

Das spektrale Verhalten eines blitz-  
lampengepumpten Farbstofflasers  
(Rhodamin B)

H. Röhr

IPP 1/102

September 1969

**I N S T I T U T F Ü R P L A S M A P H Y S I K**

**G A R C H I N G B E I M Ü N C H E N**

# INSTITUT FÜR PLASMAPHYSIK

GARCHING BEI MÜNCHEN

Das spektrale Verhalten eines blitz-  
lampengepumpten Farbstofflasers  
(Rhodamin B)

H. Röhr

IPP 1/102

September 1969

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

H. Röhr

IPP 1/102

Spectral behaviour of a  
flashlamp pumped dye laser  
(Rhodamin B)

in German

September 1969

Abstract

In this paper the time resolved spectrum of a Rhodamin-B-dye-laser is investigated. Besides the already wellknown features a second line has been observed in the case of higher pumping power lasting several  $\mu\text{s}$ . The emission of the second laser line begins when the first line decays and lasts about as long as the pumping pulse. The wavelength is about  $100 \text{ \AA}$  shorter than that of the first line. A laser transition in the triplett system of the dye molecule is assumed.

## I. Einleitung

Ein Farbstofflaser bietet wegen der Vielfalt der organischen Verbindungen die Möglichkeit, intensives, kohärentes Licht bei fast jeder Wellenlänge im sichtbaren und im nahen infraroten Spektralbereich zu erzeugen. Darüberhinaus kann bei Verwendung eines einzigen Farbstoffes die Wellenlänge in einem Bereich von 50 - 200 Å kontinuierlich verändert werden.

Diese Eigenschaften sowie die Arbeitsweise der Farbstofflaser wurden bereits in der Literatur (z.B. 1,2,3,4) beschrieben. Der Farbstofflaser ist wegen der genannten Eigenschaften die geeignete Lichtquelle für bestimmte plasmadiagnostische Untersuchungen wie z.B. Rayleigh-Streuung an angeregten Atomen (5).

Aus diesem Grunde wurde, vorerst in enger Anlehnung an (2), ein solcher Laser gebaut.

## II. Arbeitsweise des Farbstofflasers

Zunächst soll kurz die Arbeitsweise des Farbstofflasers geschildert werden.

Die für Laserzwecke in Frage kommenden Farbstoffe haben im Prinzip das in der Abb. 1 gezeigte Termschema.

Im thermischen Gleichgewicht befinden sich alle Elektronen im Grundzustand  $G$  des Singulett-Systems. Die höheren Schwingungsniveaus sind unbesetzt, da ihr Abstand ( $\approx 0,1$  eV) gross ist gegen die mittlere thermische Energie. Wird das Molekül mit Licht bestrahlt, so finden bevorzugt die Absorptionsvorgänge statt, die das Franck-Condon-Prinzip erlaubt, z.B. der Übergang  $A$  in ein angeregtes Schwingungsniveau des Zustandes  $n = 2$ . Die Schwingungsenergie wird jedoch sehr rasch strahlungslos an die Umgebung abgegeben, sodass sich nach sehr kurzer Zeit die durch Absorption angeregten Elektronen im tiefsten Schwingungsniveau des Quantenzustandes  $n = 2$  befinden. Von da aus können Emissionsvorgänge (wieder entsprechend dem Franck-Condon-Prinzip) in einen angeregten Schwingungszustand des Terms  $n = 1$  stattfinden (z.B.  $L$ ). Dieses Niveau ist jedoch nach oben Gesagtem unbesetzt, sodass eine Besetzungsinversion zwischen den beiden Zuständen herrscht. Das heisst, Licht, dessen Frequenz dem Übergang  $L$  entspricht, wird von dem Molekül durch induzierte Emission verstärkt, d.h. man hat es mit einem Laser zu tun. Leider ist der Emissionsvorgang von  $n = 2$  nach  $n = 1$  nicht die einzige Möglichkeit, das Niveau zu verlassen, die den Elektronen freisteht. Mit ähnlich grosser Wahrscheinlichkeit finden strahlungslose Übergänge in das Grundniveau des Triplettsystems statt. Von da aus ist jedoch der Übergang in das Singulettssystem verboten, sodass diese Elektronen für lange Zeiten im Triplettsystem verbleiben und daher für den Laserübergang  $L$  verloren sind.

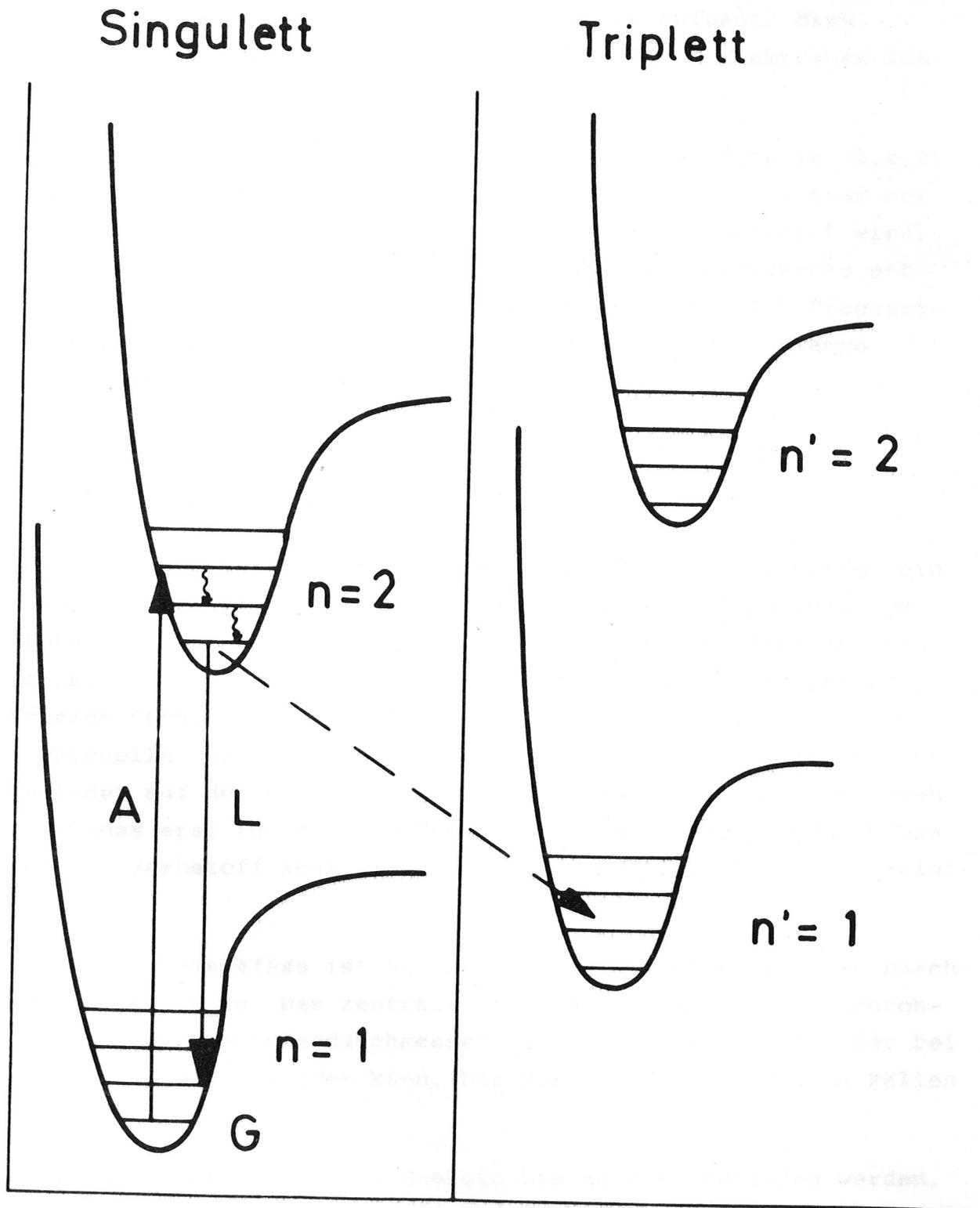


Abb. 1

Diese Tatsache hat zur Folge, dass man sehr schnell pumpen muss, damit sich der Laserimpuls ( $2 \rightarrow 1$ ) so rasch aufbaut, dass währenddessen noch keine nennenswerte Zahl von Elektronen ins Triplettsystem übergewechselt ist.

Lösungen des Bilanzgleichungssystems sowie Experimente (1,2,3) haben gezeigt, dass Laseroszillationen im Singulettssystem nur dann einsetzen, wenn das Grundniveau in Zeiten entleert wird, die kleiner als  $1 \mu\text{s}$  sind. Man kann daher für Pumpzwecke entweder das Licht eines Riesenimpuls-Lasers (u.U. nach Frequenzverdoppelung) oder das einer schnellen Gasentladungslampe (z.B. Z-Pinch) verwenden.

### III. Aufbau des Lasers

Um eine möglichst hohe Ausgangsenergie zu erhalten, wurde ein Laser mit Blitzlampe als Pumplichtquelle gebaut. Es wurde zunächst ein Gerät hergestellt, das sich im Aufbau nach dem von Sorokin et al. (2) erprobten orientierte. (Ein wegen seiner höheren Strahldichte und noch kürzerer Anstiegszeit als Pumplichtquelle noch günstigerer Z-Pinch (9), mittels elliptischer Zylinder auf den Farbstoff abgebildet, ist wegen des grösseren Aufwandes erst für spätere Experimente vorgesehen). Den Aufbau der zum Farbstoff koaxial angeordneten Pumplichtentladung zeigt Abb. 2.

Das Entladungsgefäss ist 50 cm lang und hat einen inneren Durchmesser von 18 mm. Das zentrale Röhrchen mit 10 mm Aussendurchmesser und 8 mm Innendurchmesser enthält den Farbstoff, der bei Bedarf umgepumpt werden kann. Das Material ist in beiden Fällen Quarz.

Über das Gefäss kann eine Energie bis zu 2 kJ entladen werden. Der Strom ist eine sehr stark gedämpfte Schwingung mit einer Viertelperiode von ca.  $2,5 \mu\text{s}$ . Etwa 75 % der Kondensatorenergie

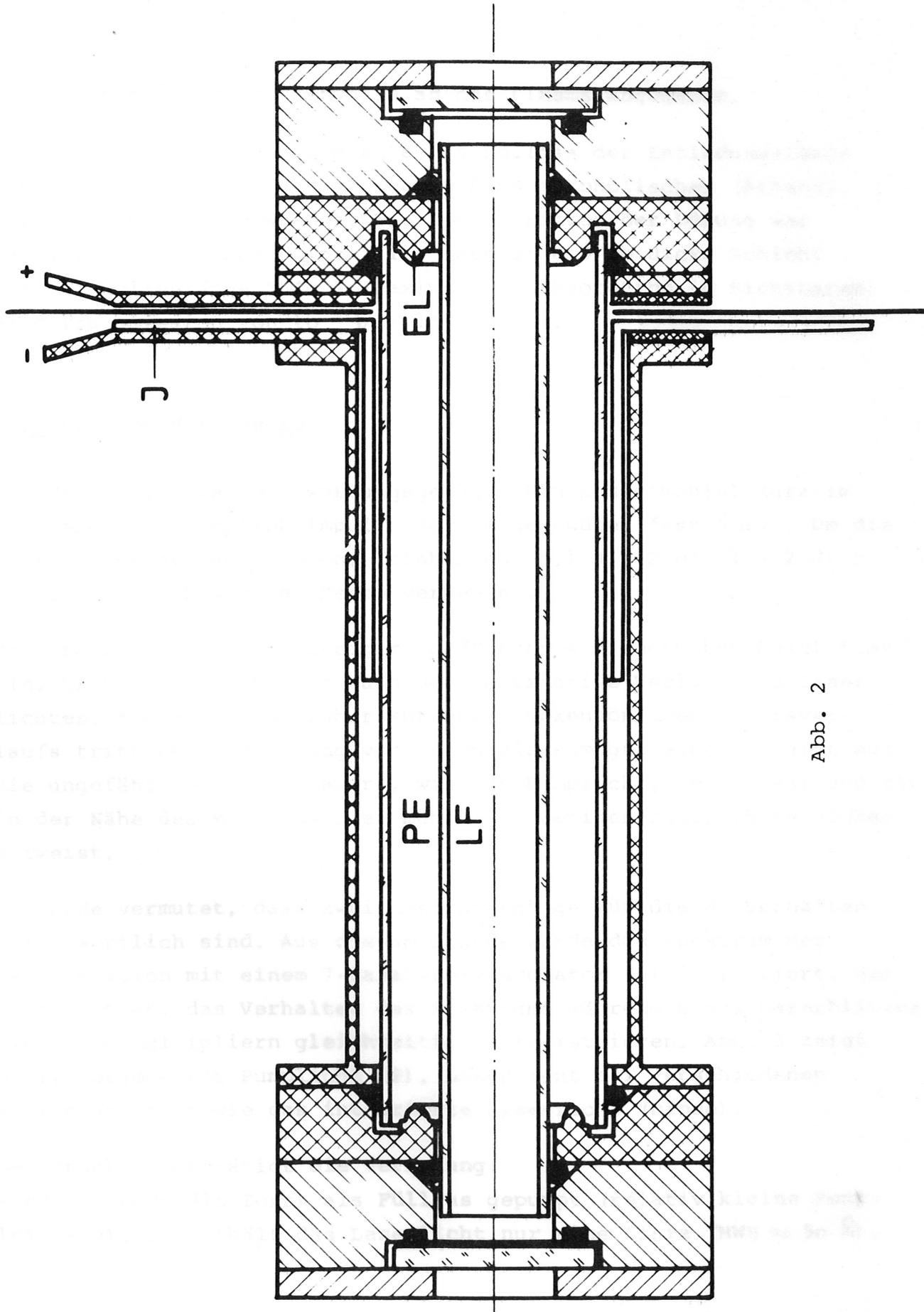


Abb. 2

werden in der ersten Halbwelle an das Plasma abgegeben.

Bei den ersten Versuchen diente als Füllgas der Entladungslampe Luft. Als Farbstoff wurde Rhodamin B in alkoholischer (Äthanol, Methanol) Lösung verwendet. Die Konzentration der Lösung war unkritisch und wurde so gewählt, dass eine 5 mm dicke Schicht bei der Wellenlänge  $5540 \text{ \AA}$  (Maximum der Absorption im Sichtbaren) eine Transmission von  $10^{-3}$  bis  $10^{-2}$  hatte.

#### IV. Emission des Lasers

Die Ergebnisse waren erwartungsgemäss: Ein Laserimpuls, kurz im Vergleich zum Pumplichtimpuls (500 ns gegenüber fast  $5 \mu\text{s}$ ). Um die Energieausbeute zu erhöhen, (bisher ca.  $0,1 \text{ J}$ ., Ziel:  $1 - 2 \text{ J}$ ) wurde als Entladungsgas Xenon verwendet.

Die erwartete Leistungssteigerung (Faktor 4-5 gegenüber Luft) trat ein. Es änderte sich aber auch der qualitative Verlauf des Laserlichtes. Anstelle des bisher kurzen, glockenförmigen Impulsverlaufs tritt bei Verwendung von Xenon als Pumpgas eine Emission auf, die ungefähr so lang andauert, wie das Pumplicht, (ca.  $4 \mu\text{s}$ ) und die in der Nähe des Maximums zwei mehr oder weniger ausgeprägte Höcker aufweist.

Es wurde vermutet, dass zwei Laserübergänge für dieses Verhalten verantwortlich sind. Aus diesem Grunde wurde das Spektrum der Laseremission mit einem 7-Kanal-Polychromator (6) registriert, der es gestattet, das Verhalten des Spektrums während eines Laserblitzes mit 7 Fotomultipliern gleichzeitig zu registrieren. Abb. 3 zeigt Oszillogramme von Pumplicht (P), Laserlicht bei verschiedenen Wellenlängen, sowie das integrierte Laserlicht (Diode).

Das Ergebnis bestätigt die Vermutung:

Wird mit Luft (15 Torr) als Füllgas gepumpt (relativ kleine Pumpleistung), so enthält das Laserlicht nur eine Linie (HWB  $\approx 50 \text{ \AA}$ ),

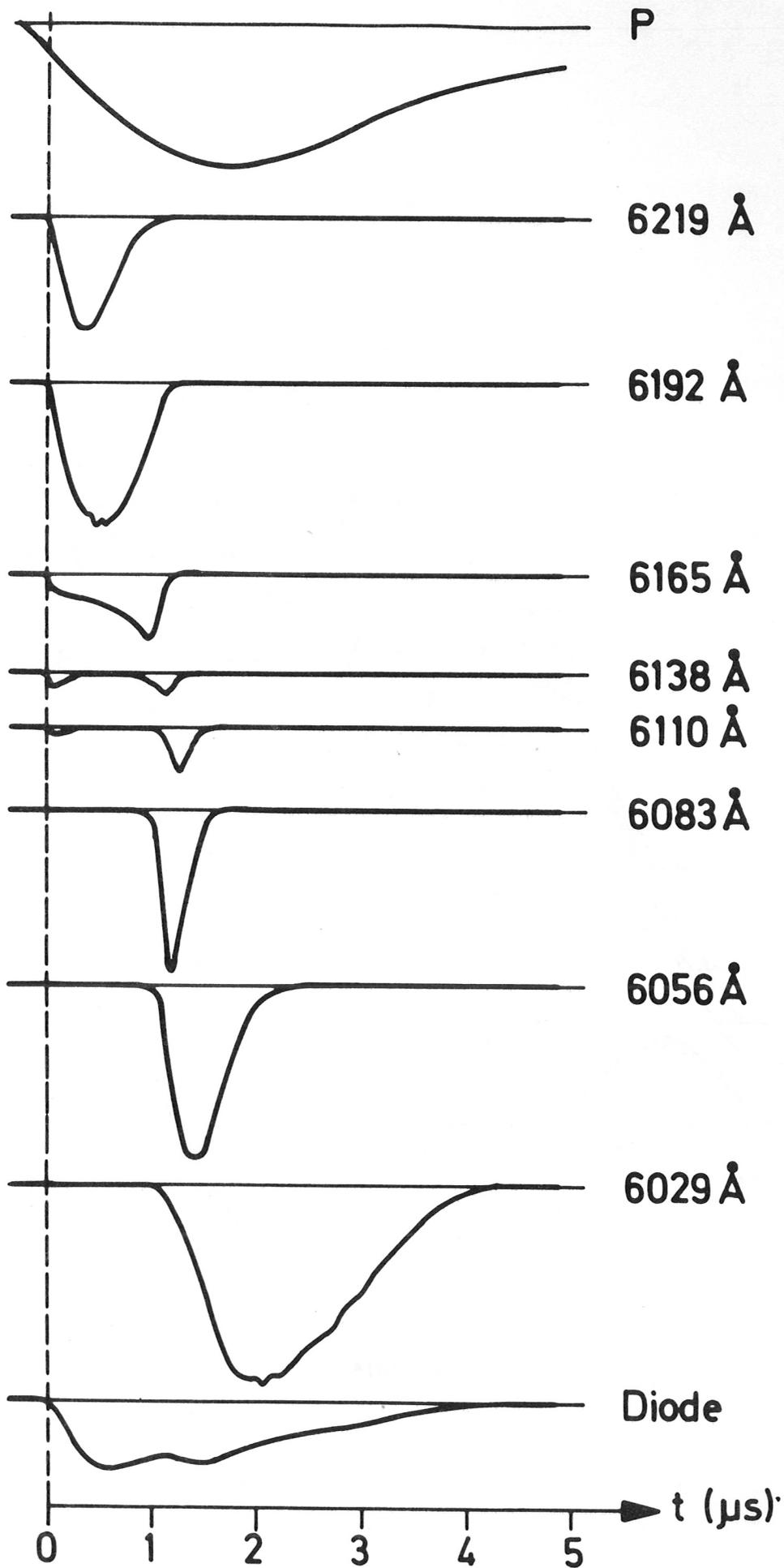


Abb. 3

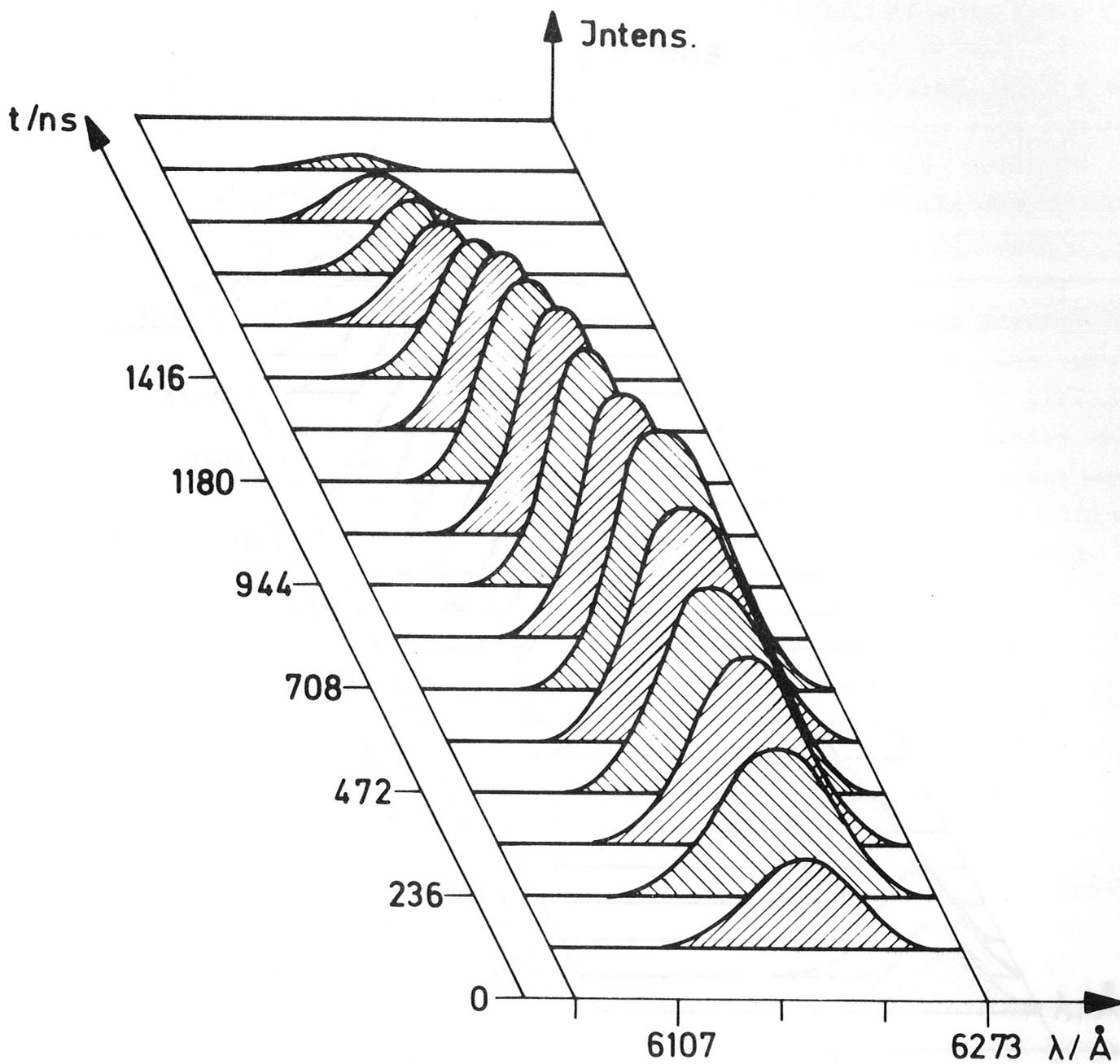


Abb. 4

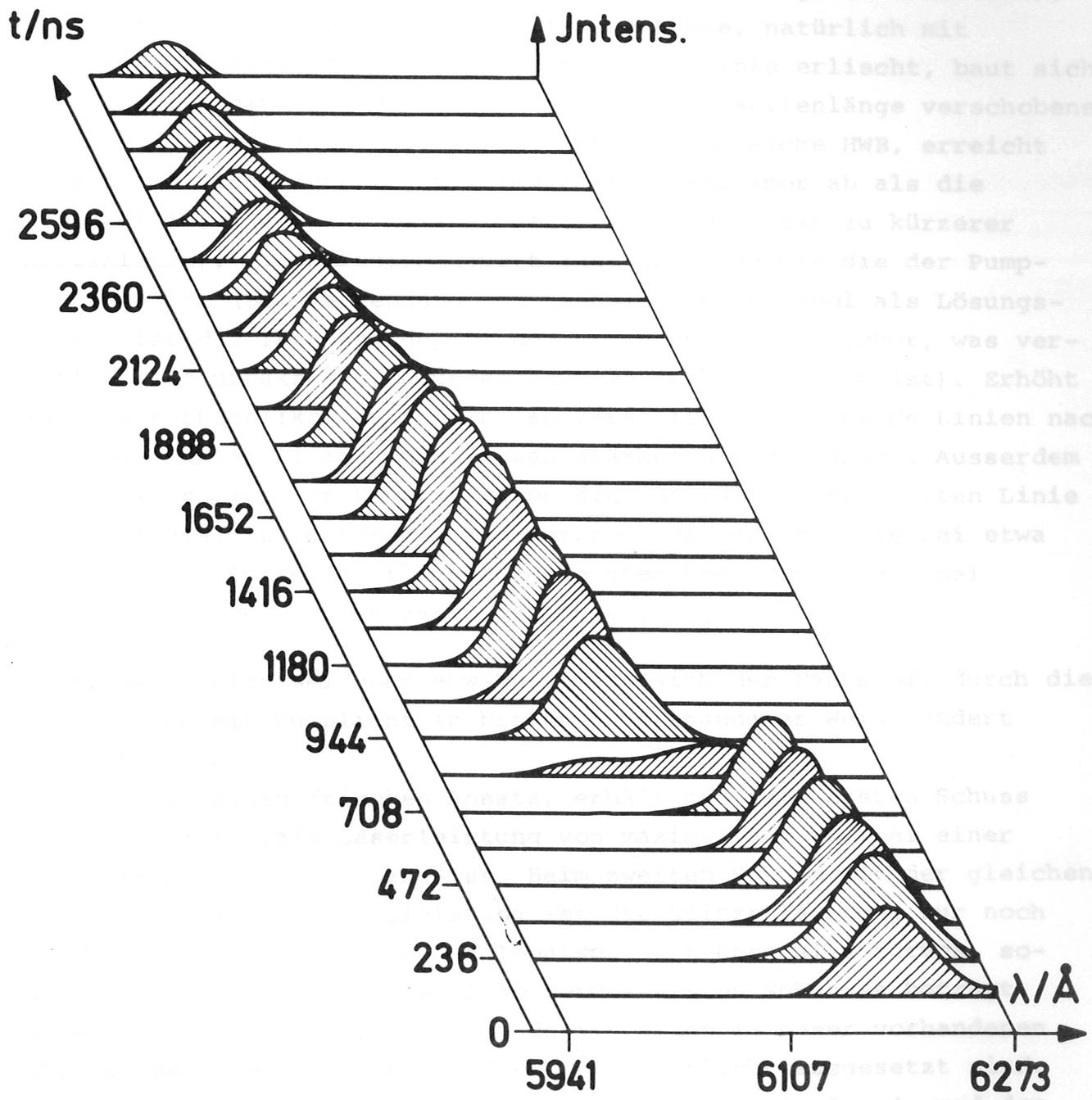


Abb. 5

deren Maximum sich während der Emission (500 - 1500 ns) um ca.  $40 \text{ \AA}$  in Richtung kürzerer Wellenlängen verschiebt (Abb. 4). Dieses Verhalten wurde bereits von anderen Autoren beobachtet und erklärt (7,8). Pumpt man stärker (Xenonfüllung, 25 - 30 Torr), so tritt zunächst die oben beschriebene Linie, natürlich mit höherer Intensität auf. Noch während diese Linie erlischt, baut sich aber bereits eine um ca.  $100 \text{ \AA}$  nach kürzerer Wellenlänge verschobene zweite Linie auf (Abb. 5). Sie hat etwa die gleiche HWB, erreicht etwa die gleiche Intensität, klingt aber langsamer ab als die erste Linie. (Auch ihr Maximum wandert mit der Zeit zu kürzerer Wellenlänge). Die Emission dauert fast so lange wie die der Pumplichtquelle. (Bei Verwendung von technischem Methanol als Lösungsmittel ist die Trennung der beiden Linien noch deutlicher, was vermutlich auf unbekannte Verunreinigungen zurückzuführen ist). Erhöht man die Farbstoffkonzentration, so verschieben sich beide Linien nach rot, die zweite Linie jedoch etwas stärker als die erste. Ausserdem nimmt mit steigender Konzentration die Intensität der zweiten Linie ab. Schliesslich beobachtet man nur noch die erste Linie bei etwa  $6300 \text{ \AA}$ . (Die in den Abbildungen gezeigten Spektren wurden bei relativ geringer Konzentration gemessen.)

An dieser Stelle sei noch erwähnt, dass sich der Farbstoff durch die Bestrahlung mit Pumplicht in bisher unverstandener Weise ändert (Abb. 6):

Benutzt man einen frischen Ansatz, erhält man beim ersten Schuss z.B. eine integrale Laserleistung von maximal 500 kW, bei einer Gesamtimpulslänge von ca. 4  $\mu\text{s}$ . Beim zweiten Schuss mit der gleichen Lösung und gleicher Pumpleistung ist die Spitzenleistung nur noch 100 kW und die Fussbreite des Impulses geht ebenfalls zurück, so dass die Gesamtenergie etwa  $1/10$  der/des ersten Schusses beträgt. Dabei ist zu bemerken, dass von den/insgesamt im Laser vorhandenen  $150 \text{ cm}^3$  der Lösung nur etwa  $25 \text{ cm}^3$  dem Pumplicht ausgesetzt sind. Merkwürdig ist ferner, dass im Gegensatz dazu beim 3., 4. und den folgenden Schüssen die Energie nur mehr um ca. 10 % pro Schuss abnimmt (Abb. 6).

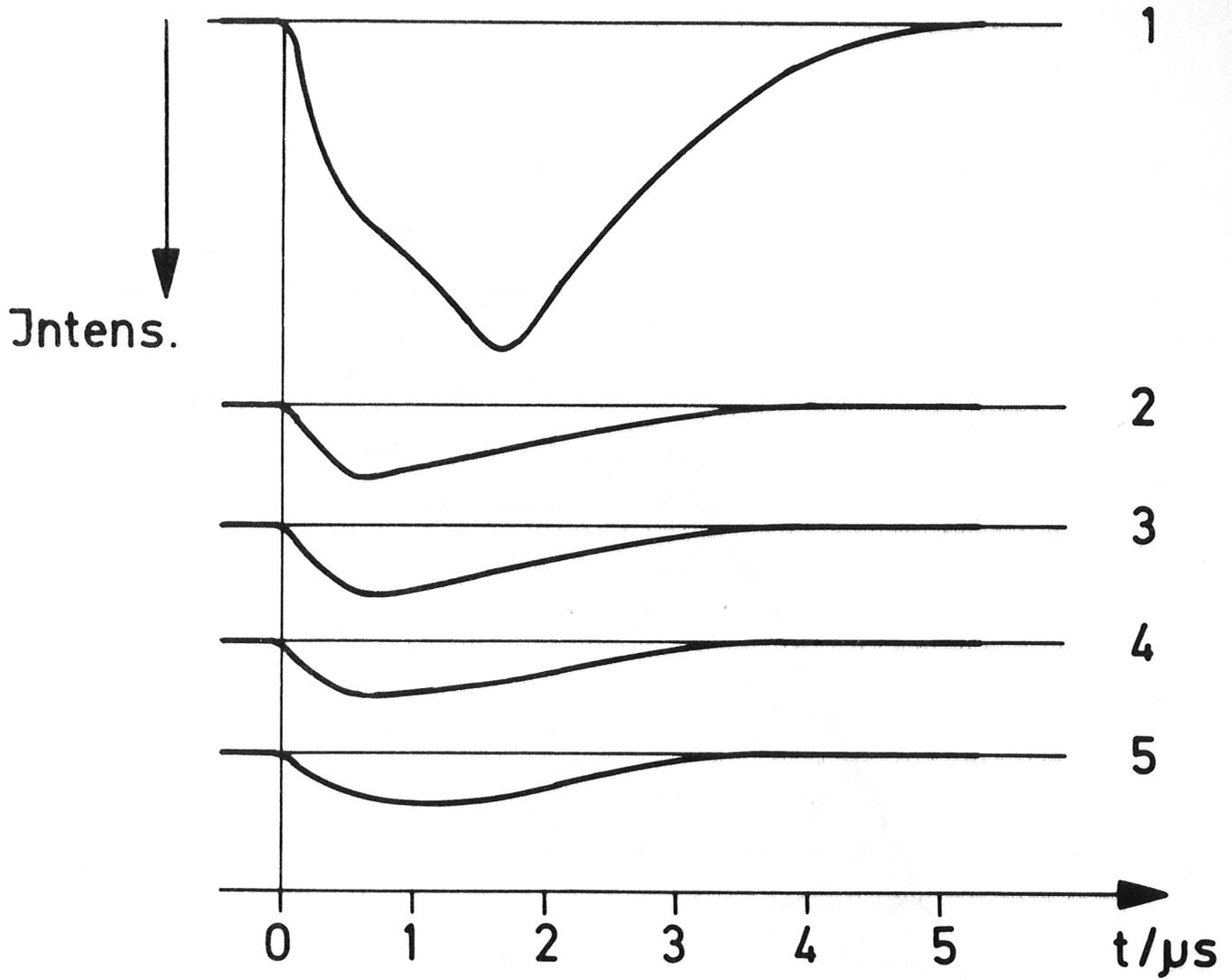


Abb. 6

236

6218 Å/Å

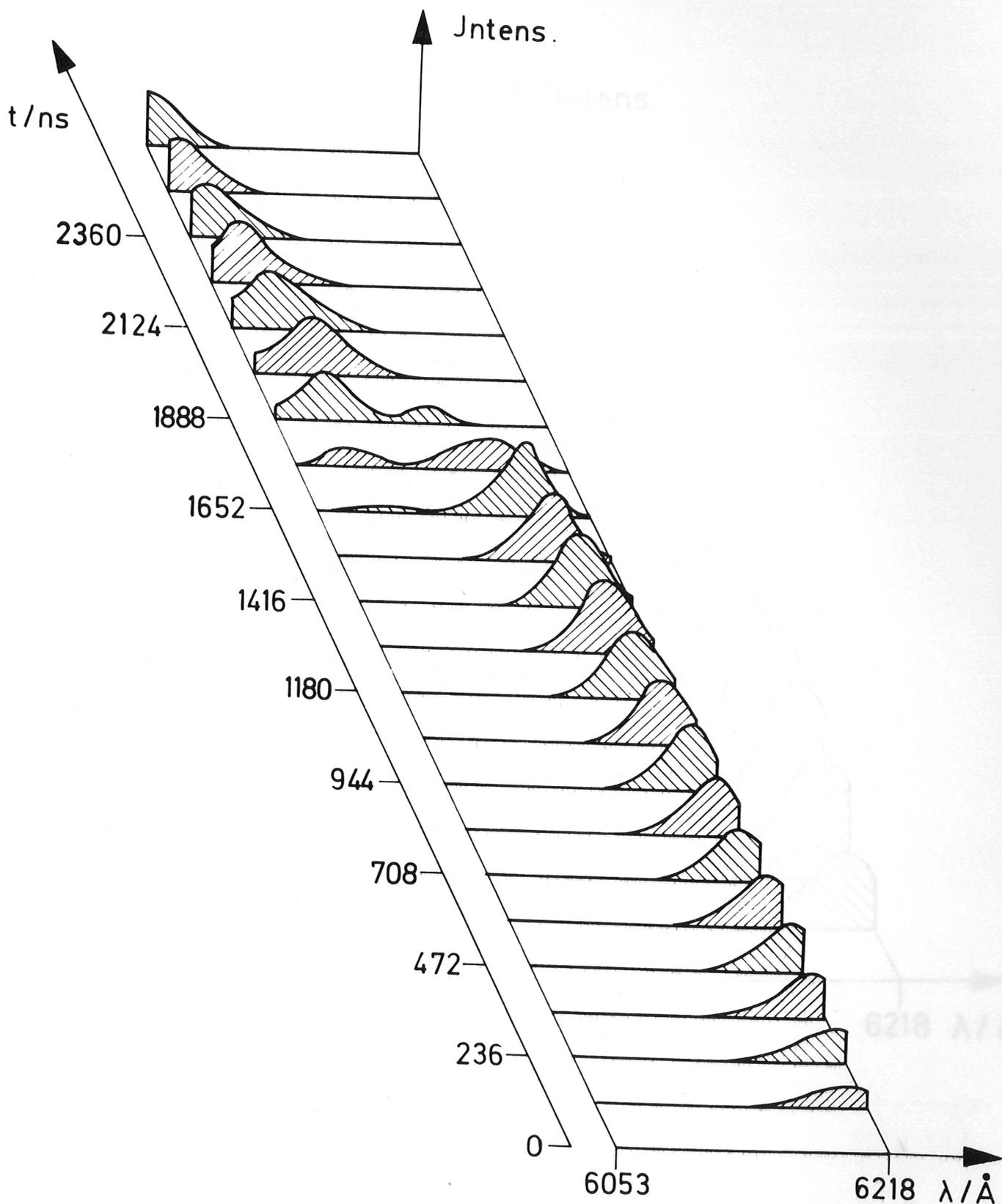


Abb. 7

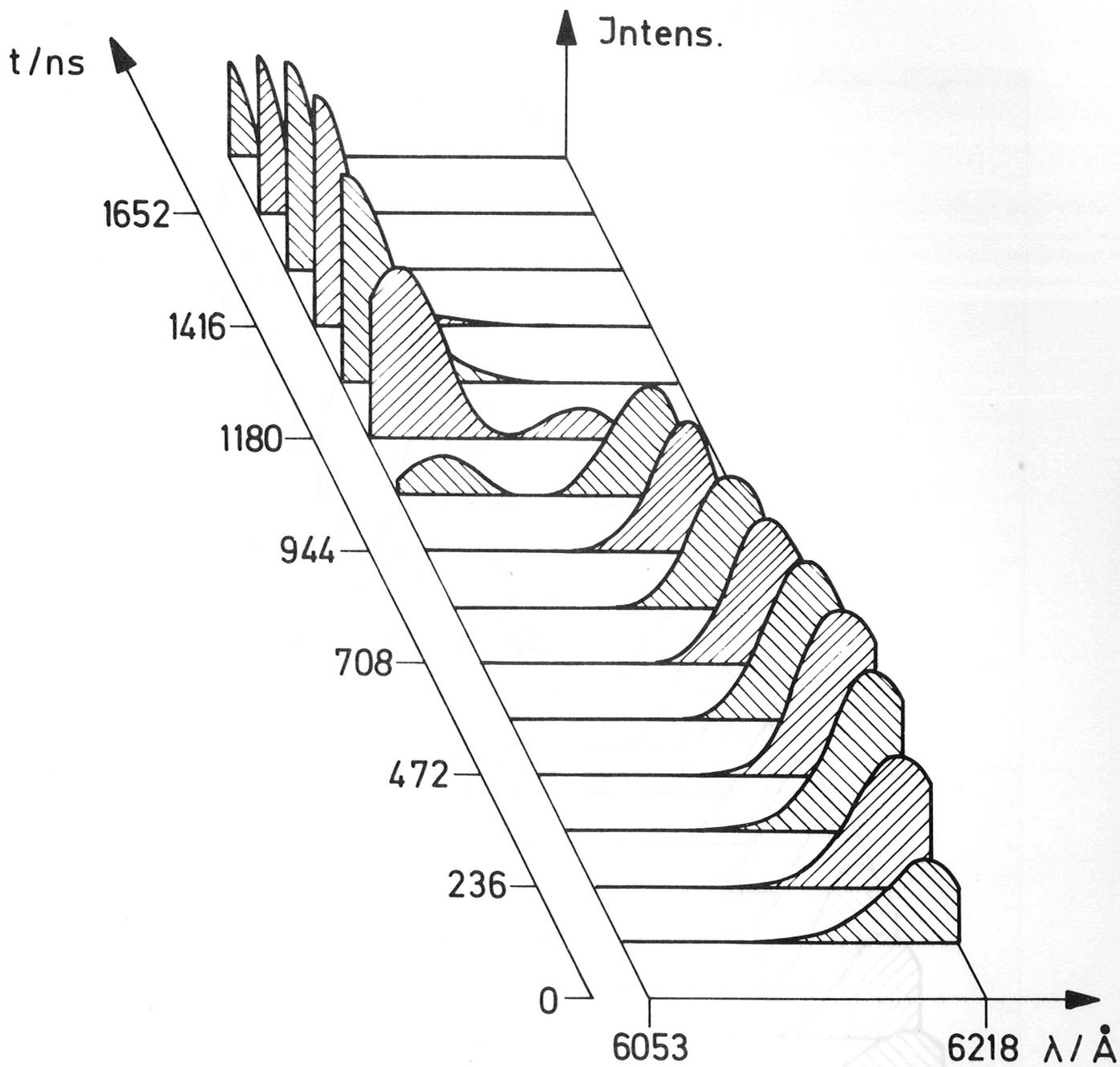


Abb. 8

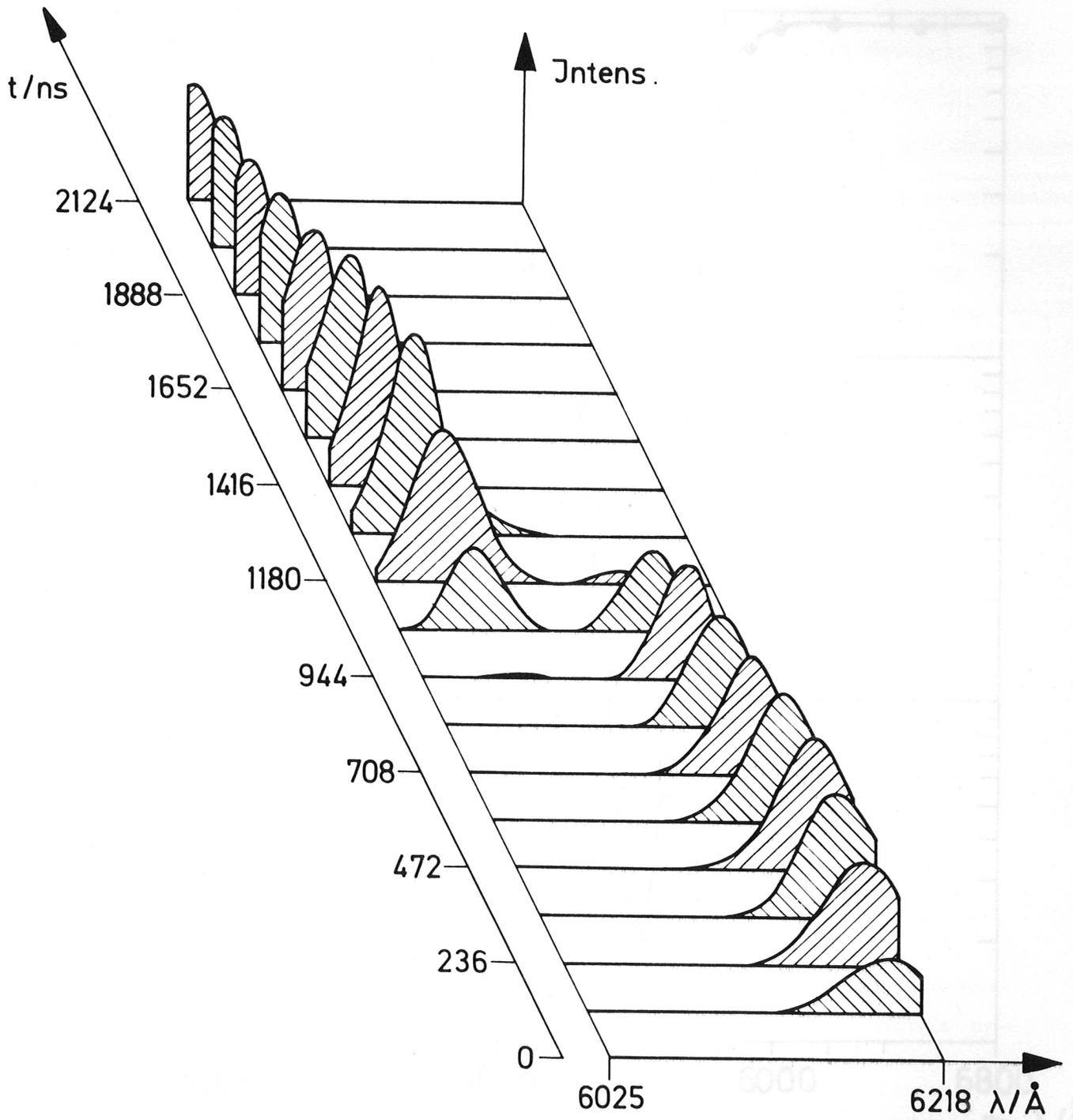


Abb. 9

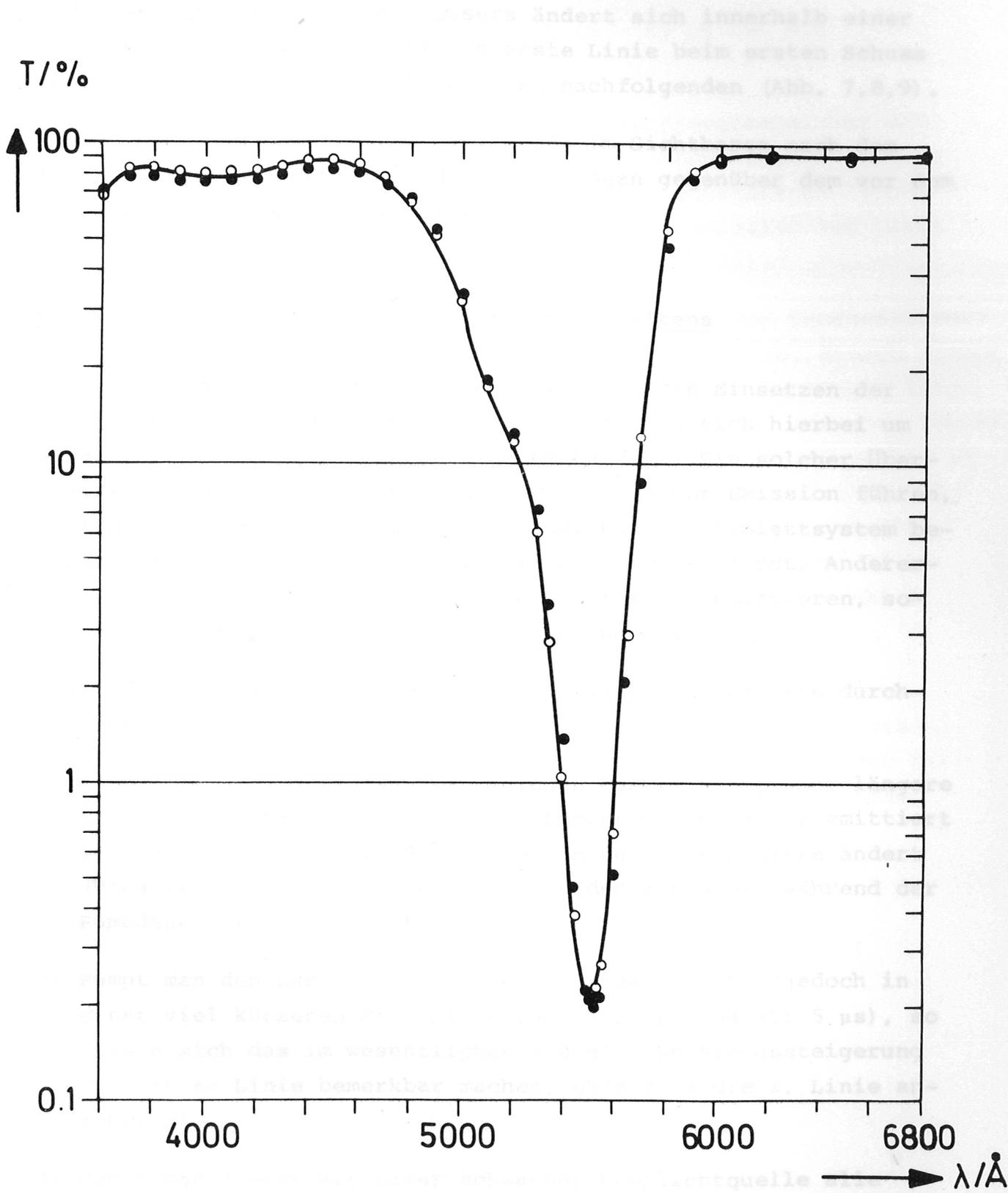


Abb. 10

Das spektrale Verhalten des Lasers ändert sich innerhalb einer Schusserie nur insofern, als die erste Linie beim ersten Schuss erheblich länger brennt, als bei den nachfolgenden (Abb. 7,8,9).

Das Absorptionsspektrum des Farbstoffs im Sichtbaren nach dem 10. Schuss zeigt ebenfalls keine Änderungen gegenüber dem vor dem 1. Schuss aufgenommenen (Abb. 10).

#### V. Deutungsmöglichkeit des spektralen Verhaltens

Die grosse Emissionsdauer und der Zeitpunkt des Einsetzens der zweiten Linie legt die Vermutung nahe, dass es sich hierbei um einen Laserübergang im Triplettsystem handelt. Ein solcher Übergang kann erst dann zu nennenswerter induzierter Emission führen, wenn sich ein grosser Anteil von Elektronen im Triplettsystem befindet, also wenn die Singulettlinie merklich abklingt. Andererseits kann ein Laser im Triplettsystem so lange emittieren, solange genügend Pumplichtintensität vorhanden ist.

Als Prüfung dieser Hypothese können folgende Experimente durchgeführt werden:

- 1) Pumpt man den Laser mit der gleichen Pumpleistung über längere Zeit, so müsste die zweite Linie entsprechend länger emittiert werden, ohne dass sich das Verhalten der ersten Linie ändert (Voraussetzung ist natürlich, dass der Farbstoff während der Pumpdauer nicht zerstört wird).
- 2) Pumpt man den Laser mit der gleichen Pumpenergie, jedoch in einer viel kürzeren Zeit als bisher ( $0,5 \mu\text{s}$  anstatt  $5 \mu\text{s}$ ), so müsste sich das im wesentlichen als eine Leistungssteigerung der ersten Linie bemerkbar machen, ohne dass die 2. Linie anschwingt.
- 3) Pumpt man zuerst mit einer schwachen Pumplichtquelle alle Elektronen in das Grundniveau des Triplettsystems (ohne dass Linie 1 emittiert wird), so dürfte bei Nachschalten eines

leistungstarken Pumpimpuls nach 10 - 50  $\mu$ s nur die Linie 2 anschwngen.

Zur Prüfung entsprechend Punkt 1. wurde der Energiespeicher der Pumpbatterie durch Zuschalten eines zweiten Kondensators in Form einer Laufzeitkette vergrössert. Der dadurch entstehende länger dauernde Pumplichtimpuls bewirkt eine längere Emission von Linie 2, ohne dass sich an Linie 1 etwas ändert (Abb. 11).

Vergrössert man die Induktivität zwischen den beiden Kondensatoren, so kann man erreichen, dass das Pumplicht zunächst ab, danach jedoch noch einmal zunimmt (Abb. 12, P). Das über alle Wellenlängen integrierte Laserlicht zeigt in diesem Fall zunächst den gleichen Impuls, den man mit nur einem Kondensator erhält. Nachdem dieser völlig abgeklungen ist, wird jedoch ein zweiter Impuls emittiert (Abb. 12, Diode). Im zeitaufgelösten Spektrum sieht man, dass der zweite Impuls nur bei der Wellenlänge der Linie 2 auftritt (Abb. 12, 5995 und 6052  $\text{\AA}$ ). Danach wäre die Prüfung im Sinne von Punkt 3 ebenfalls zugunsten eines Triplettüberganges ausgefallen.

Sollte sich die Annahme von Laserübergängen im Triplettssystem nach Durchführung weiterer Prüfexperimente als richtig erweisen, so eröffnet sich auf dem Gebiet der Farbstofflaser neben den bisher bekannten Möglichkeiten ausserdem die des kontinuierlichen Betriebes.

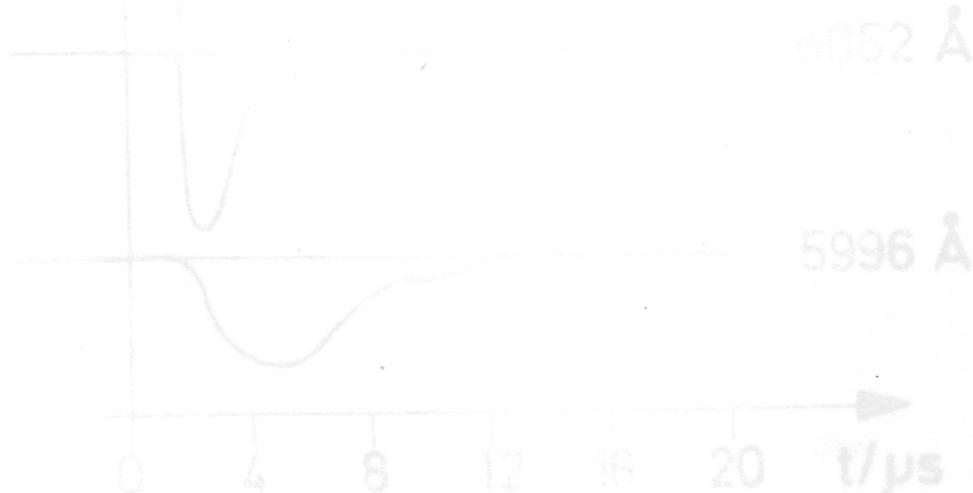


Abb. 11

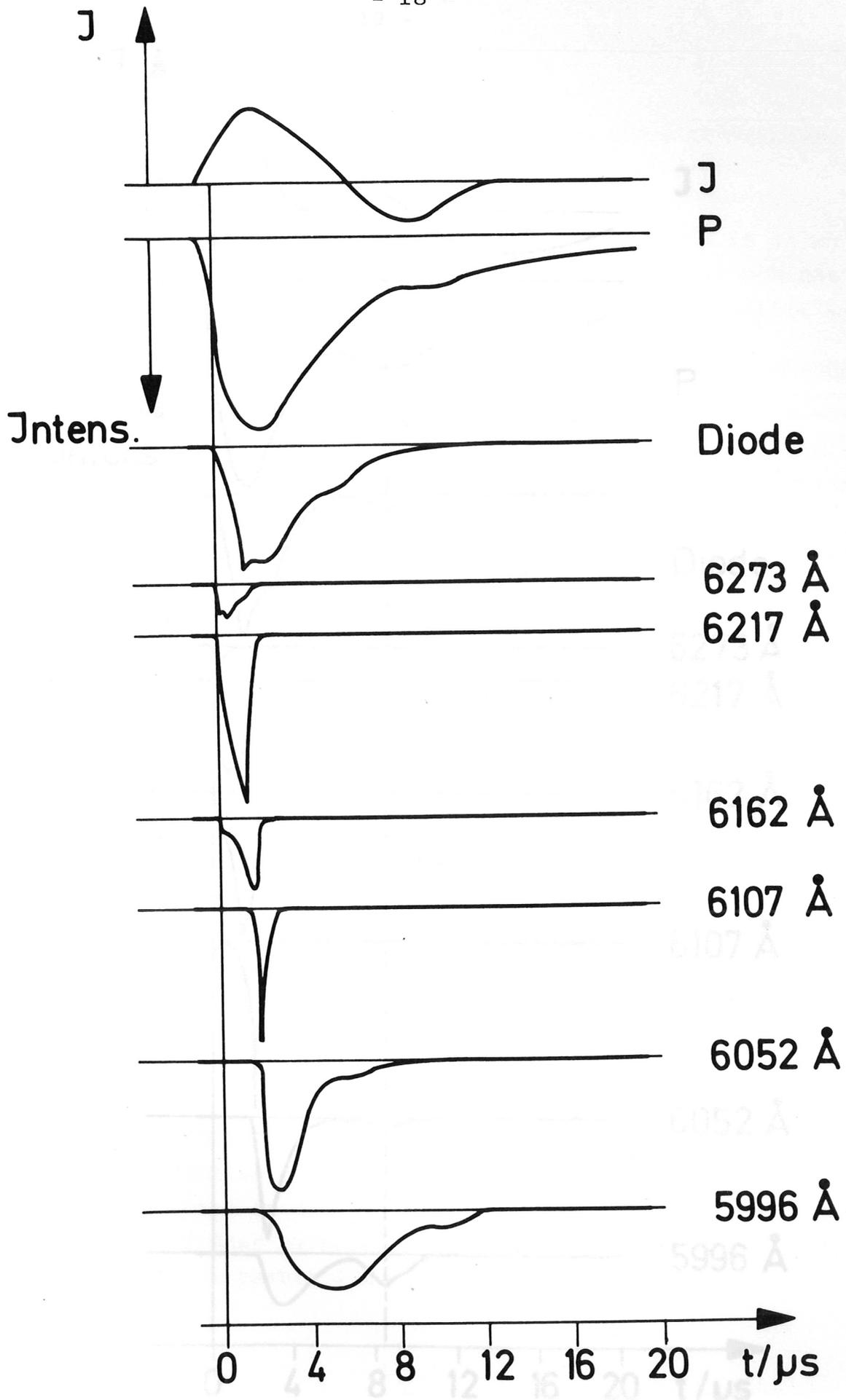


Abb. 11

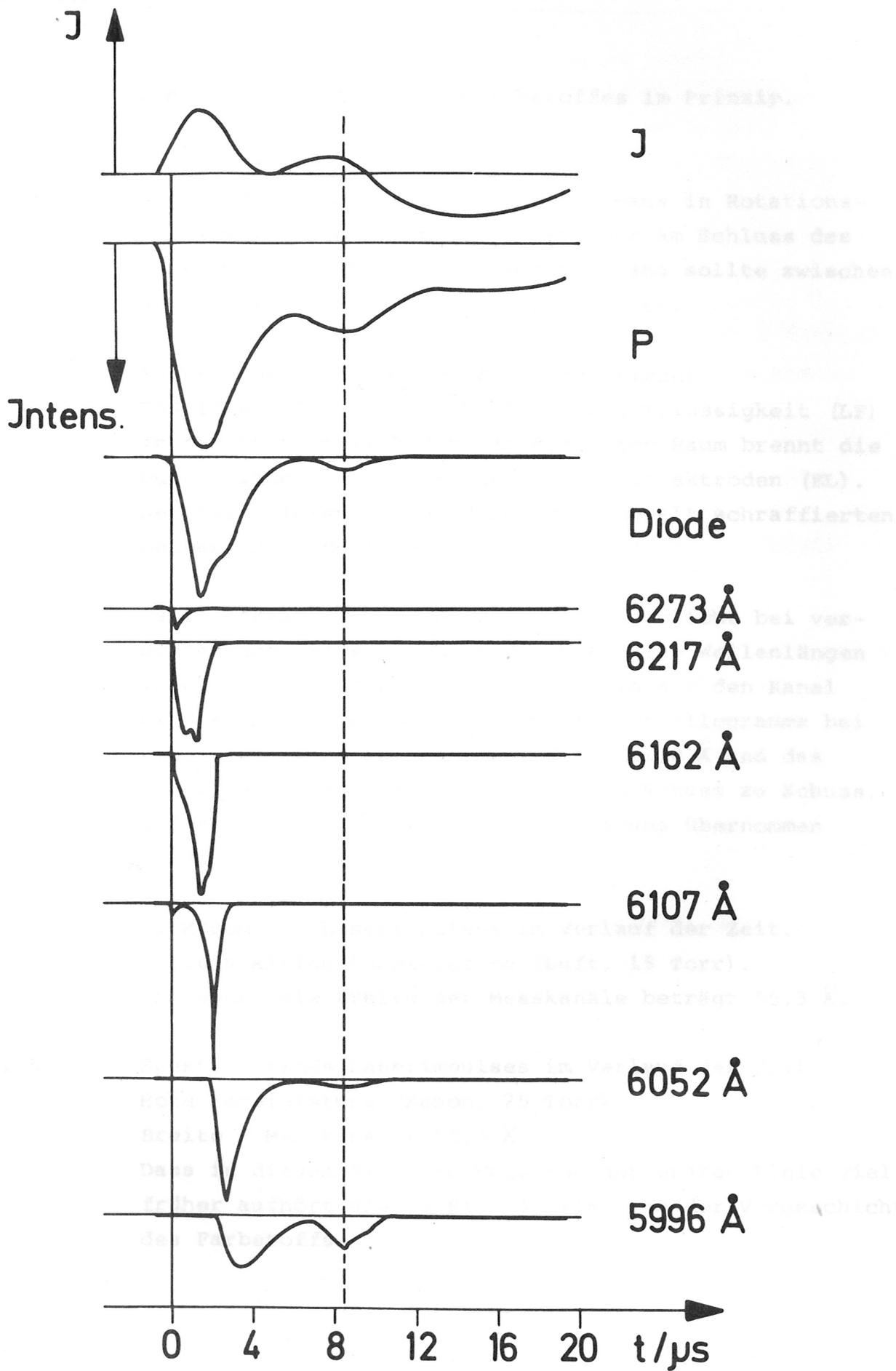


Abb. 12

## Abbildungen

- Abb. 1      Thermschema eines Laser-Farbstoffes im Prinzip.  
A ist ein Pumpübergang  
L ist der Laserübergang  
Die Aufspaltung des Schwingungsniveaus in Rotationsniveaus ist nicht eingezeichnet. Der am Schluss des Berichtes diskutierte Triplettübergang sollte zwischen den Niveaus  $n' = 2$  und  $n' = 1$  erfolgen.
- Abb. 2      Aufbau des Farbstofflasers (schematisch)  
Das innere Röhrchen enthält die Laserflüssigkeit (LF)  
In dem konzentrisch dazu angeordneten Raum brennt die Pumpentladung (PE) zwischen den Ringelektroden (EL).  
Der Stromfluss erfolgt durch die doppelt schraffierten Leiter (J = Isoliermaterial).
- Abb. 3      Oszillogramme von Pumplicht (P), Laserlicht bei verschiedenen Wellenlängen sowie über alle Wellenlängen integriertes Laserlicht (Diode). Bis auf den Kanal  $6138 \text{ \AA}$  und das Pumplicht sind alle Oszillogramme bei einer Entladung aufgenommen. Kanal  $6138 \text{ \AA}$  und das Pumplicht ändern sich nur wenig von Schuss zu Schuss, sodass sie von einer anderen Entladung übernommen wurden.
- Abb. 4      Spektrum des Laserimpulses im Verlauf der Zeit.  
Relativ kleine Pumpleistung (Luft, 15 Torr).  
Die spektrale Breite der Messkanäle beträgt  $55,3 \text{ \AA}$ .
- Abb. 5      Spektrum eines Laserimpulses im Verlauf der Zeit.  
Hohe Pumpleistung (Xenon, 25 Torr)  
Breite / Messkanal =  $55,3 \text{ \AA}$   
Dass in diesem Bild die Emission der ersten Linie viel früher aufhört als im Bild 3, liegt an der Vorgeschichte des Farbstoffs.

- Abb. 6 Über alle Wellenlängen integriertes Laserlicht von aufeinanderfolgenden Schüssen mit einem Farbstoffansatz. Bei 1. wurde der Farbstoff neu angesetzt. Die Spektren für die ersten 3 Schüsse zeigen die nächsten 3 Abbildungen.
- Abb. 7-9 Spektren zu den Schüssen 1 - 3 von Abb. 6. Abb. 7 (Schuss 1) unterscheidet sich von den folgenden durch die längere Brenndauer der ersten Linie ( $27,5 \text{ \AA}/\text{Kanal}$ ). (Der Intensitätsmasstab in Abb. 7 ist anders als in den Abb. 8 und 9.)
- Abb. 10 Absorptionsspektrum der Farbstofflösung (Rhodamin B in Methanol) im Sichtbaren (5 mm dicke Schicht)  
○ frischer Ansatz (noch kein Laserschuss erfolgt)  
● derselbe Ansatz nach 10 Laserschüssen.
- Abb. 11 Oszillogramme zur Pumplichtanordnung mit 2 Kondensatoren ( $2 \times 2,7 \text{ \mu F}$ ) und kleiner dazwischengeschalteter Induktivität (550 nHy)  
J = Strom  
P = Pumplicht  
Diode = über alle Wellenlängen integriertes Laserlicht  
Übrige Kurven = spektral aufgelöstes Laserlicht
- Abb. 12 Oszillogramme zur Pumplichtanordnung mit 2 Kondensatoren ( $2 \times 2,7 \text{ \mu F}$ ) und grosser dazwischengeschalteter Induktivität (3300 nHy)  
J = Strom  
P = Pumplicht  
Diode = über alle Wellenlängen integriertes Laserlicht  
Übrige Kurven = Spektral aufgelöstes Laserlicht

## Literatur

- (1) P.P.Sorokin, J.R.Lankard, E.C.Hammond, V.L.Moruzzi  
IBM-Journal (1967) 130
- (2) P.P.Sorokin, J.R.Lankard, V.L.Moruzzi, E.C.Hammond  
J.Chem.Phys. 48, (1968) 4726
- (3) W.Schmidt, F.P.Schäfer  
Z.f.Naturf. 22a (1967) 1563
- (4) M.R.Kagan, G.J.Farmer, B.G.Huth,  
Laser Focus (1968) 26
- (5) H.Röhr, Laborbericht IPP 1/95 (1969) oder  
Z.Phys. 225, (1969) 494
- (6) E.Glock  
Proc. VII Int.Conf, on Phen.Ion.Gas.,  
Beograd III (1966) 194
- (7) G.J.Farmer, B.G.Huth, L.M.Taylor, M.R.Kagan  
Appl.Phys.Lett., 12 (1968) 136
- (8) M.Bass, T.F.Deutsch, M.J.Weber  
Appl.Phys.Lett. 13, (1968) 120
- (9) M.Kaufmann, Laborbericht IPP 1/86 (1968)  
oder Z.Phys. 225 (1969) 216