Energien bei diesem Photolyseprozess, so werden $\Delta E = 2,46 \text{ eV}$ für den Aufbruch der C-J Bindung benötigt und 0,95 eV für die Anregung des Niveaus $^2P_{1/2}$ im Jod /18/. Die restlichen 1,45 eV erscheinen als Schwingungs- und Rotationsanregung oder als Translationsenergie der Bruchstücke und führen letztlich zu einer Erwärmung des gesamten Systems. Zur Aufheizung trägt aber auch die Reaktionswärme von Sekundärreaktionen bei, wobei vor allem die Bildung

Abb. 16 Absorptionsspektren



von Hexafluoräthan aus CF_3 -Radikalen betrachtet werden muss (siehe Abschnitt b). Die hierbei freiwerdende Energie ist 92 kcal/Mol oder 3,66 eV/Reaktion /20/.



Die Reaktionen des angeregten Jods verlaufen so langsam, dass die hierbei freiwerdende Energie bei der Energiebilanz während der Photolyse vernachlässigt werden kann. Die Pumpdauer beträgt $\sim 10^{-5}$ sec im Vergleich zu den erwarteten Zeiten von $10^{-4} - 10^{-3}$ sec für die Reaktionen des angeregten Jods (siehe Abschnitt b). Pro Photolyseprozess, der nach /20/ mit einer Quantenausbeute von $\phi_{\text{I}^*} \approx 0,7$ erfolgt, tragen daher ca. 1 eV zur Erwärmung des Systems bei. Da das bei der Pyrolyse entstehende Jod bevorzugt im Grundzustand gebildet wird, darf die Temperatur des Gases bei der Photolyse einen kritischen Wert T_{kr} nicht übersteigen. Eine eingehende Untersuchung der Temperatureffekte findet sich in /21/.

Eine Abschätzung der erlaubten Temperatursteigerung erhält man durch Anwendung des Massenwirkungsgesetzes auf das Dissoziationsgleichgewicht /22/ von CF_3J , wobei exotherme Folgereaktionen nicht berücksichtigt werden.

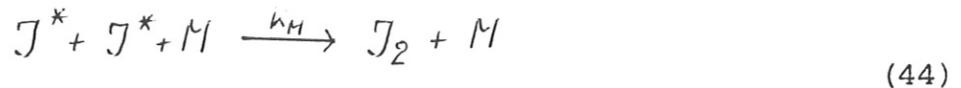
$$\frac{n_{\text{CF}_3} n_{\text{J}}}{n_{\text{CF}_3\text{J}}} = \frac{(2\pi kT)^{3/2}}{h^3} \left(\frac{m_{\text{CF}_3} m_{\text{J}}}{m_{\text{CF}_3\text{J}}} \right)^{3/2} \frac{Z_{\text{CF}_3} Z_{\text{J}}}{Z_{\text{CF}_3\text{J}}} e^{-\Delta E/kT} \quad (42)$$

m_i sind die Massen und Z_i die Zustandssummen der beteiligten Partner. Sieht man einen Dissoziationsgrad von 5 % als obere Grenze an, so folgt hieraus ein T_{kr} von 600 °K, wenn eine spezifische Wärme von 20 cal/Mol·K angenommen wird. Mit den obigen Werten bedeutet das, dass nicht mehr als (5 %) des Gases photolysiert werden darf. Höhere Pumpraten sind nur dann sinnvoll, wenn dem Gas ein "Wärmepuffer" (z.B. ein Inertgas wie Argon oder C_2F_6) zugesetzt wird.

Die Alkyljodide besitzen im Bereich unterhalb von 1800 Å weitere Absorptionsbanden. Als photochemische Primärprozesse bei der Einstrahlung in diese Banden sind die Eliminierungen von F, F_2 und FJ anzunehmen /23/. Da jedoch die Untersuchung des Blitzlampenspektrums (siehe Kapitel D) ergeben hat, dass in diesem Bereich nur ein sehr kleiner Teil der gesamten Lichtemission liegt, werden für die weitere Diskussion die Reaktionen dieser Atome und Moleküle nicht berücksichtigt.

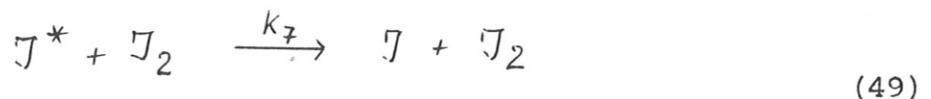
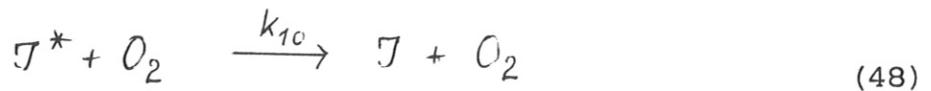
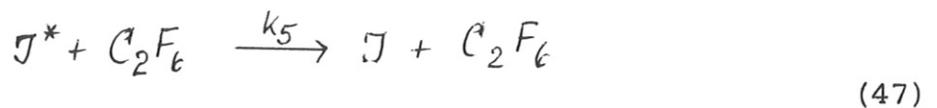
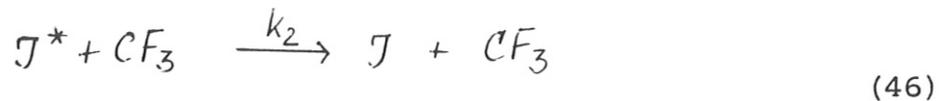
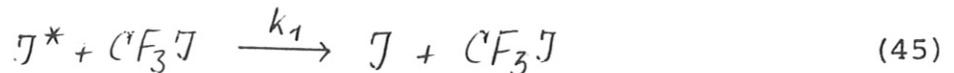
b) Folgeprozesse

Mit den beschriebenen Voraussetzungen und Annahmen führt die Photolyse von CF_3J , das im folgenden allein diskutiert werden soll, zur Erzeugung von angeregten Jodatomen und von Trifluormethylradikalen. Angeregte Jodatome können nun in einem Rekombinationsprozess zu CF_3J und in einem Dreierstoss zu J_2 weiterreagieren:



(k_i sind die Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten für die entsprechenden Prozesse.)

Zu diesen Reaktionen treten die Desaktivierungsprozesse von J^* :



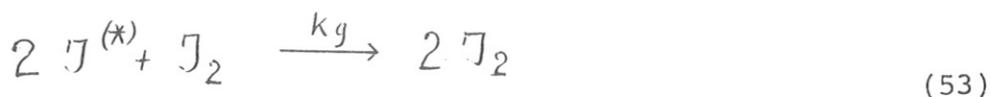
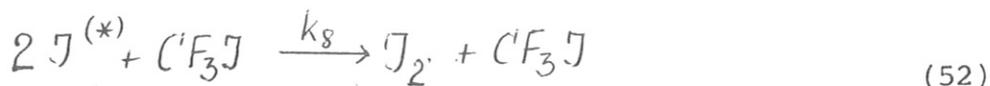
Gleichung (48) beschreibt die Desaktivierung durch Verunreinigungen im Gas. In Betracht kommt hier im wesentlichen nur der Restsauerstoff in der Apparatur, da der Reststickstoff nur sehr schwach desaktivierend wirkt /18/.

Diese Reaktionen (43) - (49) führen zu einer Verringerung der Konzentration von J und erhöhen gleichzeitig die Konzentration des Grundzustandsjod, d.h. die Inversion in dem System wird herabgesetzt.

Das im primären Photolyseprozess erzeugte CF₃-Radikal, dessen Rekombination durch Gl. (43) beschrieben wird, kann nun ebenfalls dimerisieren:



Zu diesen Folgereaktionen treten schliesslich noch die Prozesse des nichtangeregten Jods. Dieses kann einmal mit CF₃ zu CF₃J rekombinieren und zum anderen im Dreierstoss zu molekularem Jod dimerisieren:



Als Partner im Dreierstoss wird nur die Ausgangsverbindung und das molekulare Jod berücksichtigt. Die anderen Stosspartner liegen entweder in einer zu geringen Konzentration vor oder sind als "dritter Körper" nicht sehr effektiv. Die Formulierung der Gleichungen (52) und (53) soll andeuten, dass die Reaktionskonstanten K₈ und K₉ unabhängig vom Anregungszustand der Jodatome sind. Dies entspricht der Theorie von Bunker und Davidson /24/.

Die chemischen Begrenzungen für die Speicherung der Anregungsenergie lassen sich, falls die Konstanten k₁ und die Pumpraten bekannt sind, mit Hilfe dieser Gleichungen berechnen. Für jede der auftauchenden Teilchensorten kann eine Ratengleichung aufgestellt werden; dies führt zu einem System gekoppelter nichtlinearer Differentialgleichungen, das mit bekannten Anfangsbedingungen gelöst werden kann. Man erhält folgendes System von Gleichung (54) bis (59), wobei die Dichte der einzelnen Teilchensorten beschrieben wird durch:

$$n_0 = n_{CF_3} \cdot J, \quad n_1 = n_{J^*}, \quad n_2 = n_J, \quad n_3 = n_{CF_3},$$

$$n_4 = n_{e_2 F_6}, \quad n_5 = n_{J_2}$$

$$\frac{dn_c}{dt} = -P(t) + k_3 n_1 n_3 + k_4 n_2 n_3 \quad (54)$$

$$\begin{aligned} \frac{dn_1}{dt} = & P(t) - k_1 n_c n_1 - k_2 n_1 n_3 - k_3 n_1 n_3 - k_5 n_1 n_4 - \\ & - k_{10} n_1 n_{c_2} - k_7 n_1 n_5 - k_8 (n_1 + n_2)^2 n_c - k_9 (n_1 + n_2)^2 n_5 \end{aligned} \quad (55)$$

$$\begin{aligned} \frac{dn_2}{dt} = & k_1 n_c n_1 + k_2 n_1 n_3 - k_4 n_2 n_3 + k_5 n_1 n_4 + \\ & + k_{10} n_1 n_{c_2} + k_7 n_1 n_5 - k_8 (n_1 + n_2)^2 n_c - k_9 (n_1 + n_2)^2 n_5 \end{aligned} \quad (56)$$

$$\frac{dn_3}{dt} = P(t) - k_3 n_1 n_2 - k_4 n_2 n_3 - k_6 n_3^2 \quad (57)$$

$$\frac{dn_4}{dt} = k_6 n_3^2 \quad (58)$$

$$\frac{dn_5}{dt} = 0.5 k_8 (n_1 + n_2)^2 n_c + 0.5 k_9 (n_1 + n_2)^2 n_5 \quad (59)$$

Von den kinetischen Konstanten sind nur folgende entweder aus der Literatur bekannt oder können mit Hilfe plausibler Annahmen abgeschätzt werden.

$$k_1 = 3 \cdot 10^{-16} / 25/, \quad k_6 = 1 \cdot 10^{-11} / 20/, \quad k_7 = 5 \cdot 10^{-12} / 25/,$$

$$k_{10} = 8.6 \cdot 10^{-12} / 25/, \quad k_9 = 4.7 \cdot 10^{-30} / 26/ \quad (60)$$

$k_2 \approx 3.7 \cdot 10^{-12} / 20/$, da man annehmen kann, dass CF_3 ähnlich desaktiviert wie andere Radikale (O_2 , NO)

$k_5 = 4,5 \cdot 10^{-16}$ hier wurde der Reaktionskoeffizient für CF_4 eingesetzt unter der Annahme, dass C_2F_6 ähnlich schwach desaktiviert /25/.

Eine qualitative Einsicht in die Bedeutung und den Einfluss der verschiedenen Teilchensorten erhält man durch eine Diskussion der einzelnen Terme.

In den folgenden Überlegungen wird von einer Blitzlampe ausgegangen (Kap. D/a), die zu $\approx 10^{17}$ Photolysereaktionen pro cm^3 in einer Zeit von $\approx 5 \cdot 10^{-6}$ sec führt, die Pumprate beträgt daher $\approx 2 \cdot 10^{22}$. Weiterhin soll für diese Überlegungen gelten, dass die Dichte von CF_3J (n_0) gross gegen die Zahl der Photolysereaktionen ist, d.h. n_0 kann als konstant angesehen werden. Der Erzeugung von J^* steht als Verlust die Desaktivierung bzw. Rekombination gegenüber. Die Halbwertsdauer einer bimolekularen Reaktion, wie sie jeder der Desaktivierungsprozesse darstellt, ist gegeben durch:

$$\tau_H = 1/k_m n_M \quad (61)$$

wobei n_M die Teilchendichte der Stosspartner und k_m die zugehörige Reaktionskonstante ist. Die entsprechende charakteristische Zeit für die Dreierstossrekombination ist:

$$\tau_H = 1/2 k_m n_M n_i \quad (62)$$

α) Desaktivierungsprozesse

CF_3J : Für die Desaktivierung durch Stösse mit den Ausgangsmolekülen gilt:

$$\tau_{CF_3J} = 1/3 \cdot 10^{-16} n_{CF_3J} \approx 10^{-3} \text{ sec für } 100 \text{ Torr } CF_3J$$

d.h. bei einem Druck von 100 Torr erhält man ein τ_H von $\approx 10^{-3}$ sec; während des Pumpens spielt diese Reaktion mithin keine Rolle.

CF_3 : Die maximale Konzentration von CF_3 -Radikalen ist entsprechend den Blitzlampenwerten 10^{17} cm^{-3} .

$$\tau_{CF_3} = 1/3 \cdot 7 \cdot 10^{-12} \cdot 10^{17} = 2,5 \cdot 10^{-6} \text{ sec}$$

Die Desaktivierung durch CF_3 ist bereits während des Pulses spürbar.

$\underline{\text{C}_2\text{F}_6}$: C_2F_6 -Stöße sind nur dann von Bedeutung, wenn C_2F_6 als Wärmepuffergas verwendet wird. So gilt für 100 Torr C_2F_6 :

$$\tau_{\text{C}_2\text{F}_6} = 1 / (4,5 \cdot 10^{-16} \cdot 3,5 \cdot 10^{18}) = 0,65 \cdot 10^{-3} \text{ sec}$$

$\underline{\text{O}_2}$: Soll der Restsauerstoff während der ersten Millisekunde keine Rolle spielen, so muss gelten

$$\tau_{\text{O}_2} = 1 / (8,6 \cdot 10^{-12} \cdot n_{\text{O}_2}) \gg 10^{-3} \text{ sec.}$$

Das ergibt $n_{\text{O}_2} \leq 10^{14} \cong 3 \cdot 10^{-3} \text{ Torr}$

$\underline{\text{J}_2}$: Infolge der hohen Reaktionskonstante von J_2 führen bereits geringe Mengen von molekularem Jod, das nach Gl. (52), (53) gebildet wird zu einer starken Desaktivierung

$$\tau_{\text{J}_2} = 1 / (5 \cdot 10^{-12} \cdot n_{\text{J}_2})$$

Drucke von 10^{-2} - 10^{-1} Torr liefern bereits Zeiten τ_{H} im 100 μsec -Bereich.

β) chemische Reaktionen

$\underline{\text{J} + \text{CF}_3 \rightarrow \text{CF}_3\text{J}}$: Es lässt sich abschätzen, dass die Rekombination von CF_3 -Radikalen mit angeregtem Jod J^* gegenüber der mit dem Grundzustandsjod nicht sehr effektiv sein kann, da hierbei ein grosser Energiebetrag von dem neugebildeten Molekül aufgenommen werden muss. Man darf annehmen, dass die Reaktion (51) ähnlich schnell verläuft wie die von Cl mit CH_3 ($k = 6,6 \cdot 10^{-10}$) /27/. Deshalb wurde hier $k_4 \approx 5 \cdot 10^{-11}$ und der entsprechende Wert für die Reaktion (43) zu $k_3 \approx 5 \cdot 10^{-13}$ geschätzt. Die Halbwertsdauern der Reaktionen sind:

$$\tau_{1/2}(\text{CF}_3 + \text{J}) = 0,6 \cdot 10^{-6} \text{ für } n_{\text{J}} = n_{\text{CF}_3} = 10^{17}$$

und $\tau_{1/2}(\text{CF}_3 + \text{J}^*) = 6 \cdot 10^{-4} \text{ sec.}$

Das bedeutet, dass das Grundzustandsjod sehr schnell durch Rekombination mit CF_3 verschwindet. Dies ist eine nachträgliche Rechtfertigung der Annahme, dass das untere Laserniveau nicht besetzt wird.

$2\text{CF}_3 \rightarrow \text{C}_2\text{F}_6$: Die Dimerisierung von CF_3 zu C_2F_6 erfolgt ebenfalls mit einer hohen Stossausbeute, die Halbwertsdauer dieser Reaktion ist für eine Anfangsdichte von $n_{\text{CF}_3} = 10^{17}$:

$$\tau_{1/2}(\text{CF}_3 + \text{CF}_3) = 3 \cdot 10^{-6} \text{ sec}$$

$2\text{J} + \text{J}_2 \rightarrow 2\text{J}_2$: Bei der Bildung von molekularem Jod im Dreierstoss ist als Stosspartner das Jodmolekül selbst sehr effektiv. Es kommt zu einem autokatalytischen Prozess:

$$\frac{dn_2}{dt} = -2k_8 n_2^2 n_6$$

$$\frac{dn_6}{dt} = +k_8 n_2^2 n_6$$

Aus diesen Gleichungen folgt:

$$\frac{dn_2}{dt} + 2 \frac{dn_6}{dt} = 0, \quad n_2 + 2n_6 = \text{const} = c$$

Gibt man eine bestimmte Konzentration von $n_6 = n_6(0)$ und $n_2(0)$ vor, so lässt sich $n_2(t)$ berechnen:

$$\frac{dn_2}{dt} = -k n_2^2 (c - n_2)$$

$$\frac{c}{n_2(t)} + \ln\left(\frac{c}{n_2(t)} - 1\right) - \frac{c}{n_2(0)} - \ln\left(\frac{c}{n_2(0)} - 1\right) = c^2 k_9 t \quad (63)$$

für $n_2(0) = 10^{17}$ und $n_6(0) = 10^{14}$

erhält man mit dem Wert von K_9 eine Halbwertszeit t_H von 150 μsec . Molekulares Jod wird nach Gl. (52) gebildet:

$2\text{J}^* + \text{CF}_3\text{J} \rightarrow \text{J}_2 + \text{CF}_3\text{J}$: Eine Reaktionskonstante K_8 für diesen Prozess ist aus der Literatur nicht bekannt und lässt sich auch der Grössenordnung nach nur schwer abschätzen. Ein Ziel dieser Arbeit wird es daher sein, den Einfluss dieser Reaktionen zu ermitteln, um hieraus die Konstante K_8 zu bestimmen.

Zusammenfassend lässt sich aus der Diskussion der einzelnen Prozesse folgendes qualitatives Bild der Vorgänge bei der Photolyse von CF_3J gewinnen:

Es gibt im wesentlichen zwei Reaktionsgruppen die sich auf ganz verschiedenen Zeitskalen abspielen.

1. Dies sind einmal die Reaktionen von CF_3 -Radikalen, die sich während der Photolyse abspielen und deren Halbwertsdauern in der Grössenordnung der Pumpdauer liegen. Zum einen dimerisiert CF_3 zu C_2F_6 und zum anderen wird das angeregte Jod desaktiviert. Sobald Jod im Grundzustand vorliegt, kommt es zur Rekombination unter Bildung von CF_3J . Nach Beendigung der CF_3 -Produktion (Ende des Pumpprozesses) werden die CF_3 -Radikale sehr schnell verschwinden und den weiteren zeitlichen Verlauf der Inversion nicht mehr beeinflussen.
2. Die zweite Gruppe von Reaktionen betrifft die Desaktivierung von J^* . Bestimmend in diesem Zeitbereich ist die Desaktivierung durch CF_3J -Stösse und durch C_2F_6 , falls dieses Gas als Wärmepuffer in grösseren Dichten vorliegt. Der Einfluss des Restsauerstoffs kann bei genügender experimenteller Sorgfalt vernachlässigt werden. Ungeklärt ist der Einfluss der Dreierstossrekombination der Jodatome zu molekularem Jod mit CF_3J als "drittem Körper". Liegt erst einmal molekulares Jod vor, so führt ein autokatalytischer Prozess (J_2 ist ein hervorragender Desaktivator) zum schnellen Abbau der J^* -Konzentration.

Den genauen zeitlichen Verlauf der einzelnen Teilchensorten gewinnt man allerdings nur mit Hilfe einer numerischen Lösung der Ratengleichungen (54) bis (59), die im Rechenzentrum des Max-Planck-Instituts für Plasmaphysik durchgeführt wurde. Als Integrationsmethode diente das Runge-Kutta-Gill (RKG)-Verfahren /28/. Als Anfangswerte für CF_3J wurde für die Rechnung, deren Ergebnis in Abb. 17 dargestellt ist, ein Druck von 20 Torr gewählt. Als Blitzprofil wurde der in Kapitel D beschriebene Zeitverlauf der Blitzlichtquelle zugrunde gelegt, der mit 60 Wertepaaren angenähert wurde. Die gesamte Zeitdauer des Blitzes beträgt 14 μsec . In Abb. 17 sind über einer logarithmischen Zeitskala die Konzentrationen der einzelnen Teilchensorten aufgetragen. Man erkennt den oben qualitativ beschriebenen Verlauf. Die durch den Blitz erzeugten Radikale CF_3 rekombinieren zu C_2F_6 und CF_3J . Dementsprechend

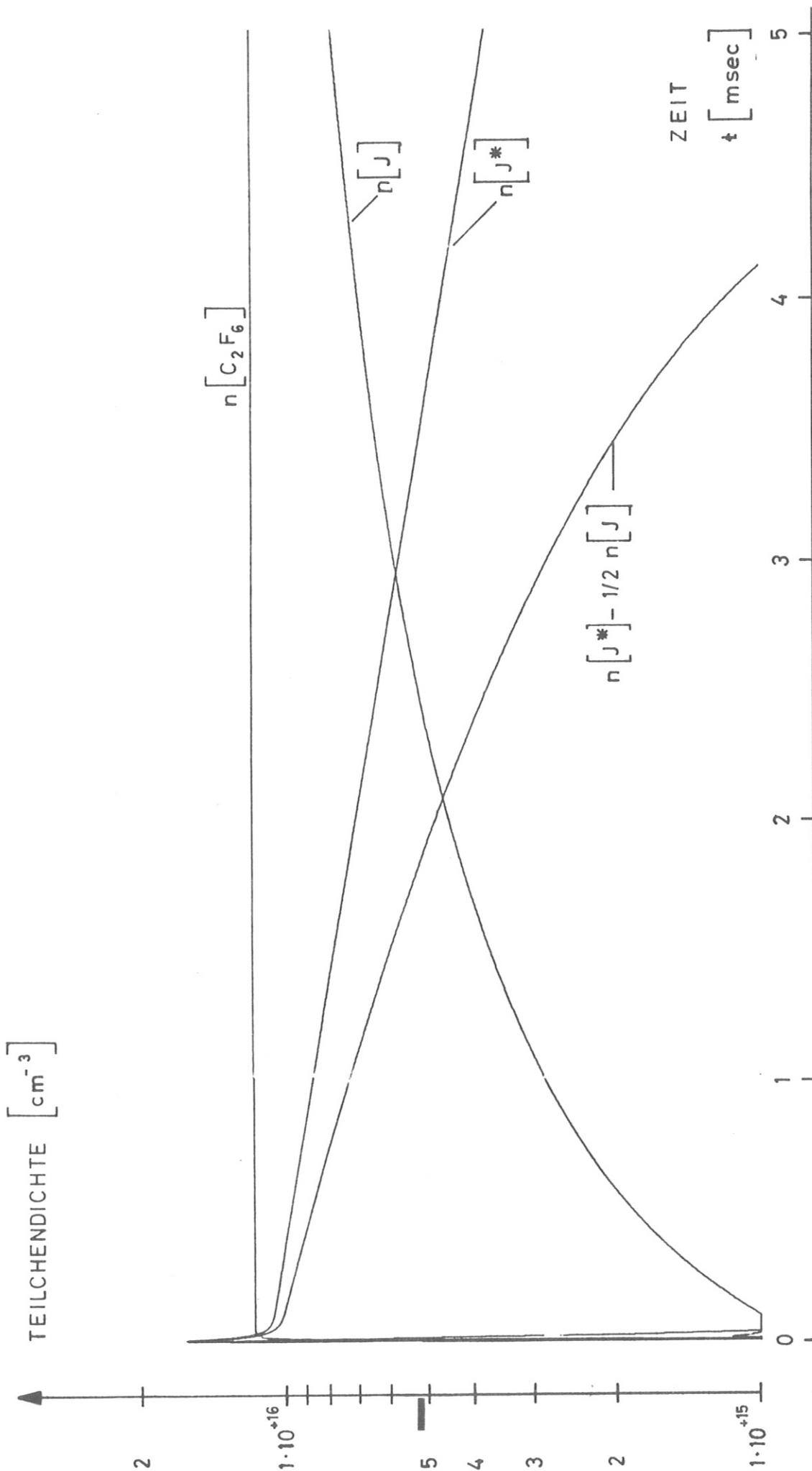


Abb. 17

Berechneter Verlauf der Teilchendichten n_i bei der Photolyse von CF_3J bei einem Druck von $P_{\text{CF}_3\text{J}} = 20$ Torr und einer Zahl der Photolyseaktionen von $1,8 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

steigt die Konzentration an C_2F_6 bis zum Ende des Blitzpulses an. Erst ab diesem Zeitpunkt, zu dem alle CF_3 -Radikale abreagiert haben, erreicht das Jod im Grundzustand eine merkliche Konzentration, deren weiterer zeitlicher Verlauf durch die Desaktivierung gegeben ist. Dreierstösse sind bei diesen Rechnungen nicht berücksichtigt worden. Bemerkenswert ist, dass mit dem so gewählten Satz von Reaktionskonstanten die J^* -Konzentration noch während des Blitzpulses abfällt; dies ist eine Folge der hohen Desaktivierungsrate von CF_3 -Radikalen.

Angesichts der nur rohen Abschätzung für die Geschwindigkeitskonstante k_4 lässt sich erwarten, dass die Rechnungen von Abb. 17 das chemische Verhalten bei kurzen Zeiten nur ungenau beschreiben. Genauere Voraussagen sind jedoch für Zeiten nach dem Ende des Blitzpulses möglich. Die experimentelle Nachprüfung des Abklingens der J^* -Konzentration kann hier die Desaktivierungskonstanten für Stösse mit CF_3J und mit C_2F_6 bestätigen und kann gegebenenfalls Hinweise auf die Beteiligung von Dreierstossprozessen liefern.

D) EXPERIMENTELLER AUFBAU

Die beiden wesentlichen Fragen für die Tauglichkeit von CF_3J als Puls-laser hoher Leistung betreffen den Wirkungsquerschnitt für induzierte Emission σ (siehe Kap. B) und den Einfluss der chemischen Prozesse (siehe Kap. C) auf die Inversion. Durch die Grösse σ wird die Inversion bestimmt, bei der es zu unkontrolliertem Anschwingen kommt (Speicheranlage), während die chemischen Prozesse die Begrenzung und den zeitlichen Verlauf der Inversion als Folge der strahlungslosen Vorgänge beschreiben. Das Ziel dieser Arbeit, nämlich das Potential des Jodlasers im Höchstleistungsbetrieb zu untersuchen, läuft daher im wesentlichen auf folgende zwei Punkte hinaus:

1. Der Wirkungsquerschnitt σ und damit die speicherfähige Energie soll in Abhängigkeit vom Druck untersucht werden und der Einfluss eines Magnetfeldes auf die Verstärkung soll festgestellt werden.
2. Die hauptsächlichsten strahlungslosen Verlustmechanismen sollen bestimmt werden (CF_3J -Desaktivierung, Bildung von molekularem Jod) und der Einfluss auf die Speicherzeit untersucht werden, wobei un-

ter der Speicherzeit die Zeit verstanden wird, bei der die Inversion auf den halben Wert abgesunken ist.

a) Untersuchungsmethode

Zur Untersuchung des ersten Punktes benötigt man eine Methode zur Messung von σ , während die Beantwortung der Frage 2 darauf hinausläuft, dass die Inversion Δn als Funktion der Zeit zu ermitteln ist. Die verwendeten Diagnostikmethoden sind Energiemessungen und zeitabhängige Energieverstärkungsmessungen, die im folgenden diskutiert werden sollen. Abb. 18 zeigt das Prinzip einer Verstärkungsmessung:

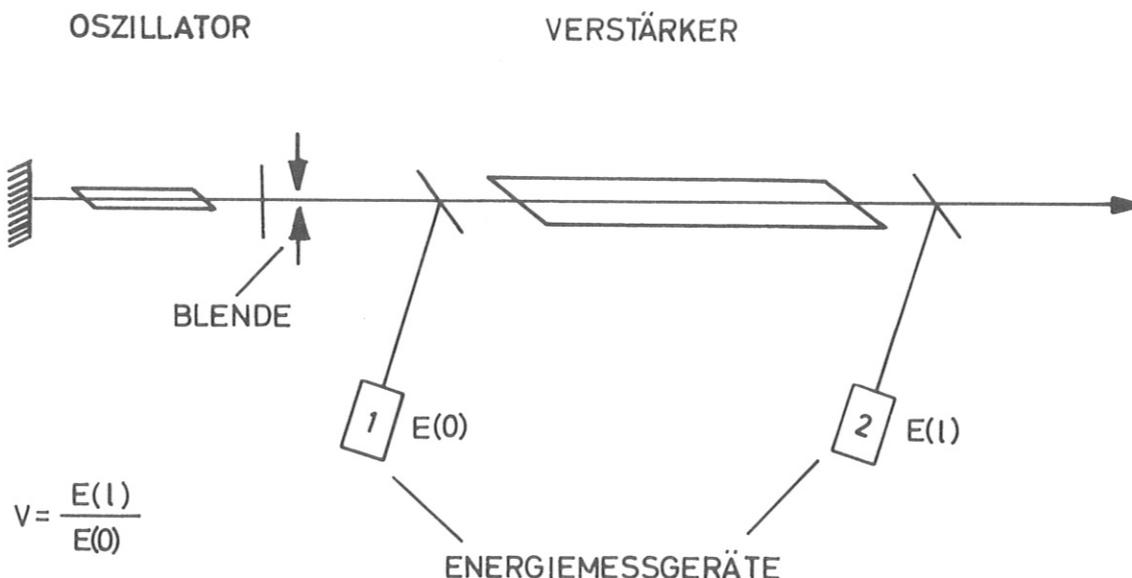


Abb. 18
Prinzip der Verstärkungsmessung

1. Messung von σ

Für die Verstärkung eines Eingangssignals der Energieflächendichte $E(0)$ gilt nach Gl. (25):

$$V = \frac{1}{b\sigma E(0)} \ln \left(1 + \left(e^{b\sigma E(0)} - 1 \right) e^{\sigma \Delta n l} \right) \quad (25)$$

Die Grössen σ und Δn in dieser Gleichung sind unbekannt und das Ziel der Untersuchungen. Misst man die Verstärkung V für zwei verschiedene Eingangsenergien, so lässt sich σ folgendermassen bestimmen: Die Grösse $\exp(\sigma \Delta n l)$ ist in beiden Versuchen gleich,

d.h. der Ausdruck

$$e^{\sigma \Delta n l} = \frac{e^{b \sigma E(o) V} - 1}{e^{b \sigma E(o)} - 1} = f(\sigma)$$

ist konstant. Trägt man die Funktion $f(\sigma)$ einmal für die Wertepaare $(E_1(o)/V_1)$ und einmal für $(E_2(o)/V_2)$ in Abhängigkeit von σ auf, so erhält man zwei Kurven, die sich schneiden. Die Abszisse des Schnittpunktes gibt den gesuchten Wert von σ an, und aus dem zugehörigen Ordinatenwert lässt sich die Gesamtinversion $\Delta n l$ bestimmen (Abb. 19).

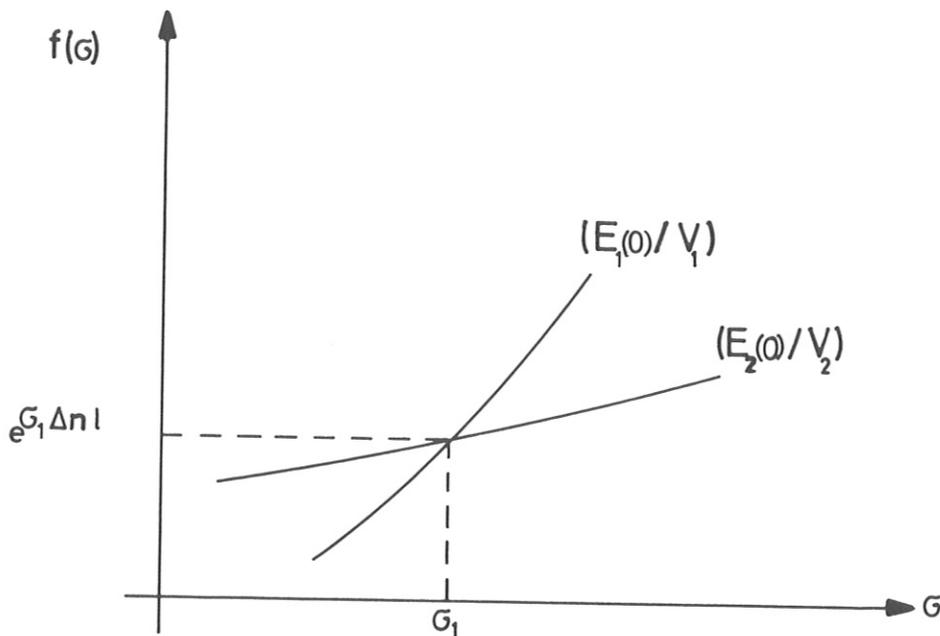


Abb. 19

Auswertung eines Verstärkerexperiments

Um den Messfehler möglichst klein zu halten, sollten die beiden Kurven im Schnittpunkt einen grossen Steigungsunterschied aufweisen. Im Kleinsignalbereich gilt

$$f_{\text{Kleinsignal}}(\sigma) = V$$

das bedeutet $f_{\text{Kl}}(\sigma)$ ist unabhängig von σ , man erhält eine Gerade parallel zur σ -Achse. Im Grosssignalbereich $\exp(b \sigma E(o)) \gg 1$ wird

$$f_{\text{Grosssignal}}(\sigma) = e^{\sigma b E(o)(V-1)}$$

und $\ln f_{g_r}(\sigma) = \sigma b E(o)(V-1)$

$f(\sigma)$ hängt also exponentiell von σ ab. Auf einer logarithmischen Skala erhält man zwei Geraden, deren Schnittpunkt den wahren Wert von σ liefert.

Die Voraussetzungen für die Anwendung dieser Methode sind bereits in Kapitel B/d beschrieben worden und seien hier kurz noch einmal wiederholt:

- a) Homogene Linienverbreiterung muss vorliegen, d.h. innerhalb der Zeitdauer des Pulses müssen genügend viele Stösse erfolgen.
- b) Die Eingangsenergieflächendichte muss konstant sein, ausser im Kleinsignalbereich, da hier die Verstärkung unabhängig von $E(o)$ ist.
- c) Während der Pulsdauer darf sich die Inversion als Folge von Pumpprozessen nicht ändern, die Pulsdauer τ_p muss klein sein gegen die charakteristischen Pumpzeiten (z.B. infolge von Photolyseprozessen oder chemischen Reaktionen)
- d) Die linearen und nichtlinearen Verlustprozesse im Verstärker können vernachlässigt werden.

2. Messung der Inversion Δn

Ist der Wert von σ bekannt, so erhält man die Inversion $\Delta n \ell$ aus einer Messung der Verstärkung im Kleinsignalbereich zu:

$$\Delta n \ell = \frac{\ln V}{\sigma}$$

Mit bekannter Länge ℓ des Verstärkers ergibt sich so auch die Inversionsdichte Δn . Führt man diese Messungen zu verschiedenen Zeitpunkten während bzw. nach dem Pumpprozess durch, so lässt sich die Inversion zeitabhängig verfolgen. Daraus können dann Rückschlüsse auf die chemischen Prozesse gezogen werden.

b) Aufbau der Apparatur

Zur Durchführung der Energieverstärkungsmessungen wurde ein Oszillator-Verstärker-Experiment aufgebaut, dessen Einzelheiten in dem Schema Abb. 20 zu erkennen sind. Oszillator- wie Verstärkerküvette werden von einer zentralen Vakuumparatur (16 - 21) versorgt. CF_3J (Peninsular Chemresearch, Gainesville, Florida, USA) ist ein schwer flüch-

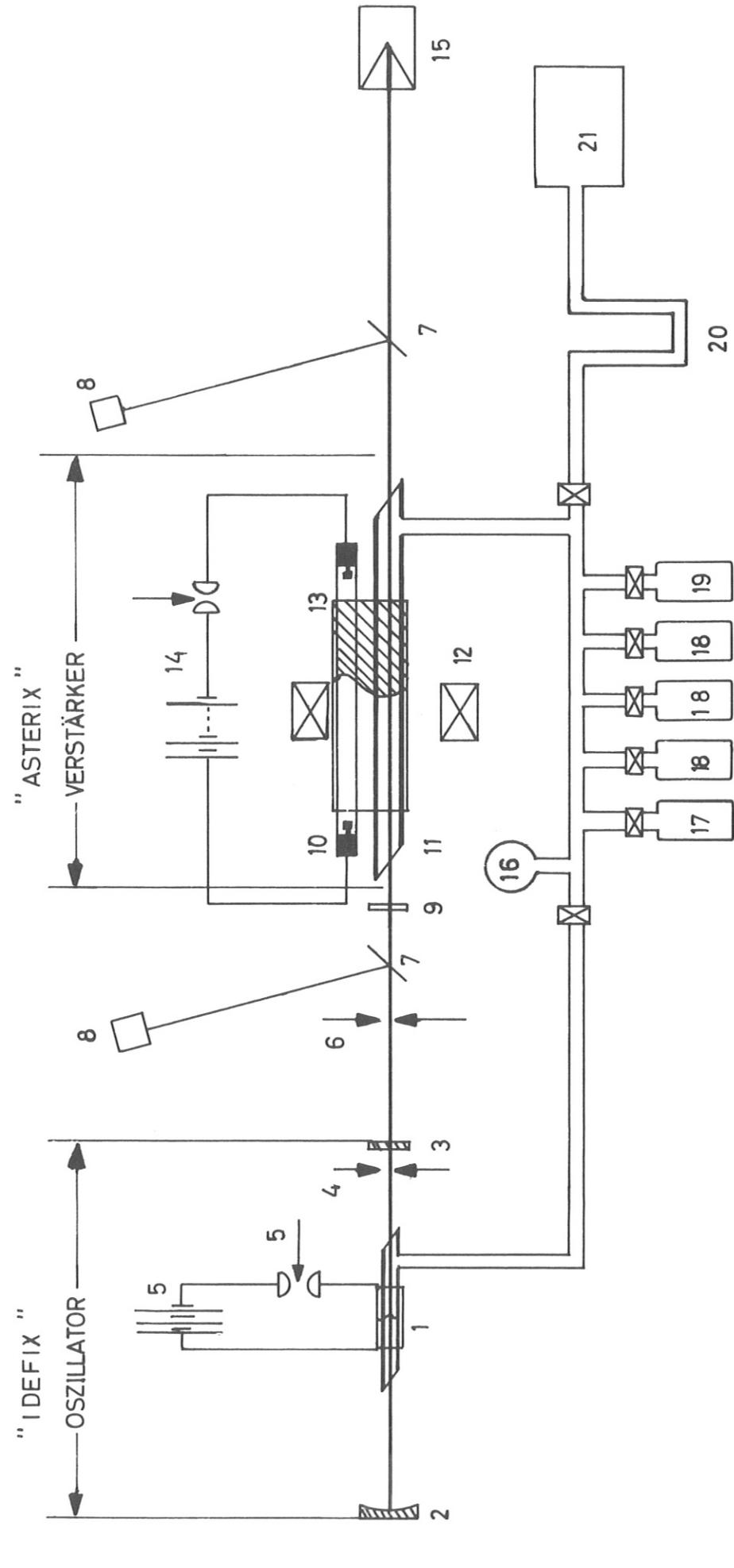


Abb. 20

CF₃J-Oszillator-Verstärker-Experiment

- | | | |
|--|--------------------------------|------------------------------|
| 1) Koax-Lampe mit Laserrohr | 8) Dioden- u. Integrierglieder | 15) Energiemessgerät |
| 2) 100 %-Goldspiegel | 9) Filter | 16) Manometer |
| 3) 5 m Krümmungsradius | 10) Blitzlampe | 17) CF ₃ J-Vorrat |
| 4) 40 % plan Auskoppelspiegel | 11) Laserküvette | 18) Mischung, Reinigung |
| 5) Modenblende | 12) Magnetfeldspulen (15 kG) | 19) Abfall |
| 6) Energieversorgung 160 J mit Schaltfunkenstrecke | 13) Alu-Reflektor | 20) Kühlfalle |
| 7) Strahlteiler | 14) Energieversorgung 1,2 kJ | 21) Diff.-Pumpe |

tiges Gas, das bei 20 °C einen Dampfdruck von 2 atm besitzt. Es kann daher in grösseren Mengen flüssig in einem Vorratskolben (17) aufbewahrt werden. Der Siedepunkt von CF_3J liegt bei - 22 °C. Nach der Blitzphotolyse des Gases in den Laserküvetten wird es im Abfallkolben (19) ausgefroren. Als Kältebad dient flüssiger Stickstoff bei dessen Temperatur CF_3J einen Dampfdruck $\sim 10^{-5}$ Torr besitzt; es kann daher vollständig ohne zusätzliches Pumpen durch das Kältebad aus der Apparatur entfernt werden. Die Kolben (18) dienen zum Reinigen des CF_3J -Gases. Hierzu wird CF_3J von einem CO_2 -Methanol-Kältebad (- 80 °C) auf - 192 °C umkondensiert /25/. Die Verunreinigungen, vorwiegend Luft, werden mit Hilfe der Diffusionspumpe (21) abgesaugt. Für die Versuche wurde mehrfach gereinigtes CF_3J -Gas benützt. Die gesamte Anlage konnte auf 10^{-7} Torr evakuiert werden, bei einer Leckrate $\approx 10^{-8}$ Torr-ℓ/sec. Die Sauerstoff-Desaktivierung (Kap. C) spielte daher erst in Zeitbereichen von ~ 100 msec eine Rolle.

Die Oszillatoreinheit (1 - 5) besteht aus einer Laserküvette, die von einer koaxialen Blitzlampe /30/ umgeben ist. Der Detailzeichnung (Abb. 21) entnimmt man, dass die beleuchtete Länge 7 cm ist. Der Zwischenraum zwischen den koaxialen Blitzlampenrohren beträgt 1 mm, er wird über die Zuleitung (3) mit ca. 50 Torr Xenon gefüllt. Das eigentliche Laserrohr besteht aus Quarz (Suprasil, Heraeus) und ist mit Brewsterfenstern aus Quarz (Infrasil, Heraeus) abgeschlossen. Der Innendurchmesser beträgt 5 mm. Die Elektroden (7) bestehen aus einem Kranz von 15 0,5 mm-Wolframstiften. Die Zuführungen vom Kondensator (0,5 μF , 25 kV) sind als Bandleiter ausgeführt, um durch Herabsetzung der Induktivität einen möglichst kurzen Entladungspuls zu erhalten. Es wurde eine Halbwertsdauer von 2 μsec bei einer Anstiegszeit von 500 nsec erreicht. Die hohe Pumprate für den Gain-switch-Betrieb des Oszillators wurde notwendig (Kap. B/c), um ohne Schaltelemente auszukommen. Der Reflektor (8) besteht aus Aluminium-Haushaltsfolie und dient gleichzeitig als Rückleiter. In Abb. 22 ist eine photographische Abbildung des gesamten Oszillators gezeigt.

Der Resonator wird von einem vergoldeten 100 %-Endspiegel und einem Auskoppelspiegel mit 60 % Transmission gebildet. Die Resonatorlänge ist so gewählt, dass der plane Auskoppelspiegel im Brennpunkt des Endspiegels liegt, der eine Brennweite von 5 m hat. Diese hemikonfokale Anordnung in Verbindung mit der Modenblende (4) gewährleistet einen Monomodetrieb des Oszillators.

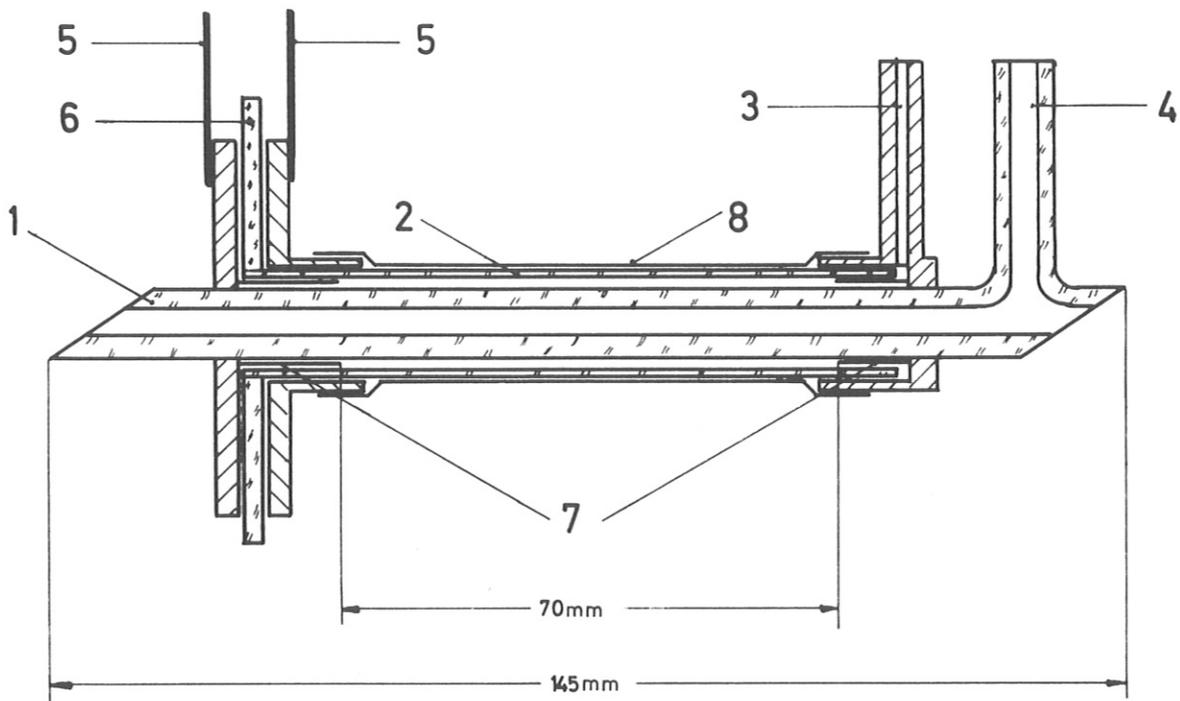


Abb. 21

Laserszillator mit koaxialer Blitzlampe

- 1) Laserrohr Suprasil
- 2) Lampenaußenrohr
- 3) Zuleitung für Blitzlampen
- 4) Zuleitung für Laserrohrfüllung
- 5) Bandleiter
- 6) Quarzisolierung
- 7) Wolframelektroden
- 8) Reflektor - Rückleiter

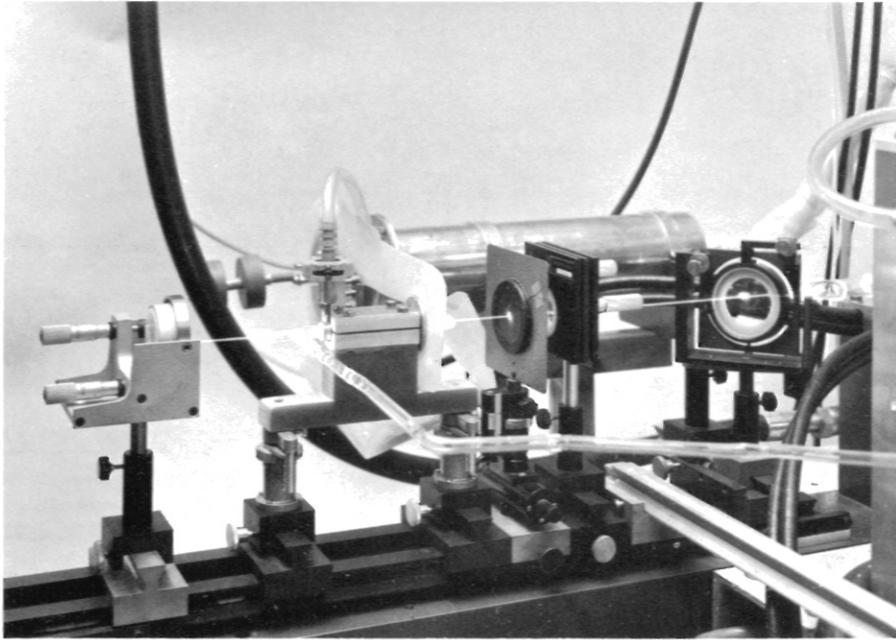


Abb. 22
Laseroszillator "Idefix"

Das Verstärkerrohr (11) "Asterix" besteht ebenfalls aus Suprasil-Quarzglas, hat einen Innendurchmesser von 11 mm bei einer Länge von 40 cm und ist mit Brewsterfenstern aus Quarz abgeschlossen. Parallel zum Laserrohr liegt eine 40 cm lange Blitzlampe (10), die einen Lichtpuls von 5 μ sec Halbwertsdauer aussendet. Der Abstand der Blitzlampe vom Laserrohr (Achsenabstand) beträgt 2 cm. Der Reflektor besteht wieder aus einer Aluminiumfolie, die eng um die Blitzlampe und das Laserrohr gewickelt ist.

Die speziell für den Jodlaser entwickelte Blitzlampe /31/ besteht aus einem 40 cm langen Suprasilrohr, dessen Innendurchmesser 10 mm beträgt bei einer Wandstärke von 1 mm. Als Füllgas wird Xenon bei einem Druck von 50 Torr verwendet. Die Wolframelektroden sind auf eine Messinghalterung gelötet, die mit Hilfe des Epoxydklebers "Gupalon" auf das Glasrohrende geklebt sind. Durch eine Bohrung an einer Elektrode kann die Blitzlampe je nach Bedarf evakuiert und neu gefüllt werden. Die Elektroden sind über eine Schaltfunkenstrecke mit dem Hochspannungs-Puls Kondensator (14) verbunden. Die Energie des Blitzes in dem für die Photolyse notwendigen Spektralbereich wurde aus der Strahlungstemperatur des Xenonplasmas ermittelt. Die Temperaturmessung erfolgte mit folgender Anordnung (Abb. 23).

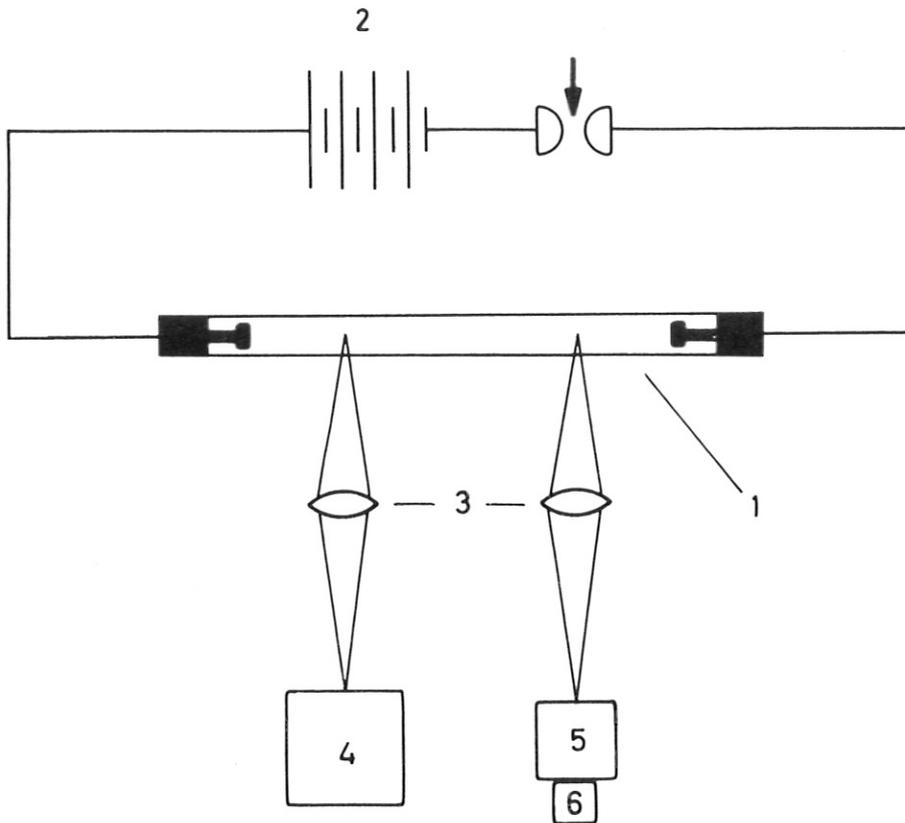


Abb. 23

Messung der spektralen Strahlungsenergie

- 1) Blitzlampe
- 2) Energieversorgung
- 3) Linsen
- 4) Bildwandlerkamera
- 5) UV-Spektrograph
- 6) SEV

Ein Stück der Blitzlampe wird auf den Eingangsspalt eines UV-Spektrographen abgebildet und seine Intensität als Funktion der Wellenlänge gemessen. Der SEV wurde mit einem Normalstrahler, nämlich einem Kohlebogen der nach /32/ eine Strahlung emittiert, die dem eines schwarzen Strahlers von 3900 K entspricht, geeicht. Die genaue Strahlungstemperatur bei der Messwellenlänge erhält man aus dem Frequenzgang des Emissionskoeffizienten von Graphit. Aus dem Verhältnis der SEV-Ströme, die den Strahlungsintensitäten proportional sind, erhält man direkt die Intensität des Xenon-Plasmas \mathcal{F}_ν . Mit \mathcal{F}_ν lässt sich schliesslich

die integrale Strahlungsenergie in dem interessierenden Spektralbereich $\Delta\nu$ berechnen:

$$E = \int \mathcal{F}_\nu \, df \, d\omega \, d\nu$$

Die Integration erfolgt über die gesamte Oberfläche f des Plasmas, den vollen Raumwinkel 4π und über $\Delta\nu$. Die Oberfläche f des Plasmas ist gleich der Innenfläche des Quarzrohres, falls das Plasma das Rohr gleichmässig ausfüllt. Um die Homogenität der Entladung zu prüfen, wurde das Plasma zeitaufgelöst mit einer Bildwandlerkamera (4) betrachtet. Die Schmierbildaufnahmen zeigten lediglich zu Beginn der Entladung Inhomogenitäten. Für die Berechnung von E wurde daher die gesamte Rohrrinnenwand herangezogen. In Abb. 24 und 25 ist der Intensitätsverlauf der Lampe und die gesamte spektrale Energieverteilung dargestellt. Die Grösse M ist hierbei definiert durch:

$$M = \frac{d\mathcal{F}}{d\lambda} \quad \text{mit} \quad \mathcal{F} = \int_{\Delta f, \Delta \omega} \mathcal{F}_\lambda \, df \, d\omega$$

In dem für CF_3J wichtigen Spektralbereich werden ~ 9 Joule Photolyse-Licht ausgesendet.

Blitzlampe und Laserrohr sind von sechs Magnetfeldspulen (Abb. 19, (12)) umgeben, siehe Abb. 26, um den Einfluss eines inhomogenen Magnetfeldes auf die Laseremission untersuchen zu können. Die Magnetfeldspulen sind vom Typ Sp5, wie sie im Max-Planck-Institut für Plasmaphysik für den Stellerator entwickelt wurden (Stellerator-Spulen) /33/. In Abb. 27 ist der Intensitätsverlauf des Magnetfeldes in der Achse der Spulen, in der der Verstärker liegt, dargestellt. Die Spulen können maximal mit 2000 Amp beschickt werden, was einer Magnetfeldstärke von 14 kGauss entspricht. Einen annähernd konstanten Gradienten erhält man im Bereich zwischen 2 und 12 cm, vom maximalen Wert in der Spulenmitte aus gerechnet. Ausserhalb von 15 cm ist der Gradient gegenüber dem inneren Bereich so schwach, dass für einen Vergleich mit der in Kapitel B entwickelten Theorie diese Verstärkerstrecke bei der Photolyse abgedeckt wurde.

Die Verstärkungsmessungen werden mit Hilfe der beiden Dioden (8) in Abb. 28 vorgenommen. Vor dem Verstärker wird ein Teil des Strahls über eine Strahlteilerplatte (aus Infrasil) ausgeblendet und von dem Detektor (Ford-Philco Typ 4530), der in der in Abb. 28 angegebenen

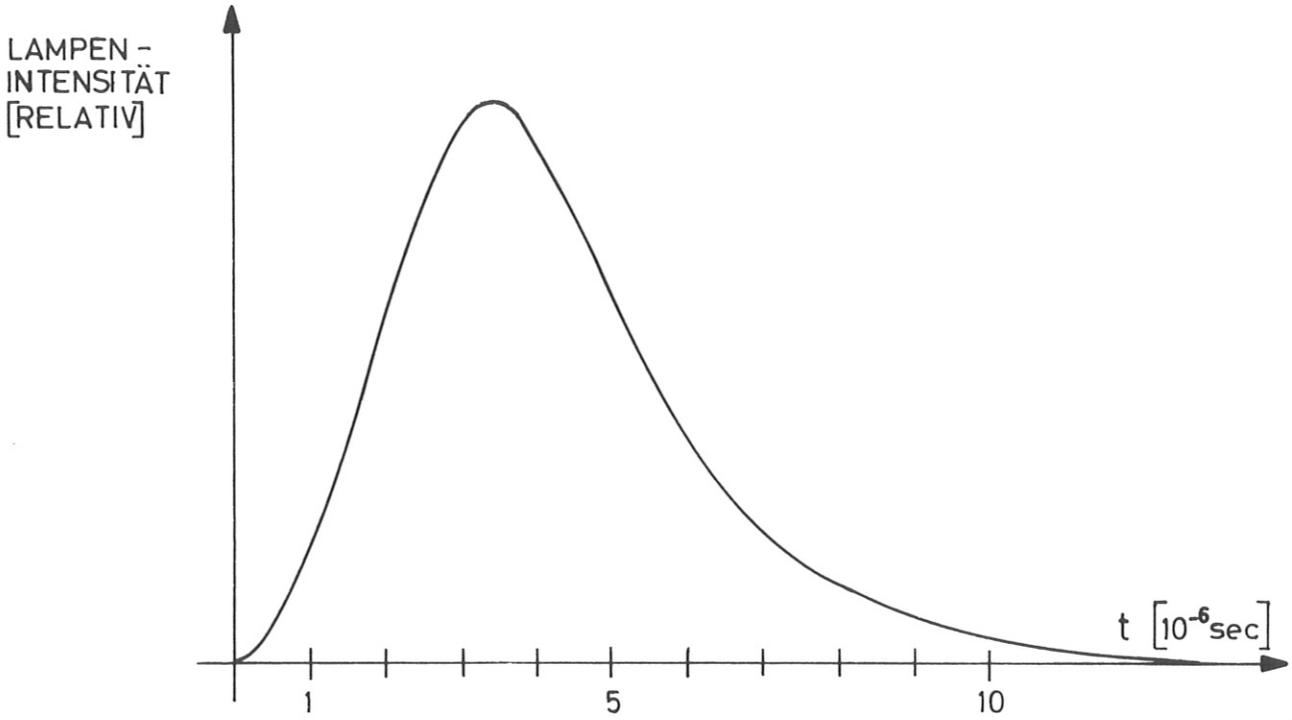


Abb. 24
Zeitlicher Verlauf der Emission bei $\lambda = 2730 \text{ \AA}$

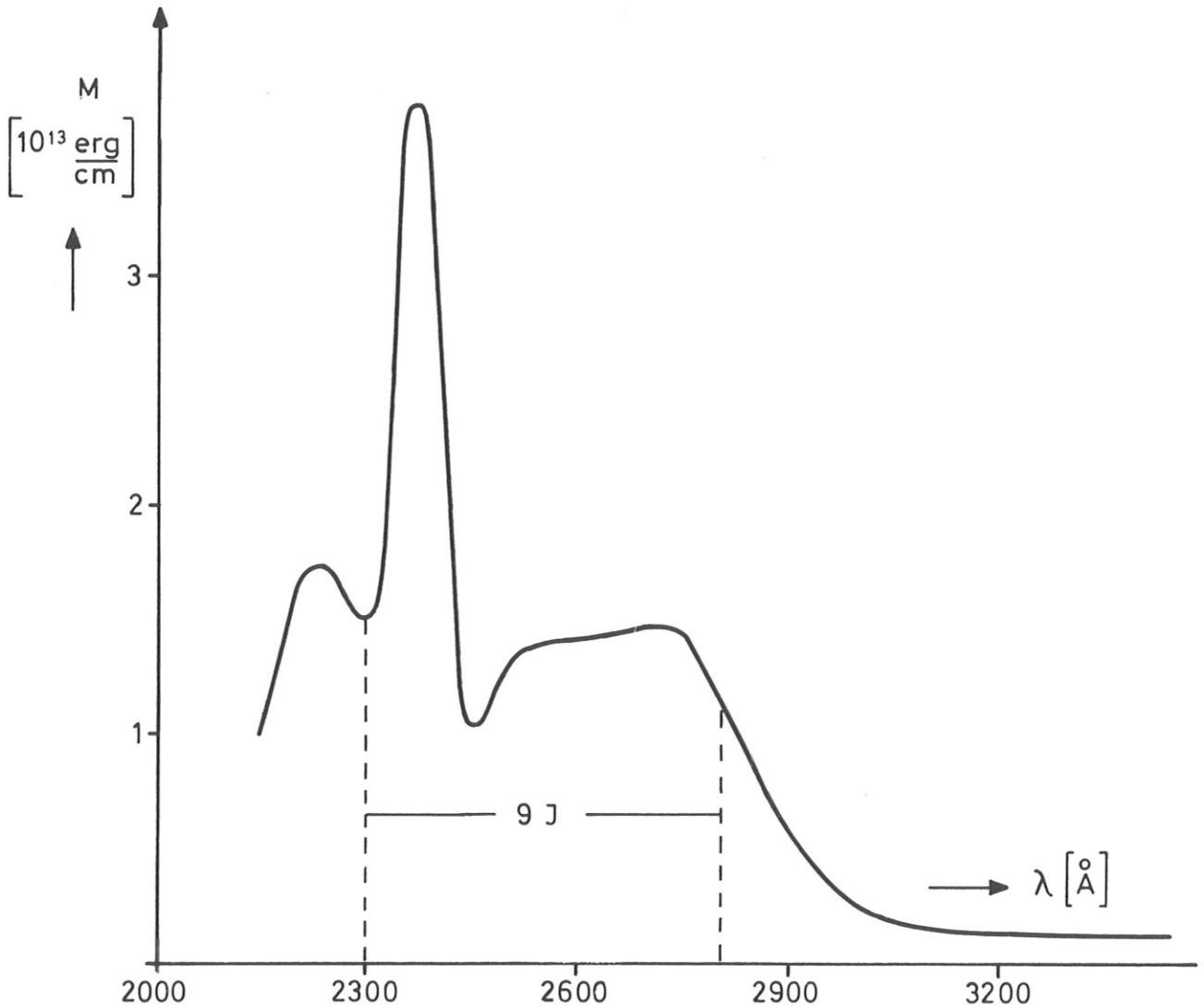


Abb. 25
Abhängigkeit der emittierten Energie von der Wellenlänge

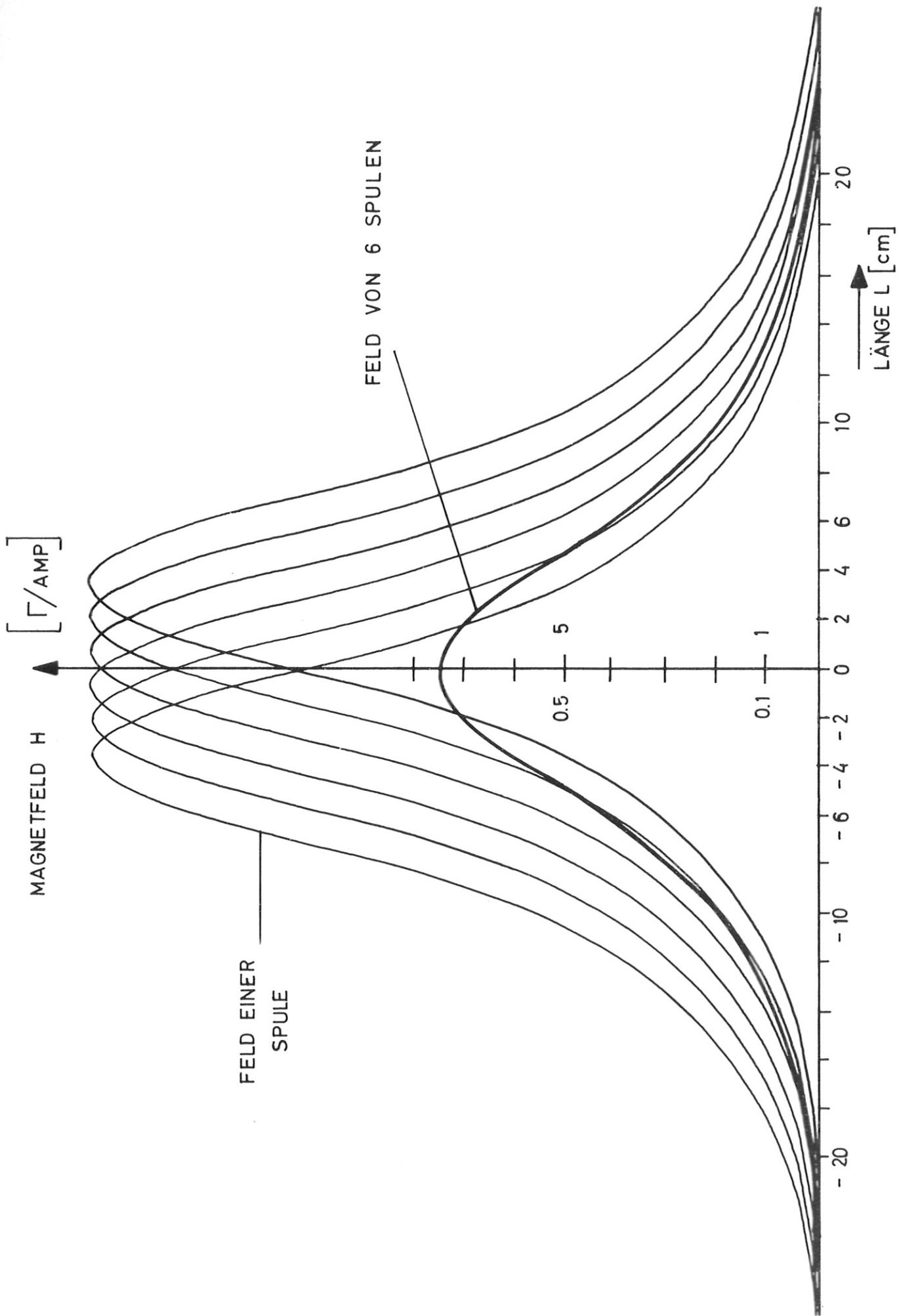


Abb. 26 Magnetfeld in axialer Richtung

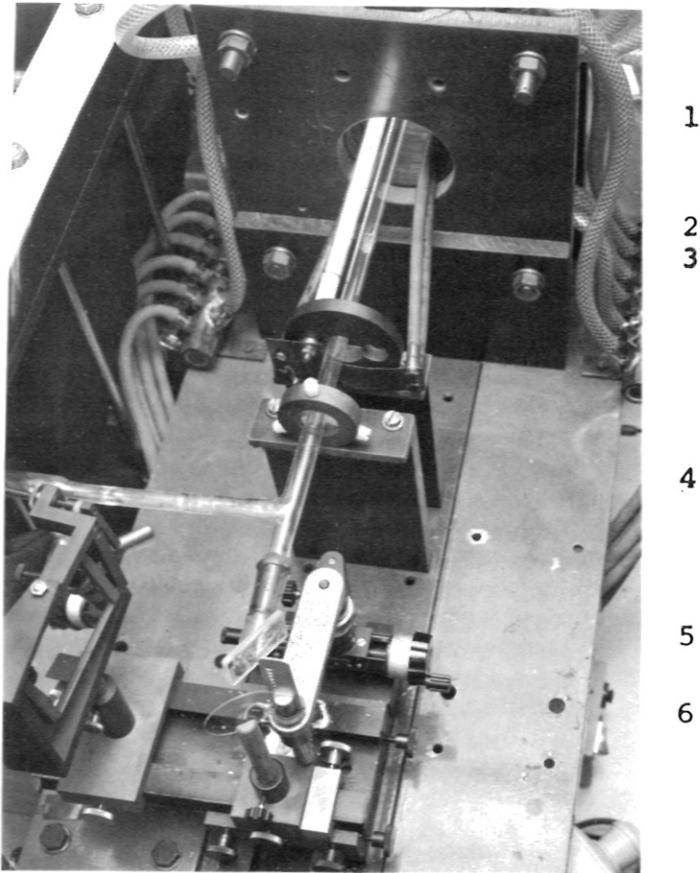


Abb. 27 Teilansicht des Laserverstärkers "Asterix"
(von oben gesehen)

- 1) Magnetfeldspulen mit Wasserversorgung
- 2) Blitzlampe
- 3) Laserrohr
- 4) Zuführung zur Vakuumapparatur
- 5) Brewsterfenster
- 6) Strahlteiler für Verstärkungsmessung

Schaltung eine Anstiegszeit von $2 \cdot 10^{-9}$ sec besitzt, registriert. Die Detektoren befinden sich in einer abgeschirmten Messkabine, um elektrische Störungen bei der Registrierung des Lasersignals auszuschalten.

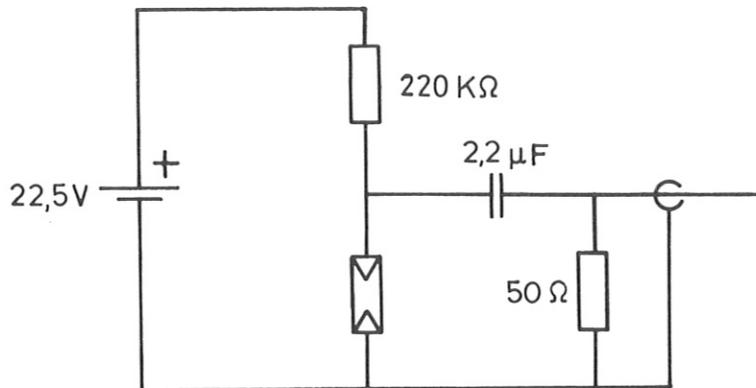


Abb. 28

Schaltung der Detektordiode

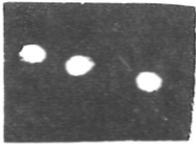
Die Diodensignale (max. 50 mV) werden mit einem Integrationsverstärker aufintegriert und von einem Oszillographen aufgezeichnet. Die Integrationszeit von 10 μ sec wurde so gewählt, dass während der Pulsdauer von 100 - 200 nsec kein wesentlicher Abfall im integrierten Signal zu beobachten war. Besondere Vorkehrungen wurden getroffen, um die empfindlichen Flächen der Dioden (0,5 x 0,5 mm) gleichmässig auszuleuchten. Ein Satz von drei Mattscheiben im Abstand von 10,5 und 1 cm vor der Diode sorgte für eine homogene und in einem weiten Bereich auch winkelunabhängige Ausleuchtung /34/. Vor der Verstärkungsmessung werden die beiden Diodensignale mit Hilfe von Filtern aufeinander abgeglichen und über das Energiemessgerät (15) (TRG Control Data 200) geeicht. Eine Blende (6) vor dem Verstärker schneidet die Teile des Pulses heraus, in denen die Energieverteilung besonders inhomogen ist, die Anwendung der Gleichung (25) also nicht erlaubt ist. Bei der Verstärkungsmessung ist darauf zu achten, dass die Diodensignale 50 mV nicht übersteigen, da sonst die Linearität der Anzeige nicht gewährleistet ist.

E) EXPERIMENTELLE ERGEBNISSE

a) Oszillatormessungen

Eine der Voraussetzungen für die Anwendung der Gleichung (25) für die Energieverstärkung ist eine homogene Energieflächendichte des Eingangspulses $E(o)$. Neben dieser Forderung soll die Energie des Pulses möglichst hoch sein, um in den Grosssignalbereich des Verstärkers zu gelangen (siehe Kap. D/a).

Die erste Voraussetzung lässt sich unter den gegebenen Bedingungen am einfachsten mit einem Mono-Modus-Puls erzielen, der dadurch entsteht, dass der Oszillator nur in einem transversalen Modus (TEM_{00}) schwingt. Mit der oben beschriebenen Resonatoranordnung ist es bei guter Spiegeljustierung einfach, die verschiedenen transversalen Schwingungsformen zu selektieren. Abb. 29 zeigt eine Reihe von TEM_{00} -Pulsen, die mit einer Modenblendenöffnung von 2,5 mm Durchmesser erzeugt wurden.



Diese "Brennmuster" entstehen durch Verbrennungen, die der Laserstrahl auf einem belichteten Film hervorruft und geben ein grobes Bild der Intensitätsverteilung im Strahl.

Abb. 29

TEM_{00} -Moden des CF_3J -
Oszillators

Bezüglich einer eingehenden Diskussion von Resonator- und Modentheorie sei auf die Spezialliteratur verwiesen /7/.

Die Winkeldivergenz des Monomodus-Strahls, der beugungsbegrenzt (beugende Öffnung ist die Modenblende) sein sollte, wurde so gemessen, dass an zwei 100 cm voneinander entfernten Orten die Energieverteilung über den Radius bestimmt wurde (siehe Abb. 30).

An der Stelle a) bzw. b) wird eine Blende variabler Öffnung eingeführt und die durch die Blende tretende Energie als Funktion des Blendendurchmessers gemessen. Abb. 31 zeigt das Ergebnis.

Bezieht man die Winkeldivergenz φ auf den Abfall der Gesamtenergie auf ihren halben Wert, so erhält man

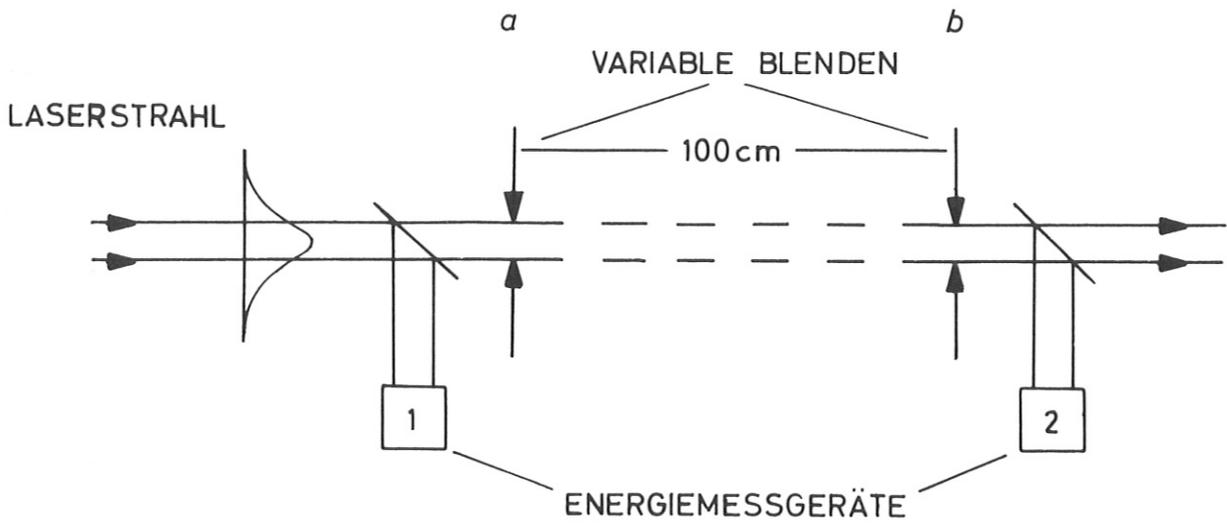


Abb. 30
Schema der Winkeldivergenzmessung

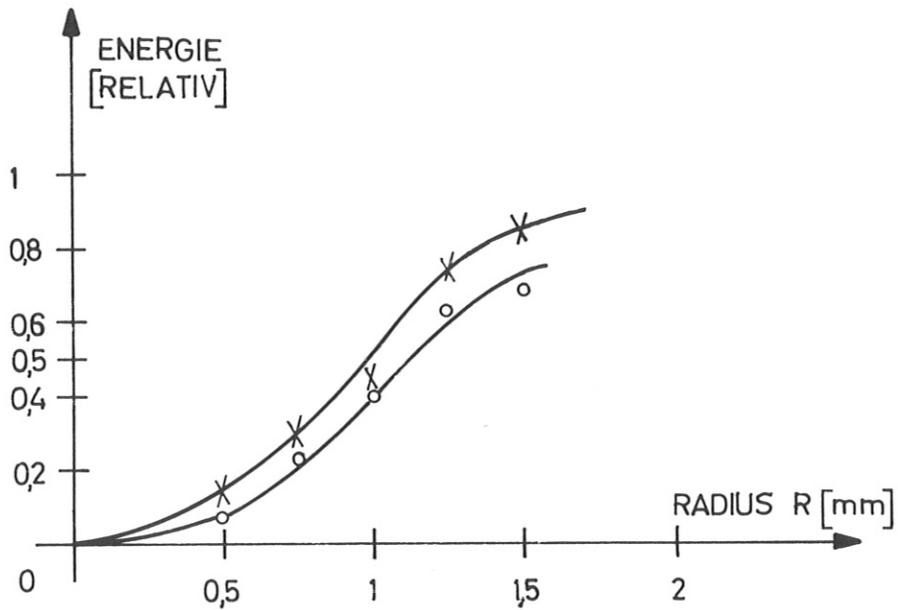


Abb. 31
Winkeldivergenzmessung, Abstand der Blenden 100 cm

$$\varphi = 2.5 \cdot 10^{-4} \text{ rad.}$$

Dieser Wert fällt innerhalb der Messgenauigkeit von $\sim 10\%$ mit dem für Beugungsbegrenzung erwarteten Wert zusammen. Für die Verstärkungsmessungen wurde nur mit dem inneren "Kern" von 2 mm Durchmesser gearbeitet. Der Fehler, den man dann bei der direkten Verwendung von Gleichung (25) macht, lässt sich so abschätzen und die Ergebnisse korrigieren. Die Länge der Verstärkungsstrecke darf nicht zu gross werden, da sonst die Pulsenergie (auf dieser Strecke) auf eine zu grosse Fläche "verdünnt" wird, d.h. die Eingangsenergie $E(0)$ aus Gleichung (25) würde vom Ort des Verstärkers abhängen. Soll sich die Fläche nicht mehr als um 10% vergrössern, so lässt sich die Länge der erlaubten Verstärkungsstrecke angeben:

$$\frac{\tau_1^2 \pi}{(\tau_1 + \varphi l_{max})^2 \pi} = 1.1 \quad \text{oder} \quad l_{max} = 22 \text{ cm}$$

Die schnelle Anregung des Oszillators mit Hilfe der koaxialen Blitzlampe dient dem Ziel, die gesamte Oszillatorenergie möglichst in einem ersten Puls auszukoppeln. In Abb. 32 ist der Intensitätsverlauf der Lampe aufgezeichnet, sie hat eine Anstiegszeit von 500 nsec und ist nach 2,5 μ sec auf den halben Wert abgefallen.

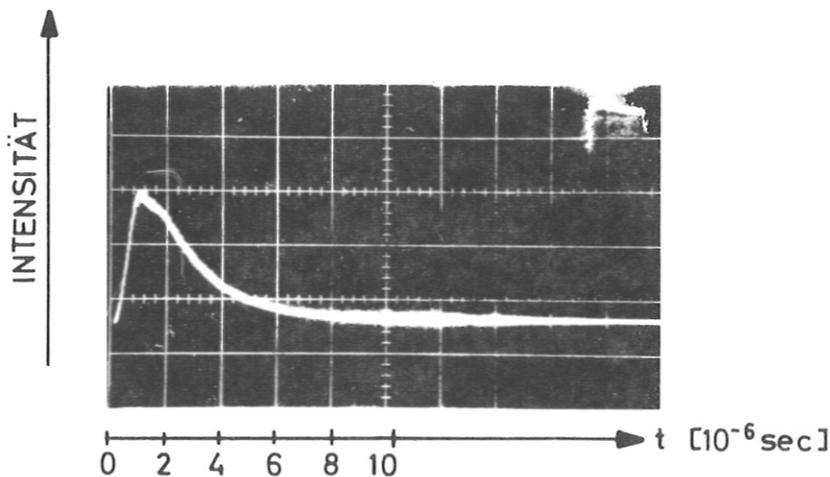


Abb. 32

Intensitätsverlauf der Oszillatorlampe

Die im freischwingenden Betrieb erzielbare Energie hängt stark vom Fülldruck des CF_3J -Gases ab. Bei der Küvette von 0,5 cm Durchmesser war der maximale Druck 300 Torr, während bei einem Durchmesser von 1 cm der günstigste Druck 100 Torr betrug. Dieser Sachverhalt lässt sich zum Teil darauf zurückführen, dass bei kleinerem Küvettendurchmesser der Druck höher sein muss, damit das gesamte Licht absorbiert wird. In Abb. 33 ist für die 1 cm-Küvette die Abhängigkeit der Laserenergie vom Druck dargestellt.

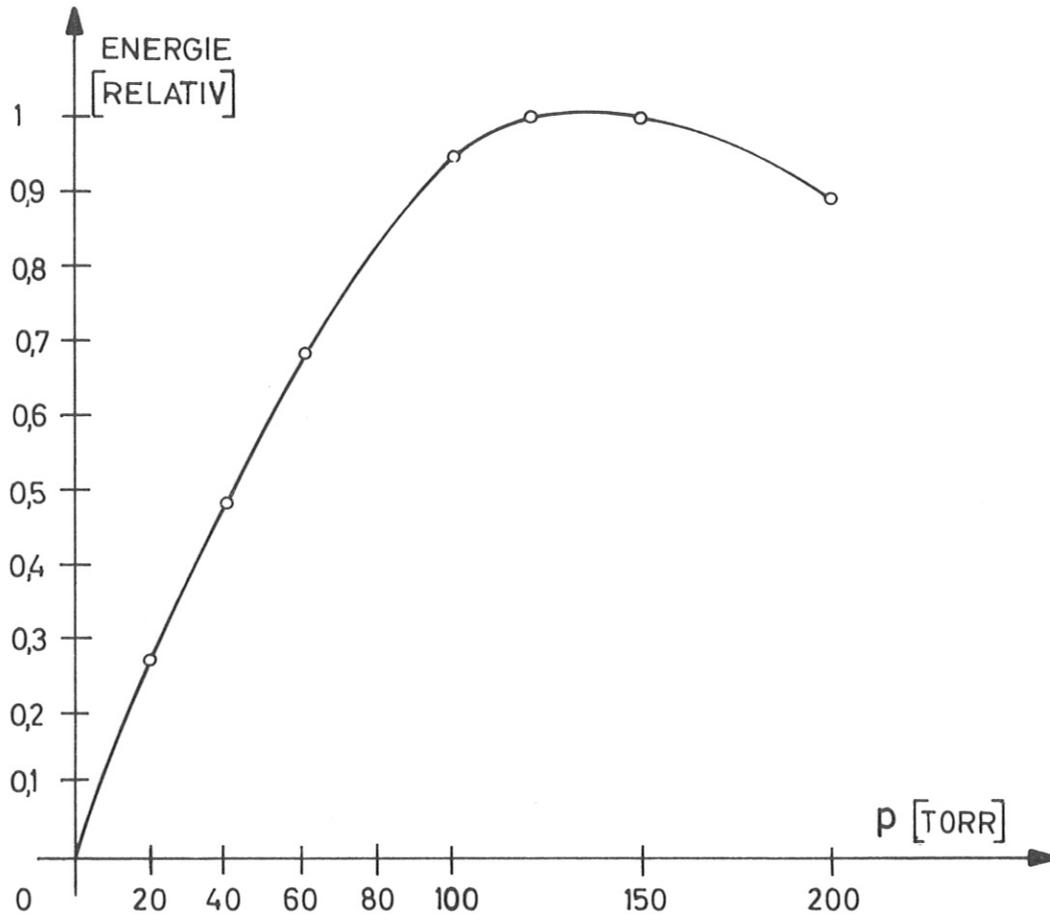


Abb. 33

Energie im freischwingenden Betrieb in Abhängigkeit vom Druck normiert auf den Maximalwert.
Durchmesser der Laserküvette: 1 cm

Für eine Diskussion der Druckabhängigkeit sei auf die Literaturstellen /35/ und /5/ verwiesen.

Die vom Oszillator abgegebene Energie wird in mehreren Pulsen emittiert, von denen der erste die höchste Intensität besitzt. In Abb. 34 ist der Intensitätsverlauf eines solchen Pulszuges wiedergegeben:

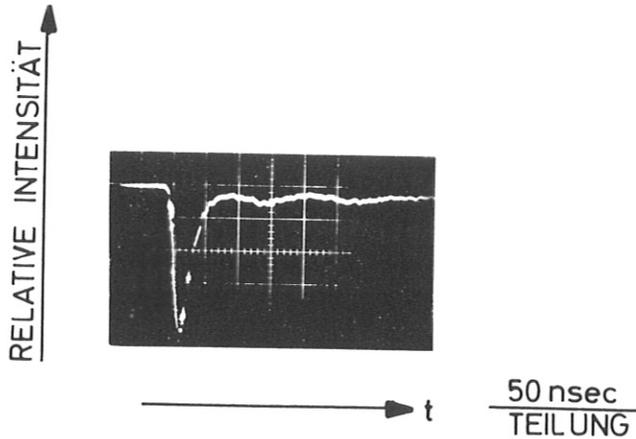


Abb. 34

Pulszug eines Laseroszillatorsignals ("Idefix") Multimodenbetrieb
Resonatorlänge 30 cm, Zeitablenkung 50 nsec/cm

In diesem Fall emittierte der Oszillator allerdings mehrere Moden (offene Blende), die Resonatorlänge betrug 30 cm. Die Halbwertsbreite des Pulses war ca. 20 nsec. Dem ersten Puls folgen eine Serie von weiteren Pulsen, die aber nur noch maximal 10 % der Leistung des ersten Pulses erreichen. Die relative Energie der einzelnen Pulse lässt sich aus diesen Oszillogrammen nicht ermitteln, da man die Fläche unter der Intensitätskurve nicht hinreichend genau abschätzen kann. Integriert man den Pulszug auf, so erhält man ein genaues Bild der Energieverteilung. Misst man zusätzlich die Energie des gesamten Pulszuges, so lässt sich die Energie im ersten Puls angeben. Abb. 35 zeigt die Integration eines solchen Pulszuges. In diesem Fall handelt es sich um einen Monomoduspulszug, wie er für die eigentliche Verstärkungsmessung benützt wurde. Die Gesamtenergie beträgt 8 mJ von denen 60 % im ersten "Gain-switch-"Puls enthalten sind. Die Halbwertsdauer dieses Pulses ist 100 nsec, was sich aus den gegenüber den Verhältnissen von Abb. 34 vergrößerten Resonatorabstand von 250 cm ergibt. Die mittlere Leistung des Pulses ist 80 kW, die Leistungsdichte $\sim 1,2 \text{ MW/cm}^2$ und die erzielte Energiedichte 25 Joule/Liter. Der Oszillator war bei diesen Versuchen mit 300 Torr CF_3J gefüllt.

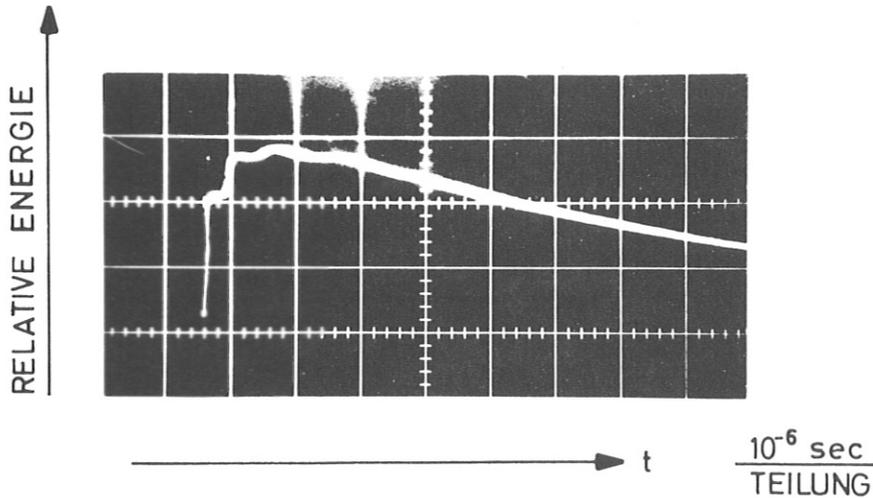


Abb. 35

Relative Energien der einzelnen Pulse,
 Monomodenbetrieb, Resonatorlänge 250 cm,
 Zeitablenkung 1 μ sec/cm

Nimmt man das Ergebnis der Messungen des Wirkungsquerschnittes für stimulierte Emission vom nächsten Abschnitt voraus, $\sigma \approx 0,7 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$ bei 300 Torr, so lässt sich die in Kapl B/c entwickelte Vorstellung von der Energie und der Leistung des "Gain-switch-"Pulses überprüfen. Für die Berechnung der Pumprate wird angenommen, dass eine Teilchenzahl entsprechend 5 mJ in 2 μ sec auf eine Querschnittsfläche von $0,03 \text{ cm}^3$ erzeugt wurden:

$$t_p = 2 \cdot 10^{-6} \text{ sec}$$

$$P = 5,25 \cdot 10^{23} \text{ Teilchen/cm}^2 \text{ sec}$$

$$\sigma = 7 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$$

Mit diesen Werten lassen sich die optimalen Resonatorgrößen berechnen. Nach Gl. (20) und (21) gilt:

$$l = 1,7 \cdot 10^8 P \cdot t_p^2 \sigma \approx 230 \text{ cm}$$

und

$$(R_1 R_2) = l^{-0,8} P t_p \sigma = 0,57$$

Die mittlere Pulsleistung wird dann nach Gleichung (22)

$$\bar{L} = 2,4 \cdot 10^{-18} P = 1,27 \text{ Mw/cm}^2$$

Die Übereinstimmung mit den Messwerten darf in Anbetracht der Annahmen, die bei der Herleitung der Gleichungen (20) bis (22) gemacht wurden, als gut bezeichnet werden.

Die Eingangsenergiegedichte $E(o) = 5 \text{ mJ pro } 0,03 \text{ cm}^2$ Fläche reicht aus, um den Verstärker im Grosssignalbereich zu betreiben, falls σ die aus Gleichung (30) folgende Bedingung erfüllt:

$$\sigma \geq \frac{2}{hE(o)} = 1,5 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$$

Das heisst, für den erwarteten Bereich von σ (1 bis $5 \cdot 10^{-18}$) sollte die Eingangsenergie ausreichen, um den Verstärker in Sättigung zu betreiben. Der Oszillatorpuls erfüllt daher die folgenden beiden Bedingungen:

- a) die Energieflächendichte des Ausgangspulses ist in ihrem Verlauf bekannt, und kann in erster Näherung als konstant über einen Querschnitt von 2 mm \varnothing angesehen werden.
- b) Die Flächendichte ist so hoch, dass Verstärker mit einem Wirkungsquerschnitt für induzierte Emission σ , der grösser als $1,5 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$ ist, im Sättigungsbereich betrieben werden können.

Die hier gewählte Art der Riesenpulserzeugung durch "Gain-switching" hat gegenüber den konventionellen Methoden (Kerr-, Pockelszelle, Drehspiegel, usw.) den Vorteil, ohne Schaltelemente auszukommen. Monomodepulse sind mit dieser Technik relativ leicht zu erhalten, da keine störenden inhomogenen Materialien im Strahlengang stehen. Ebenfalls durchgeführte Q-switch-Versuche mit einer Pockelszelle mit einem deuterierten (KD_2PO_4) KDP-Kristall lieferten zwar vergleichsweise etwas höhere Pulsenergien (20 mJ), die Ausleuchtung des Querschnitts und die Divergenz des Strahls waren jedoch so schlecht, dass die Pulse für die Verstärkungsmessungen ungeeignet waren.

b) Verstärkungsexperiment

b 1) Homogenität des Verstärkers

Eine weitere Voraussetzung für die Anwendung der Verstärkungsformel nach Gleichung (25) besteht darin, dass Verlustprozesse im Verstärker vernachlässigt werden können. Als Verlustprozesse kommen in diesem Fall die Streuung des Lichts an CF_3J -Molekülen und die Brechung des Lichtstrahls an eventuell auftretenden Druckwellen im photolysierten Gas in Frage. Die erste Möglichkeit lässt sich leicht testen, indem

man die Verluste im Verstärker mit und ohne Photolyse untersucht. Solange Streuung an kaltem Gas keine Rolle spielt, sollte das Verhältnis der Anzeigen der beiden Dioden vor und nach dem Verstärker unabhängig vom Druck des CF_3J -Gases sein. Innerhalb der Messgenauigkeit konnte bis zu einem Druck von 500 Torr (höherer Druck war aus technischen Gründen nicht möglich) keine Änderung des Diodensignals beobachtet werden.

Das Auftreten von Druckwellen im beleuchteten Gas als Folge der inhomogenen Absorption des Blitzlampenlichts lässt sich mit Hilfe der in Abb. 36 gezeigten Anordnung testen.

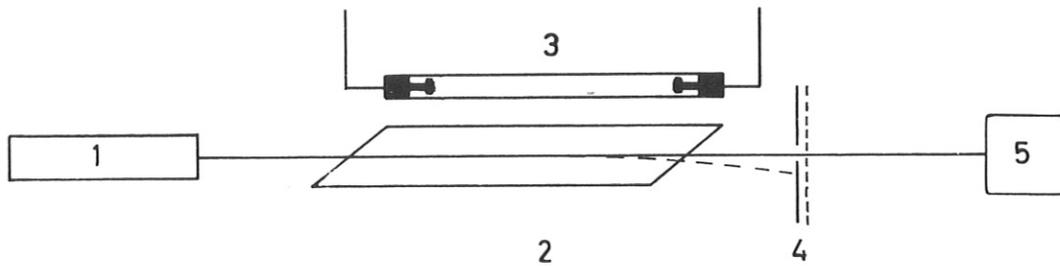


Abb. 36

Anordnung zur Messung von Druckwellen

- | | |
|----------------|--------------------------------|
| 1) He:Ne-Laser | 3) Blitzlampe |
| 2) Verstärker | 4) Blende mit Compurverschluss |
| | 5) SEV |

Ein Gaslaserstrahl durchtritt den Verstärker und wird hinter einer engen Blende (4) vom SEV registriert. Um den SEV nicht zu überlasten, ist die Blende mit einem Compurverschluss gekoppelt, der nur während des Experiments geöffnet wird (Öffnungszeit $5 \cdot 10^{-3}$ sec). Wird der Strahl durch Druckwellen abgelenkt, so kann er die Blendenöffnung nicht voll passieren, das Signal am SEV wird abgeschwächt. In Abb. 37 ist im ersten Bild ein Blindschuss mit abgedeckter Blitzlampe dargestellt. Die Schwankungen im SEV-Signal rühren von Fluktuationen im He:Ne-Laserstrahl her. Auf der zweiten Spur ist das Blitzlampensignal aufgezeichnet. Im Bild 2 ist das Ergebnis des Versuchs mit 20 Torr dargestellt. Der erste Ausschlag des SEV-Signals rührt vom Blitzlampensignal her, da der SEV nicht völlig abgedeckt war. Nach 35 μsec

Abb. 37 Druckwellen im CF_3J -Gas

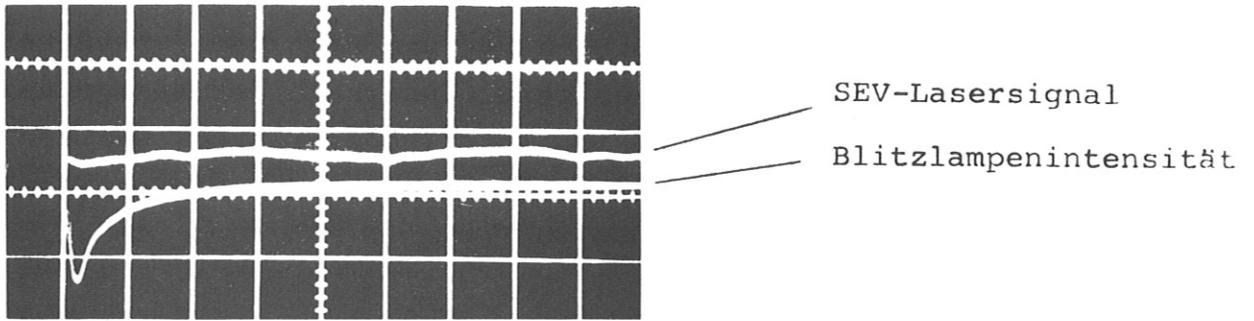


Bild 1

Blindschuss - abgedeckte Blitzlampe
10 $\mu\text{sec}/\text{cm}$ Zeitablenkung

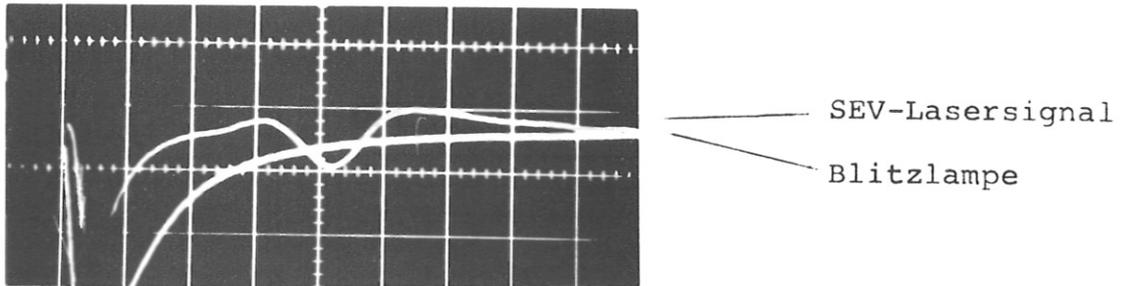


Bild 2

20 Torr CF_3J , 10 $\mu\text{sec}/\text{cm}$ Zeitablenkung,
nach 35 μsec wird eine Druckwelle
beobachtet.

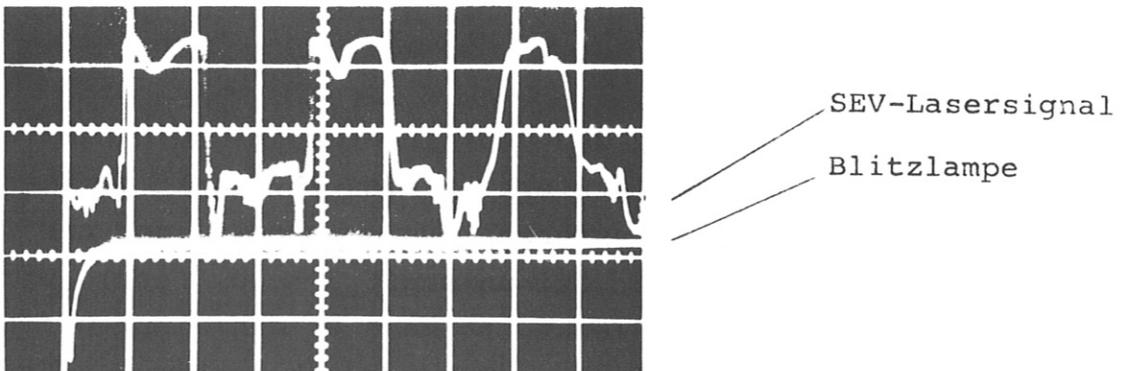


Bild 3

100 Torr CF_3J , 50 $\mu\text{sec}/\text{cm}$ Zeitablenkung,
die Druckwelle wird mehrfach an der
Küvettenwand reflektiert

erreicht eine Druckwelle den Ort des Gaslaserstrahls. Er wird so abgelenkt, dass zuerst mehr Licht durch die Blende gelangt (Blende und Laserstrahl waren nicht genau justiert), schliesslich wird die Ablenkung so gross, dass die Intensität sinkt. Nach ca. 30 μ sec ist die Druckwelle durch den Laserstrahl durchgelaufen, das Signal erreicht seinen alten Wert. Bei einem Fülldruck von 100 Torr CF_3J (Bild 3) erscheint zum selben Zeitpunkt nach dem Blitz die Druckwelle, die jetzt so stark ist, dass der Gaslaser für eine bestimmte Zeit überhaupt nicht mehr auf den SEV trifft. Die Welle wird fast ohne Verluste mehrmals an der Küvettenwand reflektiert. Aufnahmen mit geringer Zeitauflösung (1 msec/cm) zeigen, dass selbst nach noch 5 msec merkbare Ablenkungen des Gaslasers zu beobachten sind. Versuche mit Luft als Füllgas, sowie mit Blitzlampen, die als Filter einen CF_3J -Gasmantel besitzen, ergaben, dass diese Druckwellen eindeutig auf die inhomogene Absorption im Gas zurückzuführen sind. Die Stärke der Druckwellen hängt vom Fülldruck und damit von der Absorptionslänge im Gas ab sowie von der Intensität der Blitzlampe; bei geringerer Lampenenergie werden die Ablenkungen schwächer. Die Ankunftszeit der Druckwelle entspricht ihrer Laufzeit vom Küvettenrand zum Ort des Laserstrahls.

Diese Ergebnisse zeigen, dass die Verlustprozesse im Verstärker nur unter bestimmten experimentellen Bedingungen vernachlässigt werden können. Die inhomogene Absorption über den Laserquerschnitt hinweg führt zur Ausbildung von Druckwellen, die in der Küvette mehrmals reflektiert werden. Nur bei niedrigem Druck und geringer Lampenintensität sind die Druckwellen so schwach, dass die Energieverstärkungsformel Gleichung (25) angewendet werden kann. Die Streuung des Laserlichts an CF_3J -Molekülen kann dagegen stets vernachlässigt werden.

b 2) Messung des Wirkungsquerschnitts für induzierte Emission
in Abhängigkeit vom Druck

Für die Messung von σ wurden die beiden Dioden (vor und nach dem Verstärker) im Blindschuss aufeinander abgeglichen und die Verstärkung aus der Änderung des Verhältnisses beider Diodensignale bestimmt. Gleichzeitig mit der Energieverstärkung wurde die zeitliche Verzögerung relativ zum Blitzlampenpuls gemessen. Abb. 38 zeigt ein Beispiel einer solchen Messung. Im oberen Oszillogramm sind die beiden integrierten Pulse aufgenommen. Spur a ist das integrierte Signal vor dem Verstärker und Spur b ist das entsprechende verstärkte Signal. Dem unteren Oszillogramm (Bild 2) entnimmt man, dass diese Messung

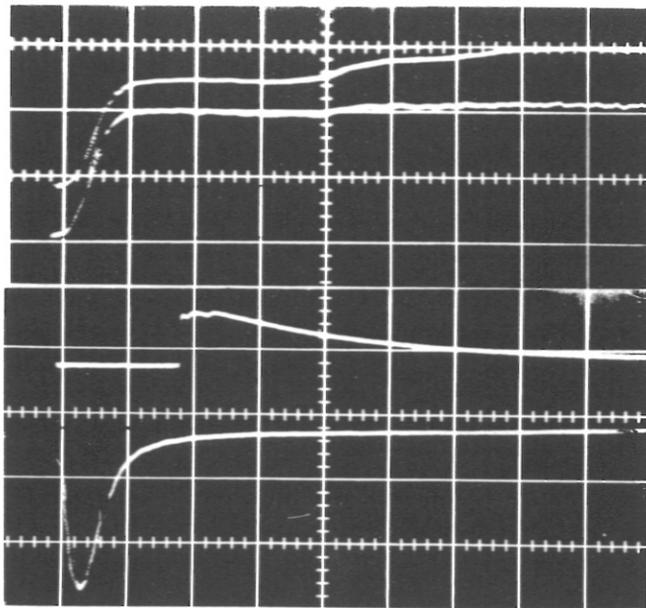


Bild 1

a integrierter Puls vor dem Verstärker

b verstärktes Signal

100 nsec/cm

Bild 2

a integriertes Signal

b Blitzlampe

10 μ sec/cm

Abb. 38

Beispiel einer Verstärkungsmessung

18 μ sec nach Blitzpulsbeginn gemacht wurde. So wurden z.B. bei 20 Torr CF_3J Druck 20 μ sec nach Pumpbeginn folgende Werte gemessen:

Im Grossignalbereich: $E(o) = (2.6 \pm 0.15) \cdot 10^{17}$ Photonen/cm²

$$V = 1.65 \pm 0.05$$

und im Kleinsignalbereich: $E(o) = (1.45 \pm 0.08) \cdot 10^{14}$ Photonen/cm²

$$V = 5 \pm 0.2$$

Mit diesen beiden Werten ergeben sich zwei Funktionen für $f_1(\sigma)$ und $f_2(\sigma)$ (siehe Kap. D/a), die in Abb. 39 dargestellt sind.

In logarithmischer Darstellung erhält man zwei Geraden, aus deren Schnittpunkt direkt der Wert von σ abgelesen werden kann, in diesem Fall ist $\sigma = 6,1 \cdot 10^{-18}$ cm² und die zugehörige Inversion ist

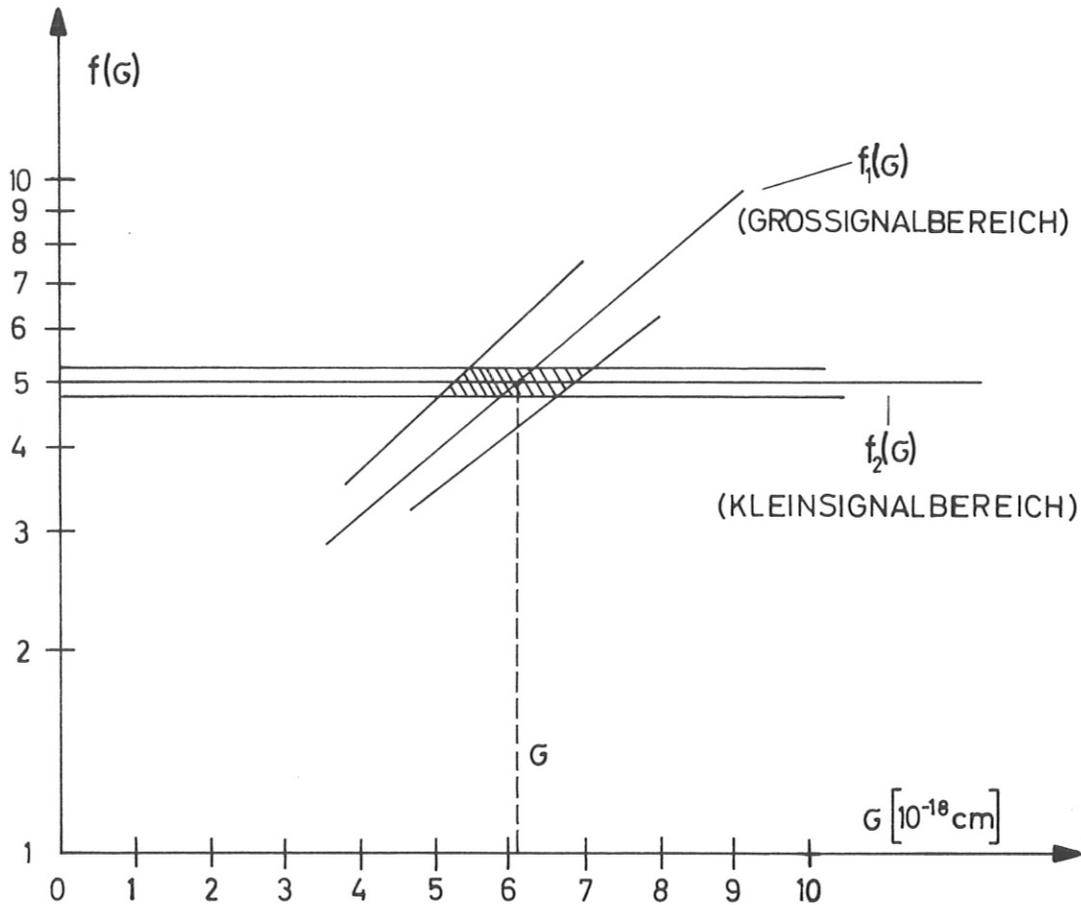


Abb. 39

Auswertung der Messergebnisse für 20 Torr CF_3J

$$\Delta n \ell = \frac{\ln 5}{6 \cdot 10^{-18}} = 2.64 \cdot 10^{17}$$

Die Inversionsdichte ergibt sich zu $\Delta n = 1,2 \cdot 10^{16}$ Teilchen/ cm^3 bei einer Länge ℓ von 22 cm.

Der Fehler, den man bei dieser Messung macht, hängt ab a) von der Messgenauigkeit der Verstärkung, die ca. $\pm 5\%$ beträgt und b) von der Genauigkeit der Energieeichung, die ebenfalls mit ca. $\pm 5\%$ erfolgt. In Abb. 39 ist der daraus resultierende Fehlerbereich schraffiert eingezeichnet; für σ ergibt sich demnach ein Wert von

$$\sigma_{20 \text{ Torr}} = (6 \pm 1) \cdot 10^{-18} \text{ e.u.}^2$$

Der Vorteil der Messung im Klein- und Grosssignalbereich besteht vor allem darin, dass die genaue Energieflächendichte nicht bekannt sein muss. Im Kleinsignalbereich ist die Verstärkung unabhängig von $E(o)$ gleich $V = \exp(\sigma \Delta n \ell)$. Im Grosssignalbereich mit

$$V = 1 + \frac{\Delta n \ell}{h E(o)}$$

erhält man die Ausgangsenergie aus der Integration über die Fläche

$$E_{\text{gesamt}} = \int_{\Delta F} E(o) dF + \int_{\Delta F} \Delta n \ell dF = E(o)_{\text{gesamt}} + \Delta n \ell \cdot \Delta F$$

oder

$$V_{\text{gesamt}} = 1 + \frac{\Delta n \ell}{E_g(o)} \Delta F$$

Die gemessene Gesamtverstärkung hängt also nur von der gesamten Eingangsenergie und der Fläche ab, auf die diese Energie verteilt ist. Voraussetzung dafür ist natürlich, dass der kleinste Wert von $E(o)$ auf der Fläche ΔF immer noch im Grosssignalbereich liegt.

Der Wirkungsquerschnitt für induzierte Emission σ wurde bei verschiedenen Ausgangsdrucken von CF_3J bestimmt, wobei darauf geachtet wurde, dass die Messung nicht durch die Druckwellen gestört wurde. Durch eine geeignete Wahl des Zeitpunktes der Messung ist das immer möglich. Das Ergebnis dieser Messungen ist in Abb. 40 zusammengestellt.

Aus den Werten von σ lassen sich die Bandbreiten $\Delta \nu$ des Übergangs berechnen:

$$\Delta \nu = \frac{Ac^2}{8\pi \nu^2 \sigma} = \frac{5.5 \cdot 10^{-9}}{\sigma}$$

In Abb. 41 ist die so berechnete Linienbreite als Funktion des Druckes dargestellt.

Setzt man für $\Delta \nu$ den Ausdruck an /36/

$$\Delta \nu = v_s \sigma_{ow} \cdot n$$

wobei v_s die gaskinetische Geschwindigkeit ist und σ_{ow} der optische Wirkungsquerschnitt für Stossverbreiterung sowie n die Teilchendichte

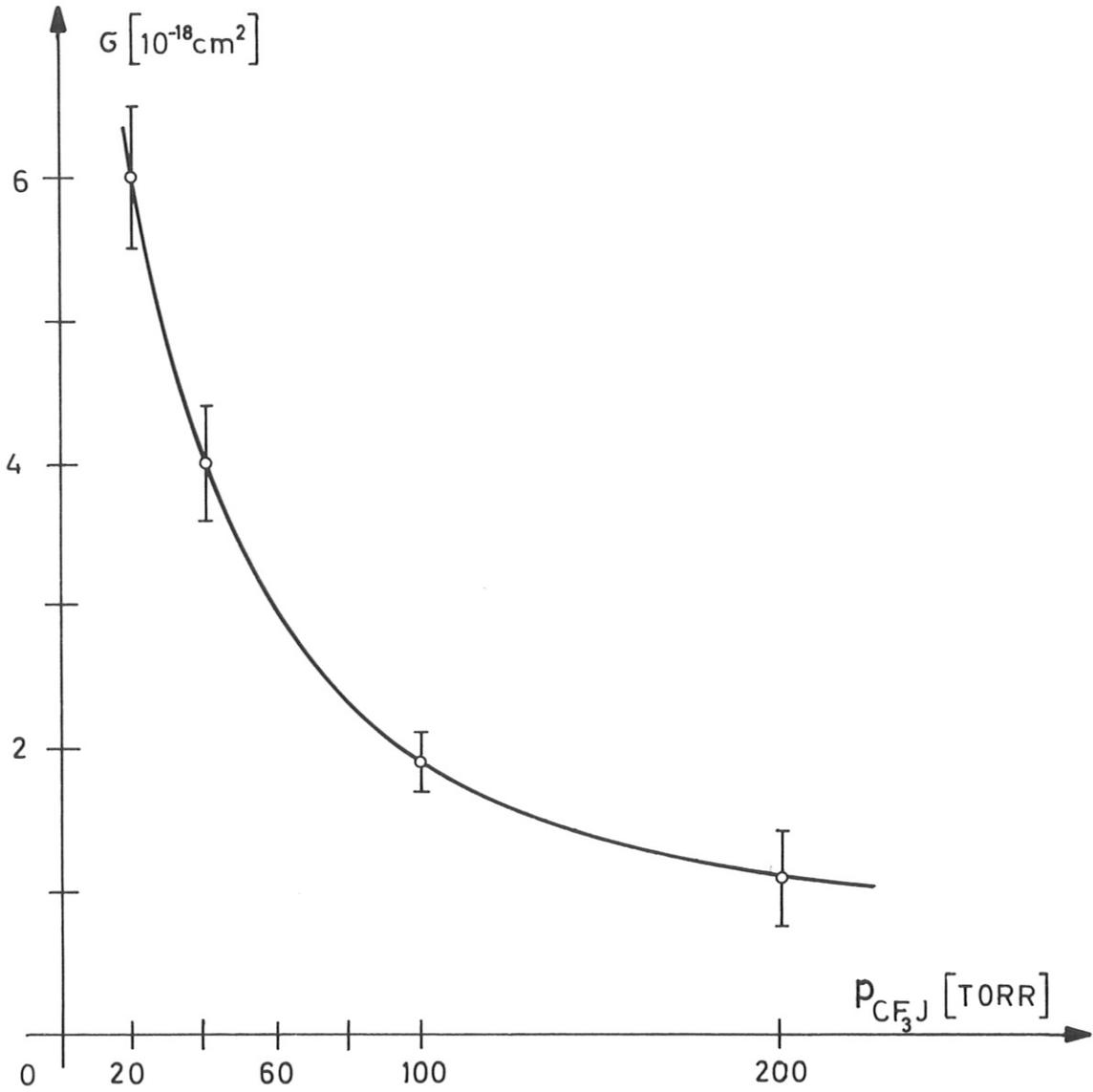


Abb. 4o

Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts für induzierte Emission σ vom CF_3J -Druck

pro cm^3 , so erhält man für σ_{CW} folgenden Wert:

$$\sigma_{\text{CW}} = 1.5 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2$$

Im Grenzfall $p \rightarrow 0$ sollte sich die Dopplerlinienbreite ergeben. Gemessen wird:

$$\lim_{p \rightarrow 0} \Delta \nu = (4 \pm 1) 10^8 \text{ Hz}$$

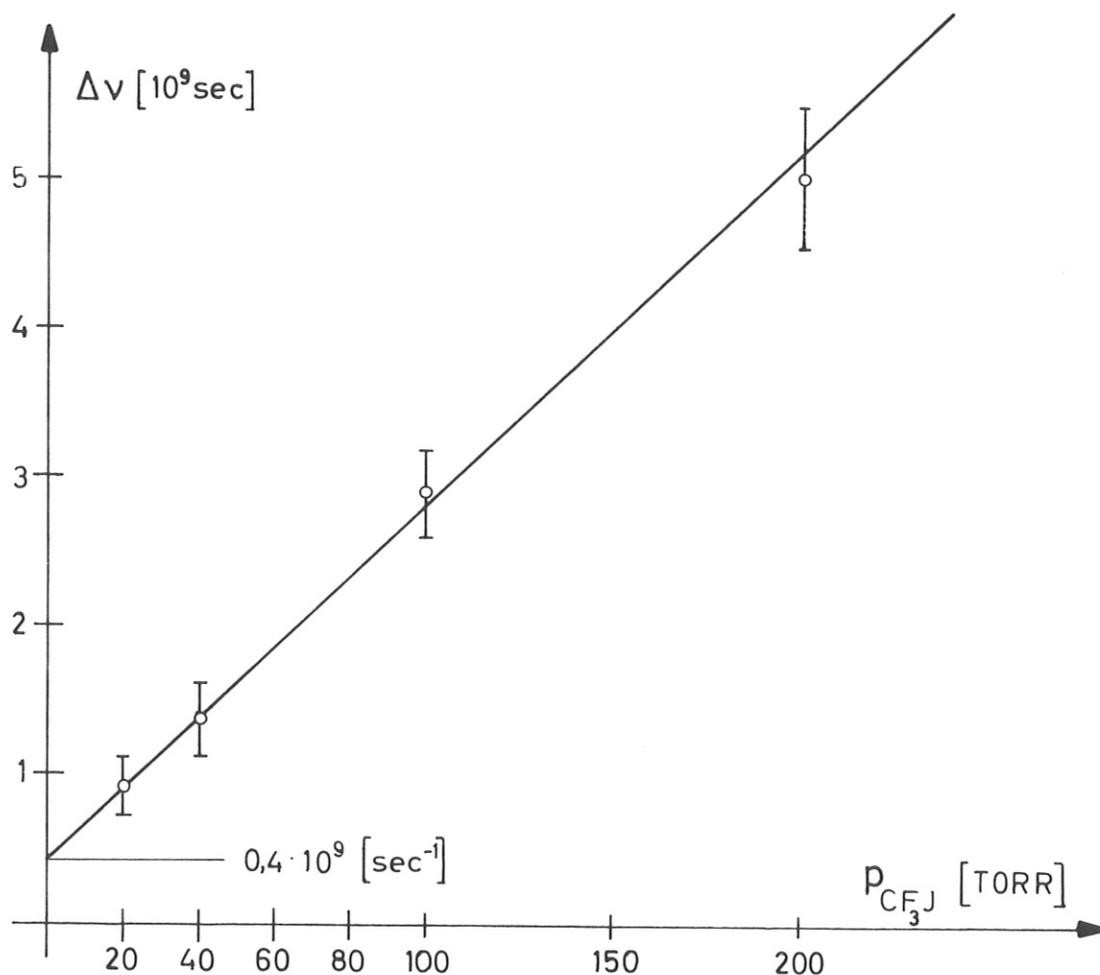


Abb. 41

Linienbreite als Funktion des Druckes

Ein Vergleich mit der Linienbreite des Dopplerprofils für $T = 300 \text{ K}$ gemäss

$$\Delta\nu_D = 2\nu_0 \sqrt{\frac{2kT}{Mc^2} \ln 2} = 2.55 \cdot 10^8 \text{ Hz}$$

zeigt, dass die Temperatur im Gas als Folge der Photolyse um etwa 200 K angestiegen sein muss.

b 3) Einfluss eines inhomogenen Magnetfeldes auf die Verstärkung
Befindet sich der Verstärker in einem inhomogenen Magnetfeld, so sollte als Folge der Linienaufspaltung und Verschiebung die Verstärkung sinken (siehe Kap B/f). Mit der in Kapitel D, Abschnitt b, beschriebenen Magnetfeldanordnung wurden Verstärkungsmessungen durchgeführt, um die Grösse dieses Effektes zu ermitteln. Die Messungen erfolgten im Kleinsignalbereich, wobei darauf geachtet wurde, dass die Anfangsinversion von Messung zu Messung konstant blieb. Als ein relatives Mass für die erzeugte Inversion wurde dabei die Blitzlampenintensität bei jedem Versuch mitgemessen und die Verstärkung entsprechend korrigiert. Aus

$$V = \exp(\sigma \Delta n l)$$

erhält man im Magnetfeld einen effektiven Querschnitt σ_{eff} von

$$\sigma_{\text{eff}} = \frac{\ln V}{\Delta n l}$$

Das heisst, σ ist proportional dem Logarithmus der Verstärkung. Falls σ für einen bestimmten Wert des Magnetfeldes (z.B. $H = 0$) bekannt ist, so lässt sich die absolute Grösse sofort angeben. Das Ergebnis dieser Messungen ist in Abb. 42 dargestellt. Kurve 1 beschreibt die Verhältnisse bei 20 Torr und Kurve 2 die bei 100 Torr CF_3J .

Bereits geringe Magnetfeldstärken haben einen starken Einfluss auf die effektive Verstärkung. Felder von $3,5 \text{ k}\Gamma$ im Maximum verringern den Querschnitt σ auf $1/6$ des ursprünglichen Wertes bei 20 Torr. Der Einfluss des Magnetfeldes ist umso kleiner, je breiter die ursprüngliche Linie ist. Bemerkenswert ist, dass ab einer bestimmten Magnetfeldstärke σ_{eff} nur noch vom Magnetfeld aber nicht mehr von der ursprünglichen Linienbreite abhängt. Ab $5 \text{ k}\Gamma$ fallen beide Kurven innerhalb der Messgenauigkeit zusammen. Dieser Sachverhalt wird nach Gleichung (39) von der Theorie richtig vorausgesagt. Vergleicht man die Rechnung mit dem Experiment, so ergibt sich, dass die Messung einen grösseren Wert von σ liefert als vorausgesagt. Diese Abweichung dürfte von der Tatsache herrühren, dass im Experiment ein Bereich von 4 cm im Inneren der Spule vorliegt, in dem der Gradient nur schwach ist. In der Theorie wird aber ein konstanter Gradient vorausgesetzt. Die qualitative Abhängigkeit von σ_{eff} von der maximalen Magnetfeldstärke wird dagegen bestätigt.

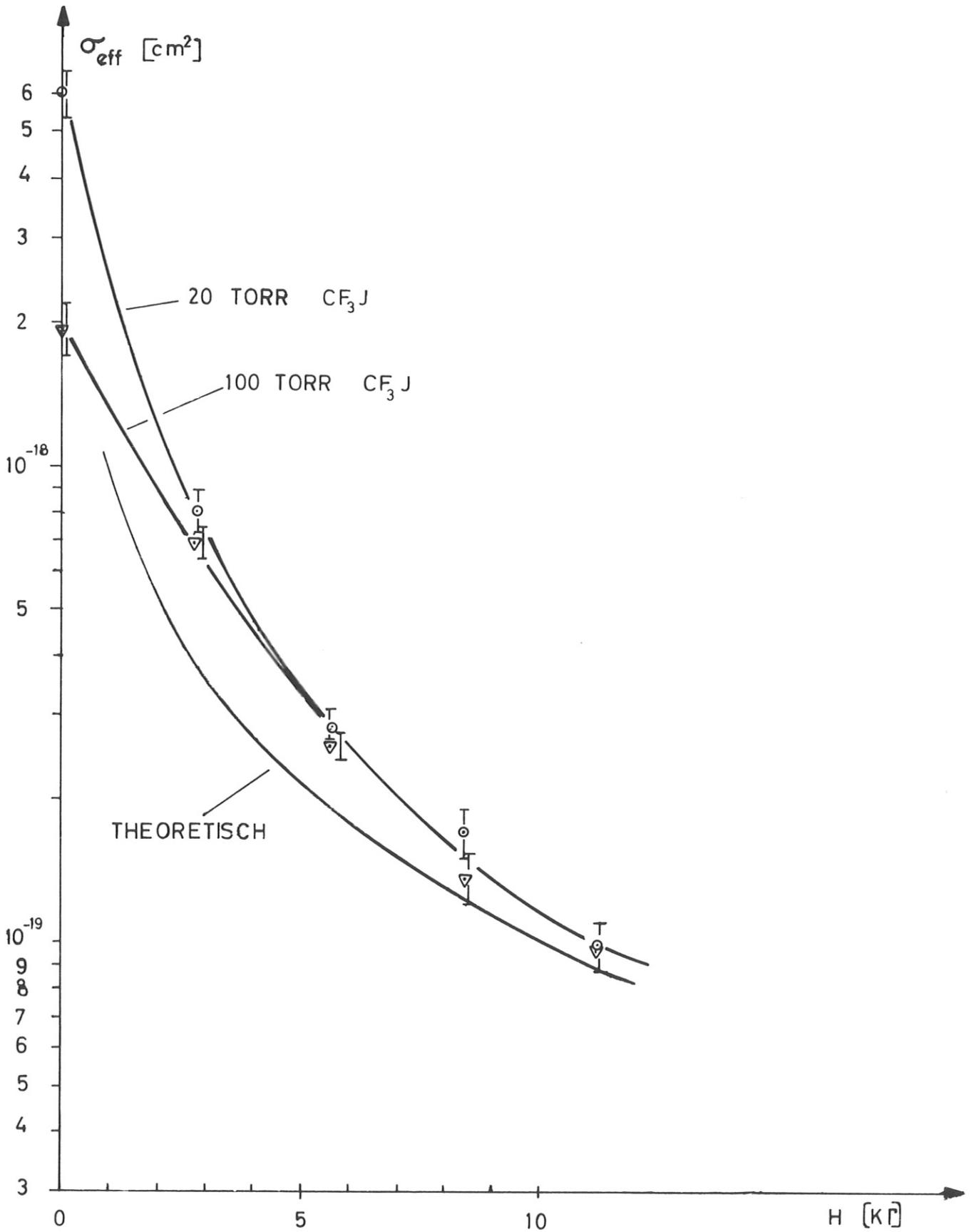


Abb. 42

Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts für induzierte Emission vom maximalen Magnetfeld

b 4) Die Inversion als Funktion der Zeit

Der Einfluss der chemischen Prozesse auf die Inversion $\Delta N = N_{J^*} - (1/2)N_J$ wurde mit Hilfe zeitabhängiger Verstärkungsmessungen untersucht. Die Messungen wurden wieder im Kleinsignalbereich durchgeführt, wobei die Anfangsinversion konstant gehalten wurde (Kontrolle durch die Blitzlampenintensität). Ein besonderes Problem bei diesen Untersuchungen bilden die Druckwellen. Ihre Ausbildung führt zu einer Schwankungsbreite der Ergebnisse, die nur bis zu einem CF_3J -Druck ≤ 40 Torr in erträglichen Grenzen liegt.

Für 20 Torr sind die Ergebnisse in Abb. 43 zusammengefasst. Die Verstärkung nimmt zu, bis etwa 1000 μsec nach Blitzbeginn, fällt dann schliesslich langsam ab und erreicht bei $\sim 5,5$ msec den Wert 1.

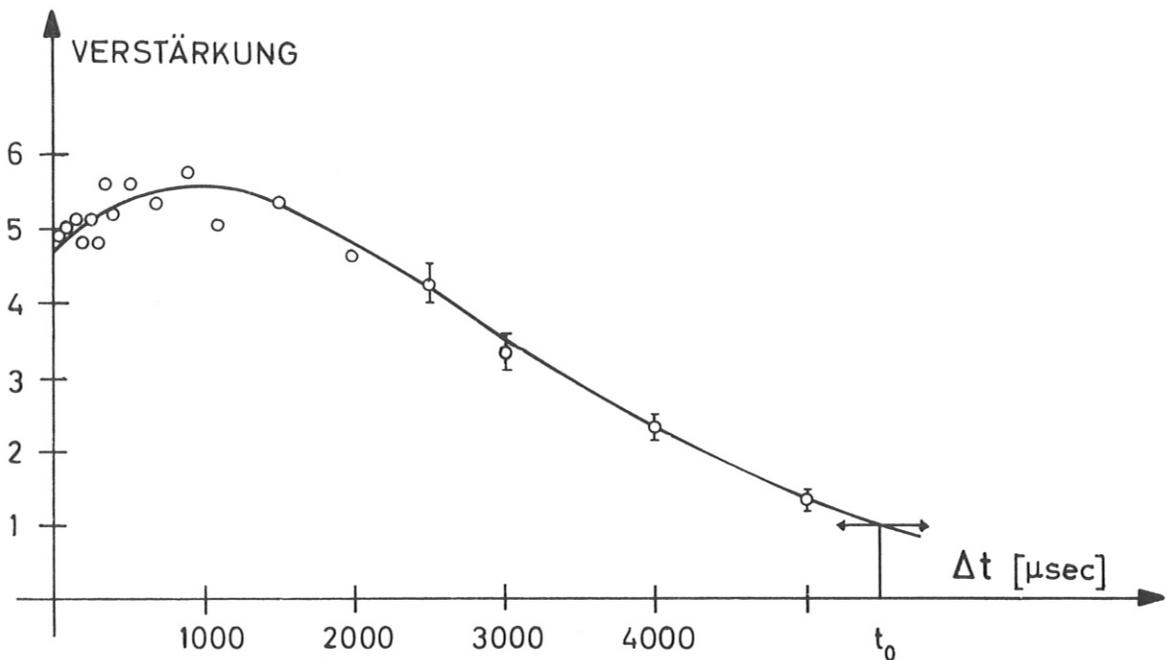


Abb. 43

Die Verstärkung als Funktion der Zeit bei 20 Torr CF_3J

Mit $V = \exp(\sigma \Delta n l)$ lässt sich hieraus die Abhängigkeit der Inversion von der Zeit angeben

$$\Delta n \sim \ln V,$$

die in Abb. 44 in relativen Einheiten dargestellt ist.

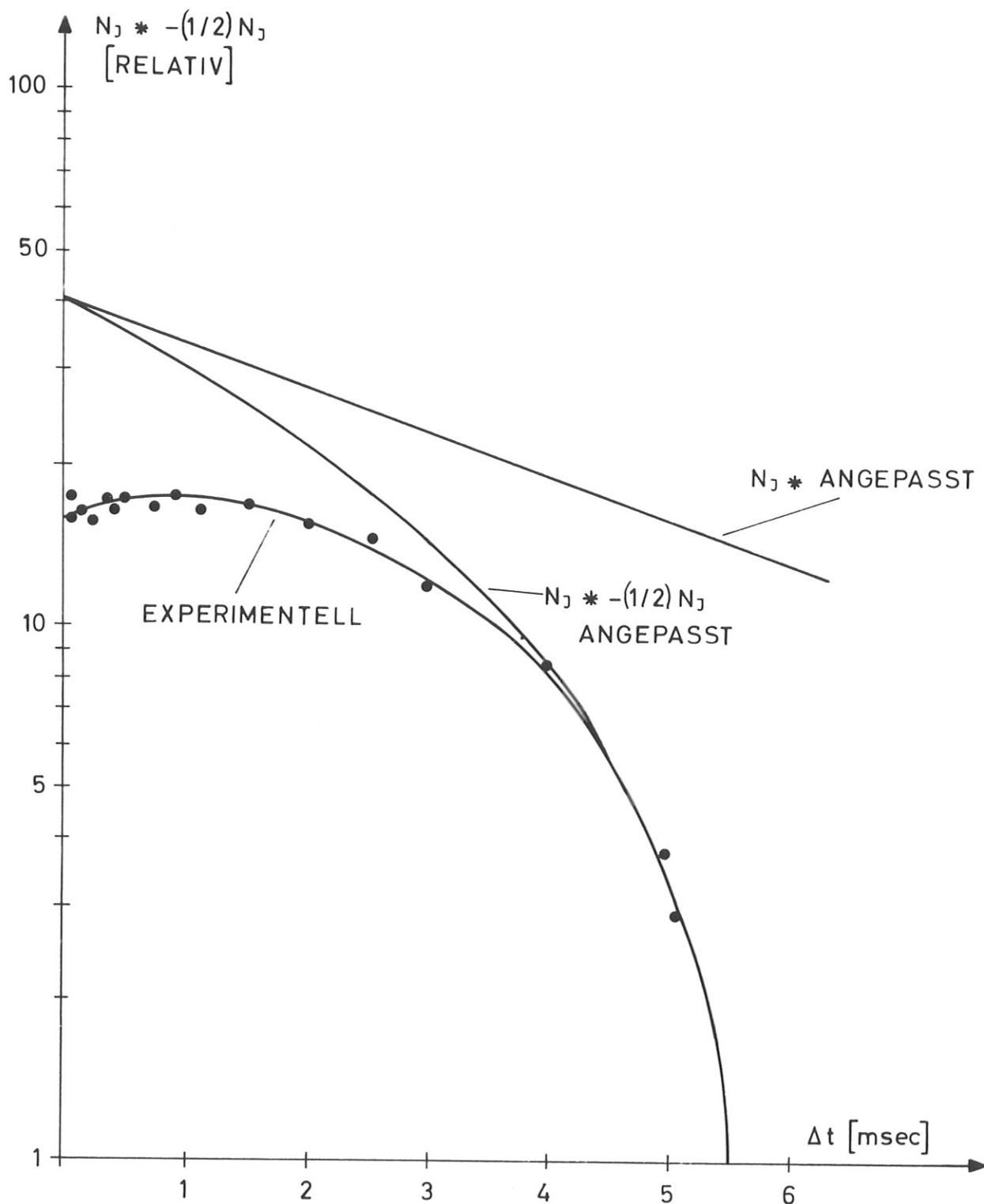


Abb. 44

Inversion als Funktion der Zeit $P_{CF_3J} = 20$ Torr

In Abb. 45 und 46 sind die Ergebnisse von entsprechenden Messungen für einen Druck von 40 Torr und für eine Mischung von CF_3J mit C_2F_6 im Verhältnis 1 : 1 bei einem Gesamtdruck von 40 Torr eingezeichnet.

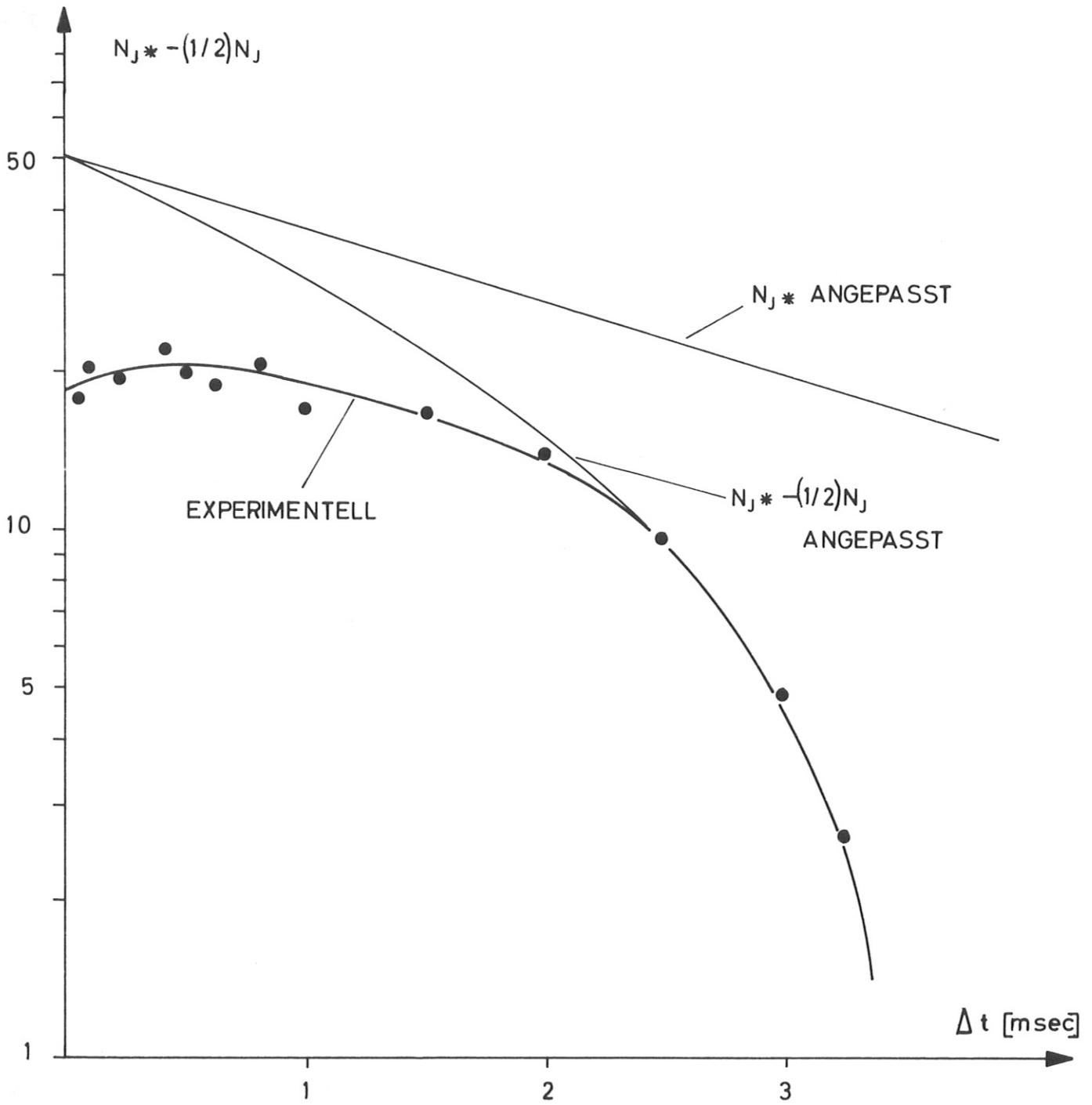


Abb. 45

Inversion als Funktion der Zeit $P_{CF_3J} = 40$ Torr

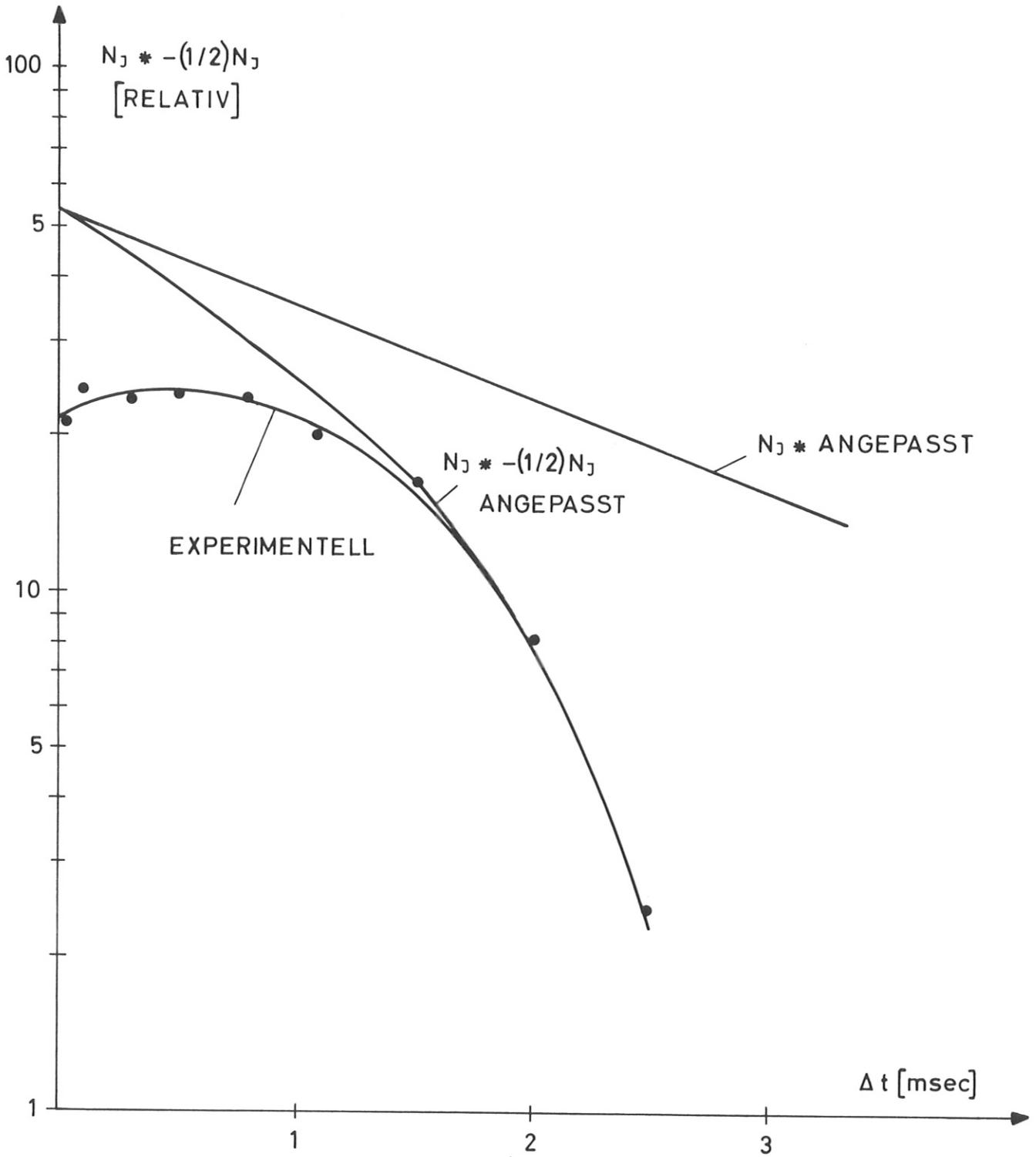


Abb. 46

Inversion als Funktion der Zeit für eine Mischung $CF_3J:C_2F_6 = 1:1$; Gesamtdruck 40 Torr

Diese Verstärkungsmessungen zeigen einen völlig unerwarteten Verlauf der Inversion. Aus den Abschätzungen in Kapitel C folgte, dass die Inversion nach Beendigung des Photolysepulses stetig abnehmen sollte. Diese Abnahme sollte hervorgerufen werden durch eine Desaktivierung von angeregtem Jod durch CF_3J -Moleküle einerseits und durch Dreierstossrekombination zu molekularem Jod andererseits. Die Messungen ergeben in allen Fällen aber eine Zunahme der Inversion im Anschluss an den Photolyseprozess, die - abhängig vom Ausgangsdruck - bis $1000 \mu\text{sec}$ anhält. Die Inversion durchläuft ein Maximum und fällt schliesslich in einem Zeitbereich von mehreren Millisekunden auf Null ab. Dieser Verlauf lässt sich rein phänomenologisch durch zwei Pumpraten erklären, von denen die eine P_1 angeregtes Jod erzeugt und die andere P_2 das ursprünglich vorhandene und das nachgepumpte Jod vermindert. In Abb. 47

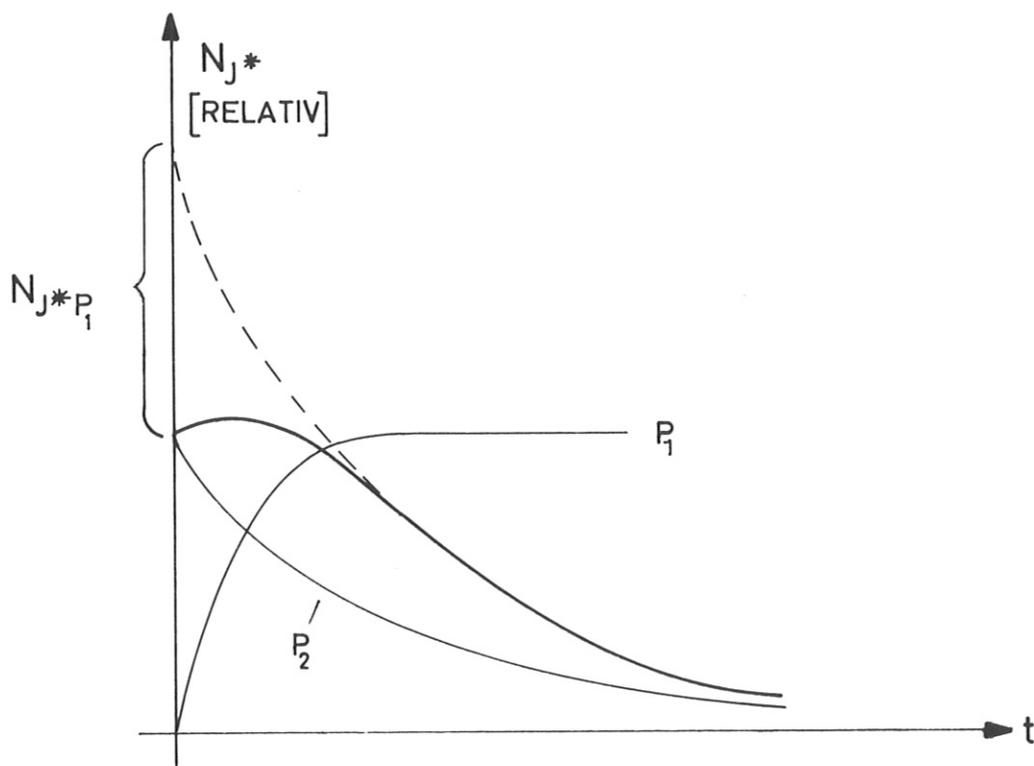


Abb. 47

Schematischer Verlauf von N_{J^*} als Folge der angenommenen Pumpraten P_1 und P_2

ist der Verlauf der Konzentration des angeregten Jods als Folge der Pumpprozesse P_1 und P_2 schematisch dargestellt. Angenommen ist hierbei, dass der Photolyseprozess in einer gegenüber den charakteristischen Zeiten von P_1 und P_2 sehr kurzen Zeitspanne erfolgt. Diese Annahme ist,

wie die Verstärkungsmessungen (Abb. 44 - 46) zeigen, gerechtfertigt. Ist der Nachpumpprozess P_1 schneller als der Desaktivierungsprozess P_2 , so fällt die Konzentration von angeregten Jodatomen schliesslich nach Massgabe von P_2 ab. Ist P_2 bekannt, so kann hieraus die Menge des nachgepumpten Jods N_{nach} ermittelt werden.

Legt man dieses Konzept zu Grunde, so sollte aus dem Abfall von N_{J^*} nach langen Zeiten die Pumprate P_2 ermittelt werden können. In Frage kommen, wie in Kapitel C beschrieben, die Desaktivierung von J^* durch CF_3J -Moleküle und die Verminderung durch eine autokatalytische Dreierstossrekombination zu J_2 . Die unterschiedlichen Zeitgesetze für die fraglichen Prozesse sollten eine Antwort auf die Frage nach dem dominierenden Prozess ermöglichen.

Die Verstärkungsmessungen liefern nur Aussagen über die vorhandene Inversion $N_{J^*} - (1/2)N_J$ und nicht über die Zahl der angeregten Jodatome. Nimmt man an, dass allein die Desaktivierung von J^* durch CF_3J die entscheidende Rolle spielt, so folgt daraus, dass das gebildete Jod im Grundzustand J in den betrachteten Zeiten erhalten bleibt. Würde es nämlich zu J_2 dimerisieren, so kommt es zu dem beschriebenen autokatalytischen Prozess. Unter diesen Voraussetzungen gilt:

$$\frac{dn_1}{dt} = -k n_1 n_c \quad , \quad \frac{dn_2}{dt} = +k n_1 n_c$$

und mit $n_1 + n_2 = \text{konstant} = n_{10}$ folgt:

$$n_1 = e^{-k n_c t} \quad , \quad n_2 = n_{10} (1 - e^{-k n_c t})$$

oder

$$\Delta n = n_1 - \frac{n_2}{2} = \frac{n_{10}}{2} (3 e^{-k n_c t} - 1)$$

(64)

Für die Zeitdauer, nach der die Inversion auf den Wert Null (die Verstärkung auf den Wert 1) abgesunken ist, gilt:

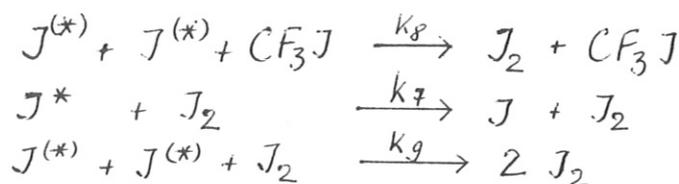
$$t_{\Delta n=0} = \frac{\ln 3}{k n_c} = 1.1 \cdot t_{1/2}$$

Das bedeutet, dass die Verstärkung zu dem Zeitpunkt gleich 1 wird, bei dem die Dichte des angeregten Jods n_1 auf ihren e-ten Teil abgesunken ist. t_0 kann dem Experiment entnommen werden und beträgt z.B. für $p_{CF_3J} = 20$ Torr 5,6 msec. Da n_0 ebenfalls bekannt ist, lässt sich k die Desaktivierungskonstante von CF_3J angeben:

$$k_1 = \frac{e u^3}{t_0 n_0} = \frac{1.1}{5.6 \cdot 10^{-3} \cdot 7 \cdot 10^{17}} = 2.55 \cdot 10^{-16} \left[\text{cm}^3/\text{sec} \right]$$

Mit diesem k lässt sich jetzt "rückwärts" nach Gleichung (64) Δn berechnen, n_{10} die Anfangskonzentration von angeregten Jodatomen wird dabei so gewählt, dass der gefundene Wert mit dem berechneten zu einem bestimmten Zeitpunkt übereinstimmt. In dem Fall für 20 Torr CF_3J wurde für $\Delta t = 4$ msec der Wert von n_{10} berechnet. In Abb. 44 ist der so nach Gleichung (64) gefundene Verlauf eingezeichnet. Man erkennt für Zeiten grösser als 3,5 msec eine so gute Übereinstimmung, dass man die Anwendung des beschriebenen Verfahrens als gerechtfertigt ansehen kann. Für n_{10} wurde durch Extrapolation ein Wert von 4 gegenüber dem Messwert von 1,6 nach Beendigung des Blitzpulses gefunden. Die nachgepumpte Jodmenge ist also ca. 1,5 mal so hoch wie die ursprünglich erzeugte Jodmenge, der chemische "Nachpumpprozess" ist offenbar effektiver als die Photolyse.

Die Frage, ob der beobachtete zeitliche Verlauf auch durch Desaktivierung infolge von J_2 -Stößen erklärt werden kann, soll im folgenden untersucht werden. Die relevanten Prozesse sind:



Mit den Definitionen aus Kapitel C erhält man folgendes Ratengleichungssystem:

$$\frac{dn_5}{dt} = k_8 (n_1 + n_2)^2 n_5 + k_9 n_5 (n_1 + n_2)^2$$

$$\frac{dn_1}{dt} = -2 k_9 n_1^2 n_5 - k_1 n_1 n_5$$

$$\frac{dn_2}{dt} = k_1 n_1 n_5 - 2 k_9 n_2^2 n_5$$

$$k_9 = 4.7 \cdot 10^{-30}, \quad k_1 = 5 \cdot 10^{-12}$$

Die Anfangswerte im Experiment sind:

$$n_0 = 7 \cdot 10^{17}, \quad n_1 = 10^{16}, \quad n_2 = 0, \quad n_5 = 0$$

Dabei kann der Wert für n_1 aus den geschilderten Verstärkungsmessungen berechnet werden. Das Verhältnis der beiden Verlustterme für n_1 ist:

$$\frac{2 k_9 n_1}{k_1} = \frac{2 \cdot 4,7 \cdot 10^{-30} \cdot 10^{16}}{5 \cdot 10^{-12}} \approx 2 \cdot 10^{-2}$$

Das heisst, der Rekombinationsterm kann für diese Dichten von n_1 gegenüber der Desaktivierung durch J_2 immer vernachlässigt werden. Um den Zeitverlauf abzuschätzen, wird n_5 vorerst als konstant angenommen. Das verbleibende Gleichungssystem hat als Lösung wieder die Gleichung (64). Das bedeutet, dass man denselben angepassten zeitlichen Verlauf erreichen kann wie bei der CF_3J -Desaktivierung. Da jedoch n_5 während der Prozesse nicht konstant bleibt, sondern als Folge von Dreierstössen zunimmt, wird infolgedessen der zeitliche Verlauf der Inversion steiler sein als durch Gleichung (64) gegeben. Angesichts der guten Übereinstimmung der Messergebnisse mit den nach Gleichung (64) berechneten Werten muss mithin gefolgert werden, dass die Desaktivierung von J^* durch molekulares Jod keine Rolle spielt. Ein oberer Wert für k_8 lässt sich abschätzen, wenn man etwa annimmt, dass bis zum Zeitpunkt $t = 4$ msec weniger als $4 \cdot 10^{13}$ Jodmoleküle gebildet wurden.

$$\frac{dn_5}{dt} = k_8 (n_1 + n_2)^2 n_0 \quad ; \quad \text{mit } (n_1 + n_2) \Big|_{t=0} = 10^{16}$$

erhält man $n_5 \leq k_8 (n_1 + n_2)^2 n_0 t$

$$k_8 \leq \frac{n_5}{n_0 (n_1 + n_2)^2 t} = \frac{10^{13}}{7 \cdot 10^{17} \cdot 10^{32} \cdot 4 \cdot 10^{-3}} = 1,2 \cdot 10^{-34}$$

Nach dem oben beschriebenen Verfahren wurden die Ergebnisse für 40 Torr CF_3J und für die Mischung $CF_3J : C_2F_6 = 1 : 1$ ausgewertet. In Abb. 45 und 46 sind die für einen bestimmten Zeitpunkt angepassten Inversionskurven und die sich daraus ergebenden Abklingkurven für die Konzentration der angeregten Jodatome eingezeichnet. Für 40 Torr CF_3J wurde eine Desaktivierungsrate von $2,2 \cdot 10^{-16} [cm^3/sec]$ gemessen. Dieser Wert stimmt gut mit dem aus dem 20 Torr-Experiment gewonnenen überein ($2,55 \cdot 10^{-16}$). Ausserdem sei auf die gute Übereinstimmung mit den von Donovan und Husain aus einer Blitzlichtphotolyse/Absorptionsmessung abgeschätzten Wert für k_1 hingewiesen /25/(vgl. Kap. C).

Die Halbwertsdauer für die Desaktivierung in einer Mischung folgt zu

$$\tau_{1/2} = \frac{1}{\sum_i k_i n_i}$$

wenn k_i, N_i die den Gasen entsprechenden Konstanten und Konzentrationen sind. Mit dieser Gleichung lässt sich aus der Abb. 46 die Desaktivierungskonstante für C_2F_6 bestimmen:

$$k_5 (\text{Desakt. } C_2F_6/J^*) = 3.5 \cdot 10^{-16} \text{ [cm}^3/\text{sec]}$$

Dieser Wert liegt ca. 20 % unter dem Wert, der in Kapitel C für diesen Desaktivierungsprozess geschätzt wurde.

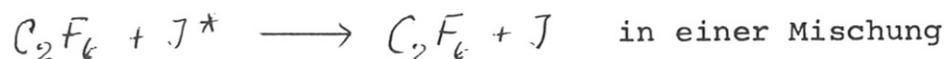
Der Fehler, der bei dieser Methode der Ermittlung von Reaktionskonstanten gemacht wird, hängt von zwei Faktoren ab, nämlich

1. der Messung des Druckes, die mit ca. $\pm 5\%$ Genauigkeit erfolgte,
2. der Messung des Zeitpunktes t_0 , zu dem die Verstärkung gerade gleich eins wird. Dieser Fehler setzt sich aus der relativen Genauigkeit der einzelnen Verstärkungsmessungen ($\pm 5\%$) und aus der Anzahl der zeitabhängigen Messungen zusammen. Abb. 43 entnimmt man für t_0 einen Fehler von ca. $\pm 5\%$. Aus

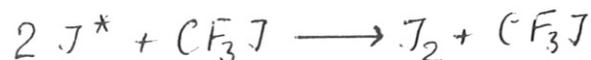
$$k = \frac{1}{t_c N_0}$$

folgt ein Bereich von $\pm 10\%$ für den Fehler der Reaktionskonstanten k_1 (Des. CF_3/J^*) und von $\pm 20\%$ für die Konstante k_5 der Desaktivierung für C_2F_6 .

Der Abfall der Verstärkung und damit die Inversion für lange Zeiten kann durch die Desaktivierungsprozesse



erklärt werden. Die Bildung von molekularem Jod J_2 in einem Dreierstoss nach



verläuft bei den gegebenen Konzentrationen von J^* zu langsam, um

einen wesentlichen Beitrag zu liefern. Neben diesem Desaktivierungsprozess kommt es in der Photolysemischung zu einem bisher noch nicht geklärten Nachpumpen von angeregtem Jod. Dieser Vorgang spielt sich bei 20 Torr CF_3J -Druck in den ersten 1 - 2 msec ab und liefert ca. die doppelte Menge an J^* wie der Photolyseblitz selbst.

F) ZUSAMMENFASSUNG

Das Ziel der Untersuchungen der vorliegenden Arbeit war es, die Leistungsfähigkeit des Jodlasers und sein Verhalten im Hochleistungsbetrieb kennenzulernen. Eine Analyse der einzelnen Schritte bei der Erzeugung von Riesenpulsen zeigt, dass ein wesentliches Merkmal für die Tauglichkeit eines Lasers für den Hochleistungsbetrieb die Energiespeicherfähigkeit ist. Die Strahlungsenergie muss so lange gespeichert werden können, bis sie entweder in einer Oszillatoranordnung durch Güteschaltung oder im Verstärker durch das Eingangssignal abgerufen wird. Eine charakteristische Grösse für eine Lasersubstanz ist der Wirkungsquerschnitt für induzierte Emission σ , der mit der Linienbreite $\Delta\nu$ des Übergangs durch folgende Beziehung verknüpft ist:

$$\sigma = \frac{A c^2}{8\pi\nu^2 \Delta\nu}$$

$\Delta\nu$ gibt an, wie viele angeregte Teilchen in dem invertierten Material mit einem Strahlungsfeld der Frequenz ν in Wechselwirkung treten können.

Die Energiespeicherfähigkeit in einem gasförmigen Lasermaterial wird durch folgende zwei Effekte begrenzt:

- a) Durch unkontrollierte Anschwingprozesse, die auf die, wenn auch sehr geringe Reflektivität der Umgebung des Lasermaterials zurückzuführen sind und
- b) durch strahlungslose Prozesse, bei denen die Atome bzw. die Moleküle ihre Strahlungsenergie bei Stößen verlieren.

Ein Mass für die Begrenzung durch Punkt a) ist die Energie pro cm^2 , bei der die Schwellinversion erreicht ist. Rechnet man bei Verstär-

kereinheiten mit mittleren Reflektivitäten von 10^{-3} , so erhält man aus der Anschlagbedingung für die speicherfähige Energie:

$$E_s = \frac{7}{\sigma} h\nu \quad [\text{Joule/cm}^2]$$

Da die Linienbreiten in Gasen in der Regel sehr viel kleiner sind als in Festkörpermaterialien, ist die speicherfähige Energie in Gasen relativ zu den Festkörperlasern gering. Für den Jodlaser (100 Torr) ergibt sich so ein Wert von annähernd $0,21 \text{ Joule/cm}^2$ gegenüber ca. 160 Joule/cm^2 für Neodym-Glas. Der grosse Vorteil von Gaslasern bezüglich der Materialbelastbarkeit kann daher in der Regel nicht ausgenutzt werden. Als eine Möglichkeit, σ zu beeinflussen, wird die Druckverbreiterung sowie der Einfluss von Magnetfeldern für Jod diskutiert. Energieverstärkungsmessungen im Klein- und Grosssignalbereich ergeben Werte für σ von $6 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$ für 20 Torr und $2 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$ für 100 Torr. Der Zusammenhang zwischen Druck und Linienbreite ist linear. Wesentlich stärker als durch den Gasdruck lässt sich σ durch Magnetfelder beeinflussen. Neben der Aufhebung der Entartung (Aufspaltung des Übergangs im Jod in vier getrennte Linien) führt ein inhomogenes Magnetfeld zu einer ortsabhängigen Verschiebung der gesamten Linie. Die dadurch erzielbare effektive Linienbreite lässt sich bei einem konstanten Gradienten theoretisch beschreiben durch:

$$\Delta\nu_{\text{eff}} = 5 \cdot 10^6 H \quad [\text{sec}^{-1}]$$

und die speicherfähige Energie wird

$$E_s = 10^{-3} H \quad [\text{Joule/cm}^2]$$

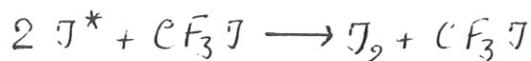
Mit Feldern von $10^4 - 10^5$ Gauss kommt man also in den Bereich von ca. 100 Joule/cm^2 und erreicht damit Werte, wie sie sonst nur für Festkörpermaterialien gegeben sind. Messungen von σ in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke belegen die Richtigkeit dieser Vorstellungen.

Die Diskussion der chemischen Prozesse im Jodlasersystem führt zu dem Ergebnis, dass für lange Zeiten nach dem Photolysepuls $\Delta t > 20 \mu\text{sec}$ die Desaktivierung durch CF_3J der begrenzende Faktor ist. Die Desaktivierung durch molekulares Jod ist daneben unter den verwendeten experimentellen Bedingungen ohne Bedeutung. Kleinsignal-Verstärkungsmessungen erlauben es, die Inversion mit hoher Zeitauflösung zu jedem

Zeitpunkt zu bestimmen. Die Ergebnisse zeigen einen überraschenden Verlauf, da die Inversion nicht sofort, wie erwartet nach Beendigung des Photolysepulses abnimmt, sondern im Gegenteil zunächst noch während einer Millisekunde (bei 20 Torr CF_3J) ansteigt. Der Nachpumpprozess liefert bei 40 Torr etwa die doppelte Anzahl an angeregten Jodatomen wie der Photolyseblitz selbst. Der anschließende Abfall lässt sich durch die Reaktion



erklären. Messungen bei 20 und 40 Torr liefern Werte für die Reaktionskonstante von $(2,4 \pm 0,25) \cdot 10^{-16} \text{ cm}^3/\text{sec}$. Die entsprechende Konstante für die Stossdesaktivierung mit C_2F_6 wurde zu $(3,5 \pm 0,45) \cdot 10^{-16} \text{ cm}^3/\text{sec}$ gemessen. Ein oberer Wert für die Reaktion



lässt sich mit $4 \cdot 10^{-34} \text{ cm}^6/\text{sec}^2$ angeben.

Die Effektivität der Photolyse beträgt nach Messungen ca. 0,1 - 0,5 %. Die bisher erreichten Energiedichten sind 50 Joule/Liter entsprechend einer Jodkonzentration von ≈ 8 Torr.

Die photolytische Anregung bietet die Möglichkeit, bei genügend schnellen Blitzlampenentladungen die Trägheit des Oszillatorsystems auszunützen. Im "Gain-switch"-Verfahren gelingt es durch geeignete Dimensionierung des Resonators, nahezu die gesamte Energie in einem ersten Oszillatorpuls auszukoppeln. Schaltelemente werden bei dieser Technik nicht benötigt. Legt man einen Wert für $h\nu$ von 0,95 eV zu Grunde, so gilt genähert für die Pulsleistung:

$$L_{\text{Puls}} = 3,6 \cdot 10^{-18} \text{ W} \quad [\text{Watt/cm}^2]$$

W bedeutet hierbei die Pumprate pro cm^2 .

Pumpraten mit Werten von $10^{26} - 10^{27} \text{ cm}^{-2}$, wie sie experimentell noch realisiert werden können, lassen demnach Oszillatorpulse mit Gigawattleistungen erwarten.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass der Jodlaser in Verbindungen mit inhomogenen Magnetfeldern eine Leistungsfähigkeit besitzt, die die von Festkörpermaterialeien im Höchstleistungsbetrieb erreicht. Neben der Möglichkeit, die Verstärkung bei gegebener Inversion zu variieren, bietet er noch die Möglichkeit der Pulskontrolle im Gain-switch-Betrieb und der Erzielung kurzer Leistungen ohne Schaltelemente. Die Materialbelastbarkeit dürfte nach Messungen von Kleeman et al. /37/ mit Neodymlasern an C_2H_4 und C_2H_6 etwa bei 10^2 Joule in 1 nsec ($\hat{=} 10^{11}$ Watt) liegen, bei einem Druck von ca. 100 Torr. Da bei Gasen keine materialbedingten Beschränkungen der Dimensionierung gegeben sind, sind Begrenzungen für die erzielbare Laserenergie wohl eher vom technischen Aufwand für den elektrischen Energiespeicher als vom Lasermaterial selbst zu erwarten.

Herrn Professor J. Brandmüller danke ich herzlich für sein förderndes Interesse bei der Betreuung dieser Arbeit.

Ganz besonders möchte ich Herrn Dr. K.L. Kompa für die Anregung der Arbeit und seine immer bereite und engagierte Hilfe in theoretischen und experimentellen Problemen herzlich danken.

Herrn Dr. S. Witkowski bin ich für die grosszügige Unterstützung und für viele hilfreiche Diskussionen sehr verbunden.

Allen Mitgliedern der Gruppe "Chemische Laser" danke ich für Diskussionen, Anregungen und vor allem für die gute Zusammenarbeit. Zu besonderem Dank bin ich Herrn Dipl.-Chem. P. Gensel für seinen wertvollen Rat in vielen experimentellen Fragen verpflichtet. Für seine tatkräftige und immer einsatzbereite Hilfe beim Aufbau der Apparatur und bei der Durchführung der Messungen bin ich Herrn H. Bauer sehr verbunden.

Die numerischen Rechnungen wurden von Frl. L. Harrison und Herrn H. Gorenflo durchgeführt, denen ich für ihr Interesse, aber auch für ihre Geduld sehr dankbar bin.

Schliesslich danke ich Frl. M. Treske für die Photographien, Frl. J. Pfister für die Zeichnungen und Frl. C. Wallner für die mühevollen Maschinenschrift dieser Arbeit.

Verzeichnis der Symbole

Symbol	Dimension	Bezeichnung	Seite
h	Joule sec	Plancksches Wirkungsquantum	1
ν	sec ⁻¹	Frequenz	1
A	sec ⁻¹	Einstein-Koeffizient für spontane Emission	1
τ_H	sec	Lebensdauer	1
n_0, n_1, n_2	cm ⁻³	Teilchendichten	5, 9
g_1, g_2	1	Entartungsgrad	5
Q	cm ⁻²	Zahl der Quanten pro Flächeneinheit ..	6
N_1', N_2'	cm ⁻² sec ⁺¹	Teilchen pro Flächeneinheit und Frequenzintervall	6
t	sec	Zeit	6
b	sec ⁻¹	geometrischer Faktor	6
q	cm ⁻³	Quantendichte	6
L	cm	Länge des Resonators	6
l	cm	Länge des aktiven Materials	6
B_{12}	cm ³ sec ⁻²	Einstein-Koeffizient für induzierte Emission	6
B_{21}	cm ³ sec ⁻²	Einstein-Koeffizient für Absorption ..	6
N_1, N_2	cm ⁻²	Teilchen pro Flächeneinheit	7
λ	cm	Wellenlänge	7
$g(\nu)$	1	Linienformfaktor	8
$\Delta \nu$	sec ⁻¹	Linienbreite	8
t_q	sec	Dauer des Strahlungsfeldes	8
t_s	sec	Zeit zwischen 2 Stößen eines Teilchens	9
σ_{kin}	cm ²	gaskinetischer Stossquerschnitt	9
\bar{v}	cm/sec	mittlere Geschwindigkeit eines Teilchens	9
ΔN	cm ⁻²	Inversion pro Flächeneinheit	9
σ	cm ²	Wirkungsquerschnitt für induzierte Emission	9

Symbol	Dimension	Bezeichnung	Seite
β	1/sec	Verlustterm	10
τ_c	sec	1/e -Lebensdauer der Quanten im Resonator	10
R_1, R_2	1	Reflektivität	10
T	1	Transmission	10
\tilde{Q}	1	Güte eines Resonators	10
P_1, P_2	cm ⁻² sec ⁻¹	Pumprate	10
ΔN_s	cm ⁻²	Schwellinversion	11
E	Joule	Energie	12
V	1	Verstärkung	12
Q_0	cm ⁻²	Quantenzahl pro Fläche im Resonator beim Erreichen der Schwelle	16
t_{max}	sec	Zeitdauer zwischen dem Erreichen der Schwelle und dem Zeitpunkt der maximalen Inversion	16
ΔN_T	cm ⁻²	Inversion als Folge der "Trägheit" des Oszillators	17
ΔN_{max}	cm ⁻²	grösste erreichte Inversion	17
t_p	sec	Pumpdauer	20
t_s	sec	zu diesem Zeitpunkt wird die Schwelle erreicht	20
L	Joule sec ⁻¹	Leistung	21
t_H	sec	Halbwertsdauer des Oszillatorpulses ..	21
ΔV	cm ³	Volumenelement	22
x	cm	Ortskoordinate	22
$b = 1 + g_1/g_2$	1	g_1, g_2 sind die Entartungsfaktoren ...	23
t_e	sec	Zeitpunkt zu dem der Oszillatorpuls endet	23
E(x)	cm ⁻²	Gesamtquantenzahl pro Fläche, die an der Stelle x vorbeigeflossen ist	23
E_s	Joule cm ⁻²	Speicherfähige Energie pro Flächeneinheit	26
L	1	Bahndrehimpulsquantenzahl	28

Symbol	Dimension	Bezeichnung	Seite
S	1	Spinquantenzahl	28
J	1	Drehimpulsquantenzahl	28
m_J	1	magnetische Quantenzahl	28
μ	$eV \Gamma^{-1}$	Magnetisches Moment	28
μ_B	$eV \Gamma^{-1}$	Bohrsches Magneton	28
H	Gauss (Γ)	Magnetfeld	30
g_J	1	Landéfaktor	30
k_i	$cm^3 \cdot sec^{-1}$	Reaktionskonstante einer bimolekularen Reaktion	40
	$cm^6 \cdot sec^{-1}$	Reaktionskonstante einer termolekularen Reaktion	41

Verzeichnis der Abbildungen

Nr.	Beschreibung	Seite
1	Reaktionen im CF_3J -Photolyseelaser	2
2	Schema der Riesenpulserzeugung	4
3	Strahlungsübergänge zwischen zwei Niveaus	5
4	Laseroszillator	6
5	Frequenzabhängigkeit der Teilchendichte	7
6	Numerische Lösung der Bilanzgleichungen	13
7	Nutzenergie eines Oszillators als Funktion der Reflexivität und Transmission	14
8	Beziehung zwischen der Endinversion und Anfangsinversion bei der Riesenpulserzeugung	19
9	Verstärkung in einem invertierten Material	22
Tab.1	Vergleich von Rubin, Neodymglas und Jod	27
10	Einstellmöglichkeiten von J zu einem äusseren Magnetfeld	29
11	Aufspaltung der Laserniveaus in einem Magnetfeld	29
12	Zusammensetzung des magnetischen Moments bei LS-Kopplung	30
13	Aufspaltung der Zentrallinie in einem Magnetfeld	31
14	Herabsetzung der Inversion in einem homogenen Magnetfeld	32
15	In einem inhomogenen Magnetfeld wird die wirksame Inversion bei einer bestimmten Frequenz (schraffierte Fläche) weiter herabgesetzt	33
Tab.2	UV-Absorption von CF_3J und $i-C_3F_7J$	37
16	Absorptionsspektren	38
17	Berechneter Verlauf der Teilchendichten n_i bei der Photolyse von CF_3J	47
18	Prinzip der Verstärkungsmessung	49
19	Auswertung eines Verstärkerexperiments	50
20	CF_3J -Oszillator-Verstärker-Experiment	52
21	Laseroszillator mit koaxialer Blitzlampe	54
22	Laseroszillator "Idefix"	55
23	Messung der spektralen Strahlungsenergie	56
24	Zeitlicher Verlauf der Emission bei $\lambda = 2730 \text{ \AA}$	58

Nr.	Beschreibung	Seite
25	Abhängigkeit der emittierten Energie von der Wellenlänge	58
26	Laserverstärker "Asterix"	59
27	Magnetfeld in axialer Richtung der SP 5	60
28	Schaltung der Detektordiode	61
29	TEM ₀₀ -Moden des CF ₃ J-Oszillators	62
30	Schema der Winkeldivergenzmessung	63
31	Winkeldivergenzmessung	63
32	Intensitätsverlauf der Oszillatorlampe	64
33	Energie im freischwingenden Betrieb in Abhängigkeit vom Druck, normiert auf den Maximalwert	65
34	Pulszug des Laseroszillators	66
35	Relative Energie der einzelnen Pulse	67
36	Anordnung zur Messung von Druckwellen	69
37	Druckwellen im CF ₃ J-Gas	70
38	Beispiel einer Verstärkungsmessung	72
39	Auswertung der Messergebnisse für 20 Torr CF ₃ J	73
40	Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts für induzierte Emission σ vom CF ₃ J Druck	75
41	Linienbreite als Funktion des Druckes	76
42	σ als Funktion des maximalen Magnetfeldes	78
43	Verstärkung als Funktion der Zeit für 20 Torr CF ₃ J	79
44	Inversion als Funktion der Zeit P _{CF₃J} = 20 Torr	80
45	Inversion als Funktion der Zeit P _{CF₃J} = 40 Torr	81
46	Inversion als Funktion der Zeit für eine Mischung CF ₃ J:C ₂ F ₆ = 1:1	82
47	Schematischer Verlauf von N _{Jπ} als Folge der angenommenen Pumpraten	83

L i t e r a t u r

- 1 J.V.V. Kasper, G.C. Pimentel: Appl. Phys. Lett. 5, 231 (1964)
- 2 A.J. DeMaria, C.J. Ultee: Appl. Phys. Lett. 9, 67 (1966)
- 3 C.M. Ferrar: Appl. Phys. Lett. 12, 381 (1968)
- 4 V.Y. Zalesskii, A.A. Venediktov: Sov. Phys. JETP 28, 1104 (1969)
- 5 D.E. O'Brien, J. Bowen: J. Appl. Phys. 40, 4767 (1969)
D.E. O'Brien, J. Bowen: J. Appl. Phys. 42, 1010 (1971)
- 6 D. Röss: "Laser-Lichtverstärker und -oszillatoren", Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt/M (1966);
W. Kleen, R. Müller: "Laser", Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York (1969)
- 7 A. Maitland, M.H. Dunn: "Laser Physics", North-Holland Publishing Company Amsterdam, London (1969)
- 8 W.H. Flygare: Acc. Chem. Res. 1, 121 (1968)
- 9 S.D. Velikanov, S.B. Kormer, V.D. Nikolaev, M.V. Sinitsyn, Yu.A. Solov'ev, V.D. Urlin: Sov. Phy. Doklady 15 (4), 478 (1970)
- 10 E.L. Steele: "Optical Lasers in Electronics", John Wiley and Sons, Inc. N.Y. (1968)
- 11 P.V. Avizonis, R.L. Grotbeck: J. Appl. Phys. 37, 687 (1966)
- 12 D.W. Gregg, R.E. Kidder, C.V. Dobler: Appl. Phys. Lett. 13, 297 (1968)
P. Gensel, K. Hohla, K.L. Kompa: Appl. Phys. Lett. 18, 48 (1971)
- 13 J.C. Van d. Bosch: "Handbuch der Physik XXVIII", 305, Springer-Verlag Berlin, Göttingen, Heidelberg, 1957
- 14 A. Sommerfeld: "Atombau und Spektrallinien" Band 1, Friedrich Vieweg + Sohn, Braunschweig, 1960
- 15 J. Fuss: Die UV-Spektren wurden im Institut für anorganische Chemie der Universität Frankfurt mit einem 1 m Vakuum UV-Gitter-Spektrometer (Modell McPherson 225) vermessen. Herrn Fuss danke ich für die Vermessung dieser Spektren.
- 16 G.M. Burnett, A.M. North: "Transfer and Storage of Energy by Molecules", Wiley Interscience, London, New York, Sidney, Toronto, Bd. 1 - 3 (ab 1968)
- 17 J.G. Calverts, J.N. Pitts, Jr.: "Photochemistry", John Wiley and Sons, Inc., New York, London, Sidney 1966
- 18 R.J. Donovan, D. Husain: Nature 206, 171 (1965)
- 19 R.J. Donovan, D. Husain: Trans. Farad. Soc. 62, 11 (1966)
- 20 T. Ogawa, G.A. Carlson, G.C. Pimentel: J. Phys. Chem. 74, 2090 (1970)

- 21 V.Y. Zalesskii, E.J. Moskalev: Sov. Phys. JETP 30, 1019 (1970)
- 22 W.G. Vincenti, C.H. Kruger, Jr.: "Physical Gas Dynamics", John Wiley and Sons, Inc., New York, London, Sidney, 139 (1965)
- 23 M.J. Berry: Diss. University of California, Berkeley (1969)
- 24 D. Bunker, N. Davidson: J. Amer. Chem. Soc. 80, 5090 (1958)
- 25 R.J. Donovan, D. Husain: Trans. Farad. Soc. 62, 2023 (1966)
- 26 M.J. Christie, R.G.W. Norrish, G. Porter: Proc. Roy. Soc. (London) 216 A, 152 (1953)
Kondratev: "Chemical Kinetics of Gas Reactions", Pergamon Press, Oxford, London, New York, Paris 1964 (S. 334)
- 27 J.H. Know: Trans. Farad. Soc. 58, 275 (1962)
- 28 IBM Application Manual System 360, Scientific Subroutine Package, S. 233
- 29 "Landolt-Börnstein", Springer-Verlag, Berlin, Göttingen, Heidelberg (1967)
- 30 H.W. Furomoto, H.L. Ceccon: Appl. Optics 8, 1613 (1969)
- 31 Die Entwicklung der Blitzlampe erfolgte in Zusammenarbeit mit der Gruppe Hochspannungstechnik der Abteilung Technik des Max-Planck-Instituts für Plasmaphysik. Ich danke den Herren R.C. Kunze und E. van Mark für ihre wertvolle Hilfe.
- 32 J. Euler: Z. angew. Physik 5, 64 (1953)
- 33 S. Witkowski: Laborbericht IPP 3/5 (1963)
- 34 R. Sigel: private Mitteilung
- 35 M.A. Pollack: Appl. Phys. Lett. 8, 36 (1966)
- 36 A.C.G. Mitchell, M.W. Zemansky: "Resonance Radiation and excited Atoms", Cambridge University Press (1961)
- 37 T. Beryquist, B. Kleman: Arkiv för Fysik 31, 177 (1966)