

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR QUANTENOPTIK

Laserparameter für die IR-Laser-Isotopentrennung
Laser parameter for the IR laser isotope separation

W. Fuß

Dieser MPQ-Bericht ist als Manuskript des Autors gedruckt
Alle Rechte vorbehalten

This MPQ-report has been printed as author's manuscript
All rights reserved

Max-Planck-Institut für Quantenoptik
8046 GARCHING bei MÜNCHEN, Bundesrepublik Deutschland

M P Q 83

Februar 1984

Laserparameter für die IR-Laser-Isotopentrennung
Laser parameter for the IR laser isotope separation

W. Fuß

Max-Planck-Institut für Quantenoptik, 8046 Garching, Germany

Wenn alle Photonen absorbiert werden sollen auch bei Bestrahlung eines seltenen Isotops, braucht man sehr große Weglängen. Diese können umso leichter verwirklicht werden, je größer das Verhältnis von Laserenergie zu Divergenz und Pulslänge ist. Bisher ist besonders die Rolle der Divergenz unbeachtet geblieben.

If all photons should be absorbed even if a rare isotope is irradiated, very long path lengths are needed. They can be realized the easier, the larger the ratio of laser energy to divergence and pulse length. So far in particular the role of the divergence has been ignored.

Es ist wiederholt gezeigt worden, daß mit der Laserisotopentrennung wäg-
bare Mengen von Isotopen getrennt werden können¹⁻⁹. Die Untersuchungen
konzentrieren sich nach wie vor auf Uran¹⁰. Es, gibt jedoch auch Anstren-
gungen bei einer Reihe leichterer Elemente (siehe die Übersicht ¹¹).
Insbesondere steht die Anreicherung von ¹³C wohl an der Schwelle der
wirtschaftlichen Verwirklichung ^{8,9,12}. In diesem Fall wird die Infra-
rot-Vielphotonen-Dissoziation von CF₃Br⁸⁻⁹ oder CDClF₂¹² mit Hilfe des
CO₂-Lasers benützt. Diese Methode eignet sich für eine große Zahl von
Molekülen, zum einen wegen des großen Wirkungsgrades des CO₂-Lasers, zum
andern weil man häufig geeignete Resonanzen mit großer spektraler Iso-
topenverschiebung findet. Die größten bisher demonstrierten Trennfak-
toren sind mit dieser Methode gefunden worden: Mehr als 10⁴ bei der
Trennung von CF₃D von CF₃H¹⁴ und bei der Trennung von CDCl₂F von
CHCl₂F¹³. Ein Nachteil ist die gewöhnlich kleine Absorptionswahr-
scheinlichkeit, die von der Vielphotonennatur des Prozesses herrührt.
Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit diesem Problem im Hinblick
auf die wirtschaftliche Ausnutzung der Photonen, insbesondere wenn nur
ein seltenes Isotop bestrahlt und umgesetzt werden soll. Um die be-
nötigte Energiedichte aufrecht zu erhalten, muß man von Zeit zu Zeit
wieder fokussieren. Wie die Rechnung zeigt, ist die Divergenz für die
Minimierung der Refokussierungsverluste von gleich großer Bedeutung wie
die Laserenergie und Pulslänge.

Selektivität

Die attraktivste Eigenschaft der Laserisotopentrennung ist ihre zuweilen
sehr hohe Selektivität S, auch Trennfaktor genannt. Sie ist definiert
als Isotopenverhältnis im Produkt, dividiert durch das anfängliche Iso-
topenverhältnis (x = molare Konzentration anzureichernden Isotops)

$$S = \left(\frac{x}{1-x} \right)_{\text{Produkt}} / \left(\frac{x}{1-x} \right)_{\text{Anfang}} \quad (1)$$

Gleichwertig ist die Definition über die Dissoziationswahrscheinlich-
keiten:

$$S = P_d / P_d^i \quad (1a)$$

Die von den beiden Isotopen absorbierten Energien E_a und E_aⁱ verhalten
sich wie

$$E_a / E_a^i = S_a \cdot x / (1-x) \quad (2)$$

wobei

$$S_a = \sigma / \sigma_i \quad (3)$$

das Verhältnis der Absorptionsquerschnitte ist und für Einphotonen-
prozesse S_a = S. Ist

$$S_a \gg x^{-1} \quad (4)$$

dann werden nach (2) die Photonen offenbar nur für das gewünschte, in
der Regel seltene, Isotop aufgewendet. Das spart nicht nur Photonen,
sondern auch Chemikalienkosten. Durch diese Möglichkeit könnte die
Laserisotopentrennung selbst im Fall eines so billigen Isotops wie
Deuterium konkurrenzfähig werden.

Bei Bestrahlung eines seltenen Isotops ist Bedingung (4) bisher keines-
weges oft erfüllt worden. Nur bei der IR-Vielphotonendissoziation von
CF₃D¹⁴ (S > 10⁴, S_a vermutlich ähnlich hoch, x_D = 1.4 · 10⁻⁴) und von
CDCl₂F¹³ (S > 10⁴) ist sie wohl erreicht worden. Bei derjenigen von
¹³CF₃Br (S₁₃ ≈ 100⁸, x₁₃ = 1.1 · 10⁻²), ¹³CHClF₂ (S₁₃ ≈ 100¹²) kommt man
der Bedingung (4) nahe, und es gibt Aussichten, S durch Kühlung und
andere Methoden¹¹ noch weiter zu erhöhen. Manchmal ist (4) bei weitem
nicht erfüllt wie z. B. in so bekannten Fällen wie ¹³CF₃I (S₁₃ ≈ 8¹⁵)
oder ³³SF₆ (S₃₃ ≈ 5 selbst bei Kühlung⁷, x₃₃ = 7 · 10⁻³). Dann ist es
einfacher und vielleicht auch wirtschaftlicher, das häufigere Isotop
umzusetzen, wie kürzlich am Beispiel von CF₃I vorgeführt wurde¹⁶.

Absorption und Quantenausbeute

Wenn man statt des häufigsten Isotops ein selteneres bestrahlt, wird man
die Weglänge des Lichts im Gas entsprechend erhöhen müssen, um die Pho-
tonen zu absorbieren. Erhöhung des Drucks an Stelle der Weglänge verbie-
tet sich, da während der Bestrahlungszeit möglichst wenig Stöße statt-
finden sollten, die die Selektivität durch Energieübertragung auf das
andere Isotop vermindern würden. Es gibt andererseits Berichte, nach
denen eine Druckerhöhung die Selektivität sogar erhöhen kann¹⁷⁻²¹. Nach
eigener Erfahrung bei CF₃Br und SF₆ ist diese Möglichkeit jedoch auf
Dissoziationswahrscheinlichkeiten P_d ≤ 10⁻² beschränkt, wo die Quanten-
ausbeute für praktische Zwecke zu klein ist. Dagegen gestattet ¹³CHClF₂
höhere Drücke auch noch bei P_d = 0.05...0.1¹². Die maximale Dichte n_m für
die isotopen Moleküle zusammen ist mit der Laserpulslänge t_p erfahrungs-
gemäß verknüpft durch

$$n_m = (k \cdot t_p)^{-1} \quad (5)$$

wobei k von der Größenordnung der gaskinetischen Stoßrate ($4 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1} \text{ Molekül}^{-1}$, bei Zimmertemperatur entsprechend $10^{10} \text{ s}^{-1} \text{ bar}^{-1}$) ist, aber für jedes Isotop empirisch festgestellt werden muß. Verlängerung des Absorptionswegs macht in gewöhnlichen Gaszellen bei Einphotonenprozessen keine grundsätzlichen Schwierigkeiten. Bei Vielphotonenprozessen ist aber die Erniedrigung der Energiedichte oder Intensität in Folge der unvermeidlichen Divergenz nicht tragbar. Man muß durch Refokussieren die notwendige Energiedichte oder Intensität wieder herstellen (siehe nächsten Abschnitt). Die erwünschte Energiedichte ϕ_m (J cm^{-2}) ist eine durch die Molekülart gegebene Größe, die u. a. abhängt von der Wellenlänge und dem Isotop, und die mit der maximalen Quantenausbeute zusammenhängt.

Abb. 1 zeigt typische Abhängigkeiten der Dissoziationswahrscheinlichkeiten P_d und der absorbierten Quanten pro Molekül q von ϕ . Ihr Quotient

$$\varphi = P_d/q \quad (6)$$

ist die Quantenausbeute. φ erreicht bei ϕ_{max} ein flaches Maximum mit $\varphi_{\text{max}} = 0.012$. Es ist aber günstiger, $\phi_m \cong 0.5 \phi_{\text{max}}$ zu wählen, wo φ immer noch $= 0.01$ ist, denn bei höherer Energiedichte nimmt die Selektivität im allgemeinen wieder ab. Man kann ϕ_m auch so definieren, daß P_d zwischen 0.1 und 0.2 liegt. Eine dritte Definition fordert, daß bei der Energiedichte ϕ_m die mittlere Zahl der pro Molekül absorbierten Quanten q_m etwa zwei Drittel der Dissoziationsenergie entsprechen soll.

Eine Variante des Beerschen Gesetzes ($hf = \text{Energie eines Quants}$)

$$q = \sigma \cdot \phi/hf \quad (7)$$

läßt sich zur Definition des Absorptionsquerschnitts σ benutzen. Er hängt ein wenig von ϕ ab. Dann benötigt man im Gas eine Weglänge von etwa

$$l = (\sigma n_x)^{-1} \quad (8)$$

um die meisten Photonen ($\sim 63\%$) zu absorbieren. Wenn das häufigere Isotop auch merklich absorbiert (wenn also (4) nicht ganz erfüllt ist), muß man statt dessen schreiben

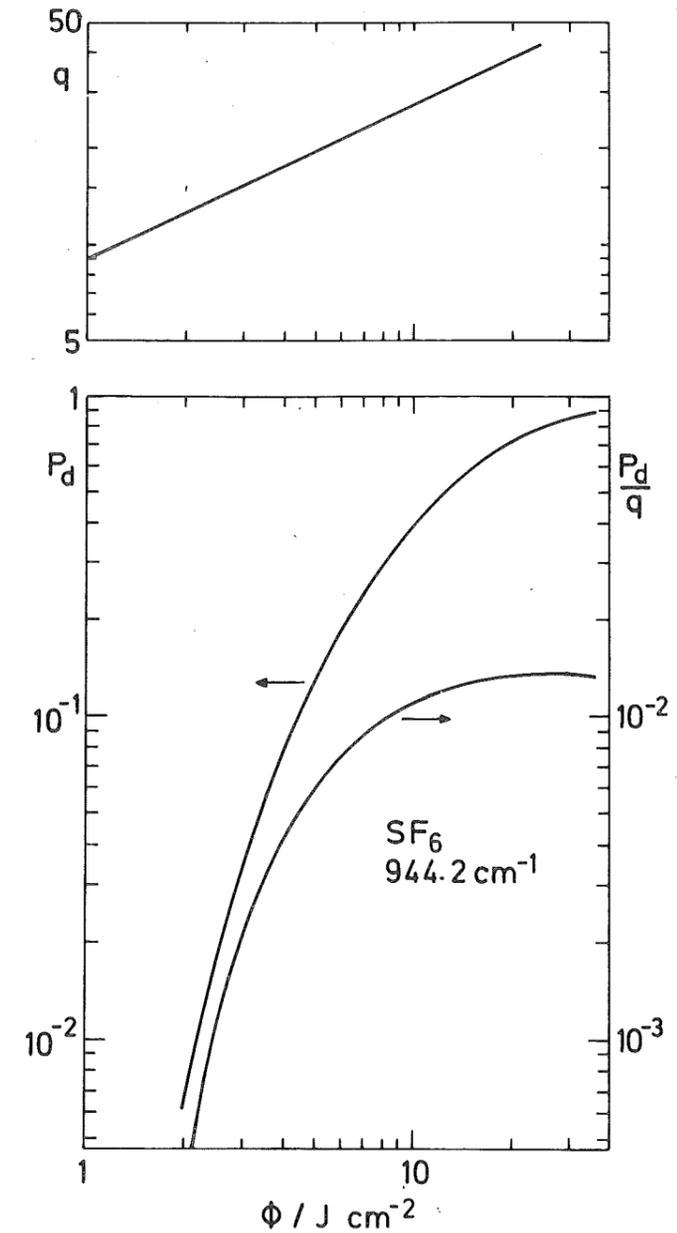


Abb. 1. Mittlere Zahl q der je Molekül absorbierten Quanten, Dissoziationswahrscheinlichkeit P_d und Quantenausbeute $\varphi = P_d/q$ für SF_6 gemessen bei 944.2 cm^{-1} . Die Lage dieser Kurven (angebar durch ϕ_m und $\sigma(\phi_m)$) hängt vom jeweiligen Molekül und der verwendeten Wellenlänge ab, die Form der Kurven variiert kaum.

$$l = n_m^{-1} (\sigma_1 x_1 + \sigma_2 x_2)^{-1} \quad (9)$$

Die so berechnete Länge muß man mit der Länge vergleichen, über die man die gewünschte Energiedichte durch Refokussieren aufrecht erhalten kann.

Divergenz und Refokussierung

Die kleinste mögliche Divergenz von Strahlung ist die beugungsbegrenzte. Bei Gaußschen Strahlen schließt ein Kegel mit dem (vollen) Öffnungswinkel $\delta = \lambda/w_0$ 99 Prozent der Intensität ein wobei λ die Wellenlänge und $2w_0$ der kleinste Durchmesser ($1/e^2$ -Punkte, πw_0 für die 99%-Punkte) des Strahlenbündels (die Strahltaile) ist. Eine Überlagerung von höheren Gaußschen Moden hat eine höhere Divergenz. Von Einzelheiten dieser Überlagerung hängt die Intensitätsverteilung quer zum Strahl ab. Diese Verteilung beeinflusst die Dissoziationsausbeute. Hier sollen aber nur ähnliche Strahlenbündel betrachtet werden, um Ähnlichkeitsgesetze abzuleiten. Solche Bündel können durch ihre Divergenz charakterisiert werden. Es ist zweckmäßig, den Divergenzwinkel δ (99%-Punkte) in Vielfachen N_F von λ/w_0 anzugeben:

$$\delta = N_F \cdot \lambda/w_0 \quad (10)$$

N_F ist invariant gegen optische Abbildungen. Bei Verkleinerung von w_0 vergrößert sich die Divergenz im selben Verhältnis. Die Verwandtschaft von N_F mit der Fresnelzahl erkennt man an der Rayleighlänge:

$$L_R = \pi w_0^2 / (\lambda N_F) \quad (11)$$

Das ist die Länge, nach der die Asymptote des Strahlenbündels auf den Durchmesser der Taille auseinander gelaufen ist (Abb. 2). Die wirklichen Querschnittsflächen bei der Taille und bei L_R verhalten sich wie 1:2. Will man die Energiedichte

$$\phi_m = E_l / (\pi w_m^2) \quad (12)$$

(E_l = Laserenergie; w_m berechnet sich dann aus dem gewünschten ϕ_m) aufrecht erhalten, so muss man offenbar spätestens nach einer Länge L_{ref} (von Spiegel zu Spiegel gemessen) refokussieren:

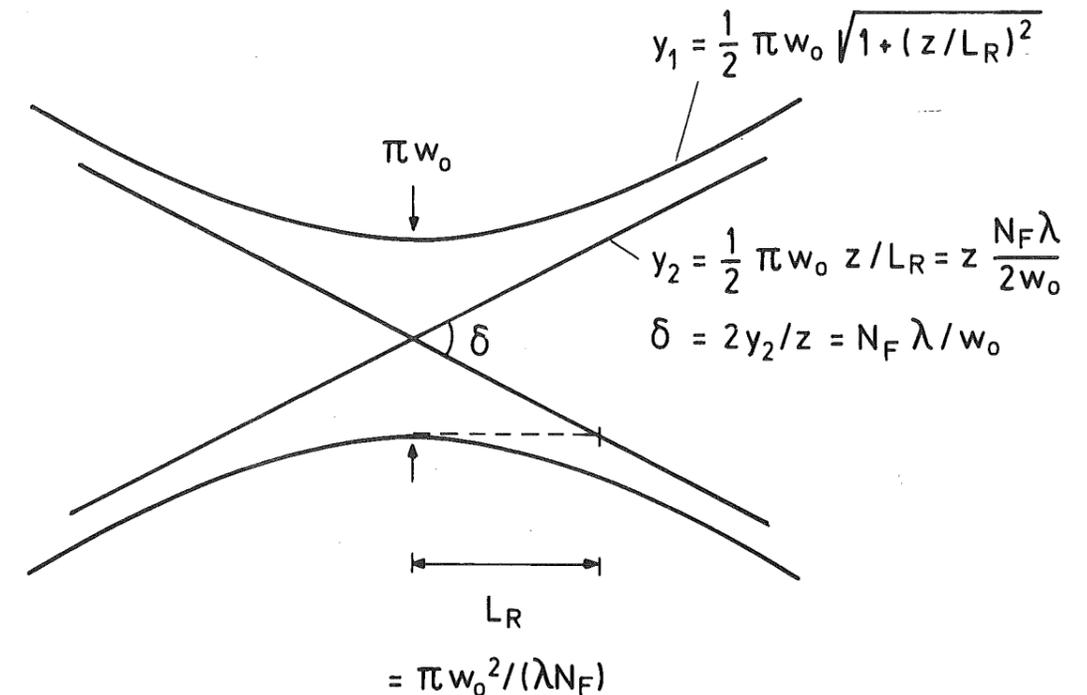


Abb. 2. Zusammenhang zwischen Divergenz und Rayleighlänge L_R . z ist die Koordinate in Ausbreitungsrichtung (waagrecht im Bild), y eine Koordinate senkrecht dazu.

$$L_{\text{ref}} = 2 \pi w_m^2 / (\lambda N_F) \\ = 2 \frac{E_q}{\lambda N_F} \cdot \frac{1}{\phi} \quad (13)$$

Der erste Faktor ist rein vom Laser bedingt, der zweite vom Molekül. Die Zahl der benötigten Refokussierungen erhält man aus (13) und (8) unter Berücksichtigung von (7) und (5)

$$Z = L/L_{\text{ref}} = \frac{1}{2} hc \cdot \frac{N_F}{E_p} \cdot \frac{1}{n_m x} \cdot \frac{q}{\sigma^2} \quad (14a)$$

$$= \frac{1}{2} hc k \cdot (N_F t_p / E_q) q / (\sigma^2 x) \quad (14b)$$

(h und c sind Plancks Konstante und die Lichtgeschwindigkeit). Wenn a den relativen Verlust pro Refokussierung bedeutet, sollte

$$Z \leq a^{-1} \quad (15)$$

sein. In der Praxis erreicht man etwa $a^{-1} = 50$.

Für ein minimales Z und damit für optimale Ausnutzung der Photonen geht die Absorptionswahrscheinlichkeit σ offenbar quadratisch ein. Beim Laser kommt es auf das Verhältnis von Spitzenleistung zur Divergenz an. Sollen die Refokussierungsverluste klein sein, muß man nach (14) und (15) für den Laser fordern:

$$E_1 / (t_p N_F) \geq \frac{1}{2} hck \cdot a \cdot q / (\sigma^2 x) \quad (16)$$

$$= \frac{1}{2} \lambda k \cdot a \cdot \phi_m / (\sigma x) \quad (16a)$$

Tabelle 1 gibt Zahlenbeispiele, berechnet für verschiedene Pulslängen und Stoffe nach Gleichung (16) und (8).

Der extreme Unterschied zwischen $^{13}\text{CF}_3\text{Br}$ und CF_3D ist hauptsächlich durch die geringe Häufigkeit von D bedingt. Umso wünschenswerter ist es, eine Verbindung mit größerem σ und kleinerem q (kleinerem ϕ_m) oder aber mit kleinerem k zu finden. Wegen des kleineren k (des höheren erlaubten Drucks) ergeben sich für $^{13}\text{CHClF}_2$ günstigere Zahlen als für $^{13}\text{CF}_3\text{Br}$.

Tab. 1. Erforderliche Laserenergien nach Gl.(16a) und Weglängen im Gas nach Gl. (5) und (8) für verschiedene Pulslängen (rechte Tabellen-seite). Für die Rechnung wurde beugungsbegrenzte Strahlung ($N_F = 1$) und eine mögliche Zahl von Reflexionen $a^{-1} = 50$ sowie die Parameter in der Mitte der Tabelle angenommen.

	x	$\sigma / 10^{-20} \text{cm}^2$	ϕ_m / Jcm^{-2}	$k / 10^{-10} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$	ν / cm^{-1}	3 μs	100ns	6ns
$^{13}\text{CF}_3\text{Br}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	10^a	$2,5^{b,c}$	$0,7^b$	1046,9	8J (3,3km)	0,25J (110m)	
$^{13}\text{CHClF}_2$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	7^d	$3,2^{c,d}$	$0,024^d$	1046,9	0,5J (150m)	16mJ (5m)	
CDF_3	$1,5 \cdot 10^{-4}$	10^e	10^f	$0,7^g$	979,7		80J (8,4km)	5J (500m)

a) von $^{12}\text{CF}_3\text{Br}$ bei 1076cm^{-1} , Lit. 28

b) W. Fuß, unveröffentlicht

c) diese Zahl garantiert noch eine Selektivität von 100; Dissoziationswahrscheinlichkeit $\cong 0.05$

d) nach Abb. 5 von Lit. 12

e) extrapoliert nach Abb. 8 von Lit. 29; 2 ns-Pulse, mit Zusatz von 1024 mbar CHF_3 .

f) Lit. 30 (Überschuß Argon)

g) geschätzt

Aus Gründen einer praktischen Weglänge sind in fast allen Beispielen der Tabelle die kürzeren Pulse vorzuziehen. Ein Standardpuls eines Atmosphärendruck-CO₂-Lasers hat etwa 3 μs und leider auch eine hohe Divergenz. Bei etwa 4 bar im Laser und entsprechend kleinerem Elektrodenabstand kann man nach unseren Erfahrungen leicht 50 bis 100 ns und Beugungsbegrenztheit erzielen, ohne Verlust an Wirkungsgrad. Weglassen von Stickstoff und instabile Resonatoren dagegen vermindern den Wirkungsgrad. Die große Rolle der Divergenz sowie die bescheidenen Anforderungen an die Laserpulsenergie in manchen Fällen legen es auch nahe, Längsentladungslaser zu verwenden, z. B. gütegeschaltete Dauerstrichlaser.

Refokussierungsmethoden

Eine Methode der Refokussierung ist eine Vielfachreflexionszelle. Im einfachsten Fall besteht sie aus zwei gleichen Hohlspiegeln im Abstand von etwa L_{ref} . Wegen der gewünschten Verhältnisse der Strahlquerschnitte an den Spiegeln und in der Taille wird man die Radien ebenfalls zu etwa L_{ref} wählen. Den genauen Abstand und Radius dieses beinahe konfokalen Resonators bestimmt man aus dem gewünschten Taillendurchmesser $2w_m$ und der Zahl der Durchgänge Z ²²⁻²⁴. Bei dieser Anordnung wird die divergenzbedingte Intensitätsabnahme teilweise ausgeglichen, indem der reflektierte Strahl mit dem einfallenden in der Nähe der Spiegel überlappt.

Eine andere refokussierende Langweg-Gaszelle ist der Lichtleiter. In ¹ wurde dafür ein einfaches Kupferrohr benützt. Attraktiv daran erscheint auf den ersten Blick, daß nur die Randstrahlen reflektiert werden und daß der Verlust pro Spiegelung dem Winkel zur Oberfläche (= $\delta/2$) proportional ist. Der Verlust pro Meter ist nach ⁴ mit den hier verwendeten Bezeichnungen:

$$\kappa \cong a' w_0^2 (\delta/\pi)^2 (\pi\phi_m/E_1)^{3/2} \quad (17)$$

Hierbei ist $a' = (a_{11} + a_{12})/4$ von ⁴ und $a' \cong 3,5$ für Kupfer. Außerdem wurde berücksichtigt, daß unser Divergenzwinkel δ (bei den 99% Punkten) etwa π mal größer ist als der in ⁴ verwendete halbe Divergenzwinkel zwischen den $1/e^2$ -Punkten. Mit (10) erhält man

$$\kappa \cong a' \sqrt{\pi} \lambda^2 \frac{N_F}{E_e} \phi_m^{3/2} \quad (18)$$

Ein ähnliches Ergebnis erhält man aus der Wellenleitertheorie (z. B. ²⁵), wenn man das in ²⁵ verwendete u_{nm} nach ²⁶ oder ²⁷ mit der Divergenz der aus der Wellenleitermode entstehenden Gaußschen Mode in Verbindung bringt.

Natürlich sollten die Verluste des Lichtleiters kleiner als die Absorption im Gas sein, also $\kappa < 1^{-1}$:

$$a' \sqrt{\pi} \lambda^2 (N_F/E_1)^{3/2} \phi_m^{3/2} < \sigma(k t_p)^{-1} x$$

oder

$$\begin{aligned} E_1^{3/2}/(N_F^2 t_p) &> a' \sqrt{\pi} \lambda^2 k \phi^{3/2} /(\sigma x) \\ &= a' \sqrt{\pi} \lambda (hc)^{3/2} q^{3/2} /(\sigma^{5/2} x) \end{aligned} \quad (19)$$

Offenbar ist die Divergenz noch wichtiger als bei Vielfachreflexionszellen. Zahlenbeispiele findet man in ⁴. Da jedoch die Innenflächen der Rohre nicht glatt genug hergestellt werden können, sind die Verluste weit höher als nach (19) berechnet. Entscheidend ist aber, daß man große Längen, wie sie für seltene Isotope nötig wären, nicht wirklich verwenden kann. Denn wenn man das Gas zwischen den Schüssen (in einigen Sekunden) austauschen will, dann ergibt sich ein Druckabfall im Bereich mbar/m. Das ist nur realisierbar bei hohen Gesamtdrücken (kurzen Pulslängen). In ² wurde statt dessen ein geschlitzter Lichtleiter mit Querströmung verwendet. Die optischen Verluste wurden jedoch nicht angegeben.

Ausnutzung der Photonen

Wegen der Intensitätsabnahme quer und längs zum Strahlenbündel erreicht man nicht die maximale Quantenausbeute φ_{max} (Abb. 1), sondern nur das Volumenmittel

$$\bar{\varphi} = \int \varphi(\phi) dV(\phi) \quad (20)$$

Realisierbar ist etwa $\bar{\varphi} \cong 0.5 \varphi_{max}$. In der Praxis wird jedoch nur der Anteil $A < 1$ der Photonen absorbiert. Weiter oben wurde $A \cong 1-1/e$ angenommen. Den Ausnutzungsgrad der Photonen kann man dann schreiben

$$\eta = A \bar{\varphi} \quad (21)$$

Wenn die Laserenergie die Bedingung (16) nicht erfüllt, hat man mehrere Möglichkeiten.

Man kann z. B. trotzdem noch so fokussieren, daß die maximale Quantenausbeute erreicht wird. (13) und (14) gelten dann weiterhin. Jedoch ist der vom Gas absorbierte Teil der Photonen nur

$$A \cong Z\alpha \quad (22)$$

d. h. das Verhältnis der vom Gas erforderten Weglänge ($\propto Z$) zur von der Zelle ermöglichten Länge ($\propto a^{-1}$). In diesem Fall ist $\eta \propto E_1 / (N_F t_p)$. Eine zweite Möglichkeit gründet sich auf die Berichte ^{12,17-21}, daß die Selektivität bei Druckerhöhung erhalten bleibt oder sogar ansteigt, falls man dabei eine verminderte Quantenausbeute in Kauf nimmt (d. h. falls man nicht durch Erhöhung der Energiedichte ϕ die Quantenausbeute auf ihrem Maximum φ_m hält). Man sollte dann η optimieren. A in (21) und (22) ist wie Z proportional der Dichte n . Die Dissoziationswahrscheinlichkeit scheint exponentiell vom Druck abzuhängen^{18, 21}, solange sie $< 10^{-2}$ ist. Da σ fast druckunabhängig ist, kann man das selbe auch für φ annehmen:

$$\varphi \cong \varphi_m \exp(-n/n_0) \quad (23)$$

n_0 muß man experimentell ermitteln. Vernachlässigt man den Einfluß des ein wenig verkleinerten ϕ auf Z , dann ist das Optimum von η bei $n=n_0$. Erhöhung des Druckes empfiehlt sich aber wegen der Erniedrigung von φ nicht im Fall von ¹³CF₃Br, wo ja die benötigten Weglängen auch mit konventionellen Laserparametern erreicht werden (Tab. 1). Bei anderen Isotopen ist eine hohe Selektivität bei erhöhtem Druck noch nicht gefunden worden.

Literatur

- / 1/ W. Fuß, W.E. Schmid, Ber. Bunsenges. 83 (1979) 1183
- / 2/ J.L. Lyman, B.B. McInteer, G.P. Quigley, G.W. Read, LA-UR-80-1682 (Laborbericht, Los Alamos Scientific Lab. Los Alamos (USA) 1980)
- / 3/ V.N. Bagratashvili, Yu. R. Kolomiiskii, V.S. Letokhov, E.A. Ryabov, V.Yu. Baranov, S.A. Kazakov, V.G. Nizjev, V.D. Pismennyi, A.I. Starodubtsev, E.P. Velikhov, Appl. Phys. 14 (1977) 217.
- / 4/ E.P. Velikhov, V.S. Letokhov, A.A. Makarov, E.A. Ryabov, Sov. J. Quantum Electr. 9 (1979) 179.
- / 5/ V.Yu. Baranov, E.P. Velikhov, S.A. Kazakov, D.D. Malyuta, V.S. Mezhevov, V.G. Nizer, S.V. Pigulskii, V.D. Pismennyi, A.I. Starodubtsev, Sov. J. Quantum Electr. 9 (1979) 480.
- / 6/ V.Yu. Baranov, E.P. Velikhov, S.A. Kazakov, Yu.R. Kolomiiskii, V.S. Letokhov, V.D. Pismennyi, E.A. Ryabov, A.I. Starodubtsev, Sov. J. Quantum Electr. 9 (1979) 486.
- / 7/ V.Yu. Baranov, E.P. Velikhov, Yu.R. Kolomiiskii, V.S. Letokhov, V.G. Niev, V.D. Pismennyi, E.A. Ryabov, Sov. J. Quantum Electr. 9 (1979) 621.
- / 8/ G.I. Abdushelishvili, O.N. Avatkov, V.N. Bagratashvili, V.Yu. Baranov, A.B. Bakhtadze, E.P. Velikhov, V. M. Vetsko, I. G. Gverdtsiteli, V.S. Dolzhikov, G.G. Esadze, S.A. Kazakov, Yu. R. Kolomiiskii, V.S. Letokhov, S.V. Pigulskii, V.D. Pismennyi, E.A. Ryabov, G.I. Tkeshelashvili, Sov. J. Quantum Electr. 12 (1982).
- / 9/ V.S. Letokhov, Physics Today Nov. 1980, 34.
- /10/ Siehe die Finanzierung der Laserforschung in den USA: J. Hecht, C.B. Hitz, Lasers and Applications, Juni 1983, S. 55
- /11/ V.S. Letokhov, C.B. Moore in "Chemical and Biochemical Applications of Lasers", Vol. 3, Herausg. C.B. Moore, Acad. Press, New York 1977
- /12/ M. Gauthier, C.G. Cureton, P.A. Hackett, C. Willis, Appl. Phys. B 28, (1982) 43.
- /13/ A. Hason, P. Gozel, H.van den Bergh, Nationale Konf. über koherente und nichtlineare Optik, Jerevan, Nov. 1982.
- /14/ I.P. Herman, J.B. Marling, J. Chem. Phys. 72 (1980) 516.
- /15/ M. Drouin, M. Gauthier, R. Pilon, P.A. Hackett, C. Willis, Chem. Phys. Lett. 60 (1978) 16.
- /16/ H. Kojima, T. Fukumi, S. Nakajima, Y. Maruyama, K. Kosasa, Appl. Phys. B 30 (1983) 143; Chem. Phys. Lett. 95 (1983) 614.
- /17/ M. Gauthier, W.S. Nip, P.A. Hackett, C. Willis, Chem. Phys. Lett. 69 (1980) 372.

- /18/ V.S. Doljikov, Yu. R. Kolomisky, E.A. Ryabov, Chem. Phys. Lett. 80 (1981) 433.
- /19/ M. Nève de Mévergnies, Appl. Phys. 25 (1981) 275;
Appl. Phys. B 26 (1981) 256.
- /20/ S.K. Sarkar, V. Parthasarathy, A. Pandey, K.V.S. Rama Rao,
J. P. Mittal, Chem. Phys. Lett. 78 (1981) 479.
- /21/ P.A. Hackett, M. Gauthier, C. Willis, R. Pilon, J. Chem. Phys. 71 (1979) 546.
- /22/ D.R. Herriott, H.J. Schulte, Appl. Opt. 4 (1965) 883.
- /23/ D. Herriott, H. Kogelnik, R. Kompfner, Appl. Opt. 3 (1964) 523.
- /24/ J. Altmann, R. Baumgart, C. Weitkamp, Appl. Opt. 20 (1981) 995.
- /25/ R.L. Abrams in "Laser Handbook", Band 3, Herausg. M.L. Stitch,
North Holland Publ., Amsterdam 1979.
- /26/ K. Gürs, Laser u. Elektrooptik, April 1980, 21.
- /27/ W.B. Bridges, Appl. Opt. 14 (1975) 2346.
- /28/ O.N. Avatkov, V.M. Vetsko, G.G. Esadze, A.V. Kaminskii,
G.I. Tkeshelashvili, Sov. J. Quantum Electr. 11 (1981) 668.
- /29/ J.B. Marling, I.P. Herman, S.J. Thomas, J. Chem. Phys. 72
(1980) 5603
- /30/ I.P. Herman, J.B. Marling, Chem. Phys. Lett. 64 (1979) 75.