

Erzeugung frequenzveränderlicher Infrarot-
Strahlung durch stimulierten elektronischen
Hyper-Raman-Effekt in Strontium-Dampf

J. Reif

MPQ 45

Mai 1981

Max-Planck-Institut
für Quantenoptik
D-8046 Garching
D-8046 Garching

January, 1981 (in German)

Abstract

Tunable infrared radiation in the wavelength range of 16 μm was generated by stimulated electronic hyper-RAMAN scattering in atomic strontium vapour using a pulsed dye laser. A nearby two-photon resonance was used to enhance the conversion efficiency. The actual infrared output was, however, much less than estimated from perturbational calculations. In addition, the observed dependence of the STOKES energy on the power of the dye laser differed drastically from the expectation of perturbation theory.

There is, however, quite good agreement between experiment and a non-perturbational description of the process, which had been stimulated by the present work. According to this theory, the observed saturation in the conversion process as well as the shape of the STOKES pulses is due to a significant depletion of the atomic ground-state population by the pumping light. Therefore, only a small intensity of the generated infrared radiation has been observed.

The spectral properties of the generated infrared light were investigated. The bandwidth of the STOKES radiation depends linearly on the width of the pump laser and is always smaller than that. Moreover it is influenced by the strontium vapour pressure and, very strongly, by the intensities of pump and generated light.

Zusammenfassung

Die Umwandlung durchstimmbarer kohärenter Strahlung aus dem sichtbaren in den infraroten Spektralbereich durch optisch-nichtlineare Prozesse ist eine vielversprechende und auch oft ausgenutzte Möglichkeit, durchstimmbare kohärente Strahlung für die Infrarot-Spektroskopie zu erzeugen. Einer dieser Umwandlungsprozesse ist der stimulierte elektronische RAMAN-Effekt von Atom-Dämpfen. Im Rahmen dieser Arbeit wird erstmals über die Erzeugung frequenzveränderlicher, schmalbandiger Strahlung im Wellenlängenbereich um $16 \mu\text{m}$ durch stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung von gepulstem Farbstoff-Laser-Licht in Strontium-Dampf berichtet. Dabei wird der RAMAN-Effekt bei quasi-resonanter Anregung durch einen Zwei-Photonen-Übergang ausgenutzt. Durch Verändern der eingestrahlteten Wellenlänge wird die stimulierte STOKES-Strahlung durchgestimmt. Das System mit der Zwei-Photonen-Anregung wurde deshalb gewählt, weil eine näherungsweise Betrachtung mit Hilfe der Störungsrechnung ergab, daß im Streuvolumen nicht mit einer Abnahme der Laser-Intensität zu rechnen sei (durch Absorption), wie dies bei einer quasi-resonanten Ein-Photonen-Anregung der Fall ist. Diese Annahme ist jedoch nicht zulässig. Die Messung der Ausbeute der Frequenzumwandlung ergab schon bei relativ geringer Laser-Intensität, daß das eingestrahelte Licht nach kurzer Eindringtiefe ins Medium bereits so stark abgeschwächt wird (ohne in entsprechende STOKES-Intensität umgewandelt zu werden), daß keine weitere Verstärkung des STOKES-Lichts mehr möglich ist. Eine Steigerung der Laser-Intensität führt zunächst zu einer Vergrößerung der Infrarot-Ausbeute, doch tritt schon bei geringer STOKES-Intensität eine Sättigung ein.

Dieses Ergebnis widerspricht den Erwartungen, die aus einer störungstheoretischen Beschreibung der stimulierten Hyper-RAMAN-Streuung folgen. Eine nicht-störungstheoretische Behandlung, angeregt durch die Ergebnisse dieser Arbeit, ist in der Lage, die beobachteten Effekte besser zu erklären. Diese Theorie auf semiklassischer Basis (d.h. die Atome werden quantenmechanisch beschrieben, die elektromagnetischen Felder klassisch) ermittelt die Polarisation des Mediums direkt aus den Bewegungsgleichungen für die Dichtematrix. Das wichtigste Ergebnis ist, daß es nicht erlaubt ist, die Besetzung im Grundzustand als nahezu gleichbleibend anzunehmen, wie dies in der Störungstheorie geschieht. Selbst bei relativ geringer Farbstoff-Laser-Intensität entsteht bereits eine beträchtliche Besetzung angeregter Zustände im Medium. Dies führt einerseits schon bei geringer Pumpintensität zu einer Verarmung der Atome im Grundzustand und damit zur beobachteten Sättigung der STOKES-Intensität. Zum anderen wird das Laser-Licht durch die Prozesse, die zur Umbesetzung führen, aufgebraucht, ohne in Infrarot-Licht umgewandelt zu werden.

Auch der experimentell beobachtete zeitliche Verlauf der STOKES-Pulse läßt sich durch die semiklassische Rechnung erklären. Bei geringer eingestrahelter Energie folgt der RAMAN-Puls der Form des Laser-Pulses; bei stärkerer Leistung des Pump-Lasers zeigt sich ein Intensitätsminimum der Infrarot-Strahlung zum Zeitpunkt maximaler Laser-Intensität, gefolgt von einem zweiten, schwächeren Maximum. Die Ursache für diese Pulsform liegt in der Entvölkerung des Grundzustands, die bei maximaler Pump-Laser-Intensität stärker ist als auf den Flanken des eingestrahelten Lichtpulses (die Entvölkerung hängt nur von der Intensität des eingestrahelten Lichts ab, nicht von der des Infrarot-Lichts). Das zweite Maximum in der Infrarot-Puls-

form ist — bei gleicher Laser-Intensität — schwächer als das erste, weil die Relaxation der Atome in den Grundzustand so langsam ist, daß dann weniger Grundzustandsatome zur Verfügung stehen als zu Beginn des Laser-Pulses.

Eine wichtige Frage im Zusammenhang mit der Anwendbarkeit dieser Strahlungsquelle in der Infrarot-Spektroskopie ist die Abhängigkeit der Bandbreite des STOKES-Lichts von der des eingestrahelten Farbstoff-Laser-Lichts. Deshalb wurde das Spektrum des erzeugten Infrarot-Lichts in der vorliegenden Arbeit besonders eingehend untersucht. Dabei ergab sich, daß die Linienbreite der RAMAN-Strahlung linear von der des Laser-Lichts abhängt und geringer ist als diese. Außerdem wird sie vom Dampfdruck des Strontiums und — sehr viel stärker — von den Intensitäten des eingestrahelten und des erzeugten Lichts beeinflusst.

Inhalt

Einleitung 1

I. Frequenzumwandlung von kohärenter Strahlung durch optisch-nichtlineare Prozesse 4

II. Stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung in Strontium-Dampf 15

III. Semiklassisches Modell für die stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung 18

IV. Experimenteller Aufbau 23

IV.1. Laser 23

IV.2. Heat-Pipe-Ofen 32

IV.3. Nachweissystem 34

IV.4. Übersicht über die experimentelle Anordnung 36

IV.5. Durchstimmbares FABRY-PEROT-Interferometer 40

IV.6. Messung der Pumplicht-Abschwächung 41

V. Experimentelle Ergebnisse 43

V.1. Durchstimmkurve 43

V.2. Abhängigkeit der Infrarot-Energie von der Pumpenergie 49

V.3. Vergleich der experimentellen Energieabhängigkeit mit der semiklassischen Rechnung 53

V.4. Zeitliches Verhalten der Infrarot-Pulse und Vergleich mit der semiklassischen Rechnung 61

V.5. Bandbreite des Infrarot-Lichts 64

VI. Schlußbemerkung und Ausblick 76

VII. Literatur 78

Einleitung

Die meisten Erkenntnisse, die wir heute über den Aufbau von Atomen und Molekülen haben, wurden aus spektroskopischen Untersuchungen gewonnen. Die optische Spektroskopie liefert vor allem wertvolle Daten über die Atomhülle und die elektronische Struktur der Moleküle, während die Infrarot-Spektroskopie über die Energien, die mit der Rotation und Vibration der Moleküle verbunden sind, d.h. über Kraftkonstanten und Abstand der Atome im Molekül, Aufschluß gibt. Für ein vollständiges Verständnis des Aufbaus von Atomen und Molekülen ist es notwendig, die Auflösung bei den spektroskopischen Untersuchungen immer weiter zu steigern. Deshalb wurde schon bald nach der ersten Realisierung der Laser mit seiner hohen spektralen Reinheit und Intensität als Lichtquelle für die Spektroskopie eingesetzt /1,2/. Neben einer verbesserten Auflösung wurden damit auch Untersuchungen von Mehr-Photonen-Prozessen möglich /3/, die bereits 1929 von Maria GOEPPERT-MAYER vorhergesagt wurden /4/. Bei Messungen im sichtbaren Spektralbereich haben sich vor allem Farbstoff-Laser /5/ bewährt, da sie nicht nur hohe Intensität bei schmaler Bandbreite anbieten, sondern außerdem noch über einen größeren Wellenlängenbereich kontinuierlich durchgestimmt werden können. Erst damit hat man ein Instrument in der Hand, mit dem systematische Untersuchungen möglich sind, während man bei Lasern mit fester Ausgangsfrequenz auf zufällige Koinzidenzen zwischen Photonen- und atomarer Energie angewiesen ist. Unglücklicherweise gibt es im infraroten Spektralbereich, in dem ein großer Teil der Molekül-Spektroskopie angesiedelt ist, keine dem Farbstoff-Laser an Universalität wirklich entsprechende Quelle. Die effektivsten Infrarot-Laser, Molekül-Laser

wie CO₂-, HF-, NH₃-Laser o.ä., können zwar bei mehreren benachbarten Wellenlängen (Linien) betrieben werden, sind jedoch nicht kontinuierlich durchstimmbare (s. z.B. /6/). Eine Ausnahme bilden hier lediglich die Hochdruck-Gas-Laser, bei denen die Linien aufgrund der Druckverbreiterung überlappen, doch sind damit immer noch nur eng begrenzte Spektralbereiche zugänglich.

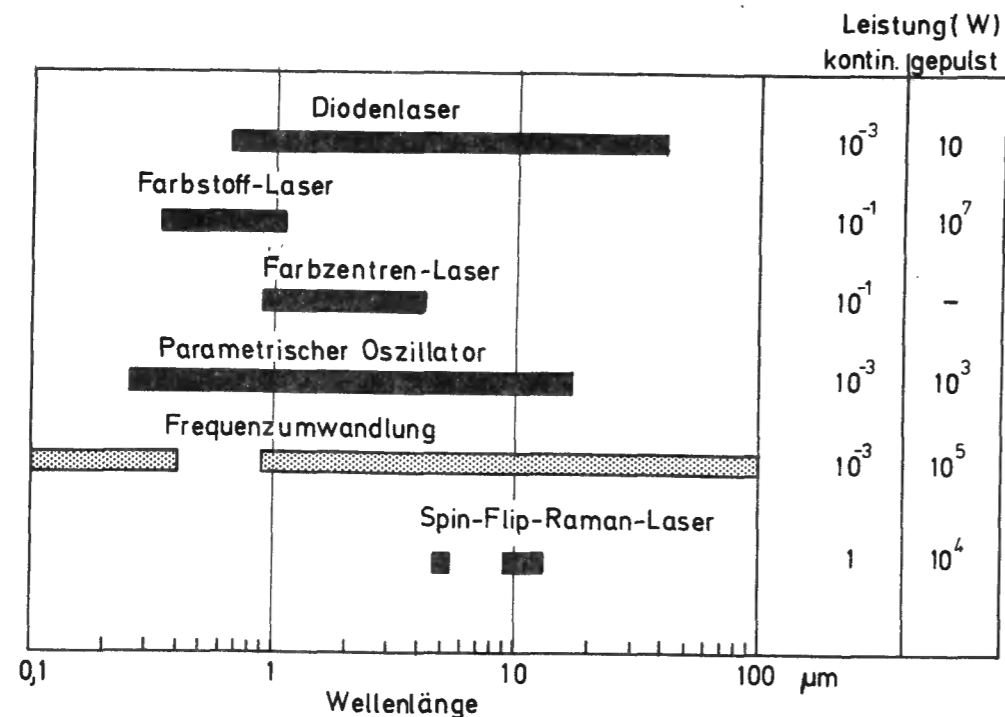


Abbildung 1: Durchstimmbereich verschiedener Lasersysteme (nach /2/)

Mit Farbzentren- /7/, Dioden- /8/, Spin-Flip-RAMAN-Lasern /9/ und Optisch-Parametrischen Oszillatoren /10/ stehen zwar durchstimmbare Infrarot-Laser zur Verfügung, doch sind die jeweils zugänglichen Spektralbereiche beschränkt. Außerdem ist zum Teil der apparative Aufwand außergewöhnlich hoch. Das macht das Studium anderer Möglichkeiten zur Erzeugung von durchstimmbarer kohärenter Infrarot-Strahlung interessant. So gewann schon früh die Frequenzumwandlung von Laser-Licht aus dem Sichtbaren ins Infrarote durch optisch-nichtlineare Prozesse an Bedeutung /11, 12, 13/. Durch Umwandlung von durchstimmbarem Farbstoff-Laser-Licht erhält man dabei auch durchstimmbare Infrarot-Strahlung.

Die wichtigsten nichtlinearen Prozesse, die benutzt werden, sind die Erzeugung von Differenzfrequenzen zweier Farbstoff-Laser in doppelbrechenden Kristallen /14/, die stimulierte RAMAN-Streuung in molekularen Systemen (z.B. H₂, N₂) /15/ und atomaren Dämpfen /16/ sowie die parametrische Mischung von vier Wellen in Metalldämpfen /17/.

Diese Arbeit behandelt die Frequenzumwandlung von Farbstoff-Laser-Licht durch stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung /18/ in Strontium-Dampf. Damit ist es möglich, frequenzveränderliche kohärente Strahlung im Wellenlängenbereich um 16 µm zu erzeugen. Die Untersuchung dieses Umwandlungsprozesses, besonders in Hinsicht auf die spektralen Eigenschaften des erzeugten Infrarot-Lichts, führt außerdem zu einem besseren Verständnis der Wechselwirkung zwischen intensiver elektromagnetischer Strahlung und Materie.

Im folgenden wird zunächst der untersuchte Prozeß näher vorgestellt; danach wird über die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente berichtet, die dann mit der Theorie verglichen werden.

I. Frequenzumwandlung von kohärenter Strahlung durch optisch-nichtlineare Prozesse

Die Ausbreitung einer elektromagnetischen Welle in Materie bewirkt eine mikroskopische Polarisation der Teilchen der Materie durch das elektrische Feld der Welle. Dies führt zu einer makroskopischen Polarisation im durchlaufenen Medium, die bei geringer Lichtintensität proportional der elektrischen Feldstärke der Welle ist.

Ist die Intensität der Welle jedoch so groß, daß ihr elektrisches Feld nicht mehr vernachlässigbar ist gegen die Felder, die innerhalb der Atome oder Moleküle des Mediums herrschen, so gilt dieser lineare Zusammenhang nicht mehr. In einem störungstheoretischen Ansatz kann man die Polarisation dann in Abhängigkeit von der elektrischen Feldstärke der Welle als Potenzreihe entwickeln, deren erstes Glied die bekannte lineare Polarisation ist:

$$P(\vec{r},t) = \epsilon_0 \{ \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(1)} \cdot \vec{E}(\vec{r},t) + \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(2)} : \vec{E}^2(\vec{r},t) + \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(3)} : \vec{E}^3(\vec{r},t) + \dots \dots + \overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(n)} : \vec{E}^n(\vec{r},t) \} \tag{1}$$

Dabei sind die (Feldstärke-unabhängigen) Entwicklungskoeffizienten $\overset{\leftrightarrow}{\chi}^{(n)}$ im allgemeinsten Fall Tensoren (n+1)ter Stufe und heißen Suszeptibilität n-ter Ordnung.

In der MAXWELL'schen Wellengleichung

$$(\nabla)^2 \vec{E}(\vec{r},t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}(\vec{r},t)}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}(\vec{r},t)}{\partial t^2} \tag{2}$$

die die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen im Medium beschreibt, tritt die induzierte Polarisation als Quelle des Wellenfeldes auf. Die nichtlinearen Terme in Gleichung 1 können dabei zum Entstehen von neuen Wellen führen. Zerlegt man nämlich das zeitabhängige Wellenfeld nach FOURIER in monochromatische Teilwellen, treten neben der eingestrahnten auch andere Frequenzen auf. So führt zum Beispiel der quadratische Anteil der Polarisation aufgrund von Mischtermen zum Auftreten von Wellen mit der doppelten Frequenz. Werden zwei Wellen mit unterschiedlicher Frequenz eingestrahlt, erhält man Licht mit der Summen- oder Differenzfrequenz (vgl. z.B. /14/). Allgemein kann man den verschiedenen Ordnungen der nichtlinearen Polarisation verschiedene Prozesse zuordnen. Dabei gibt die Ordnung an, wieviele Teilwellen (Frequenzen) das erzeugte Wellenfeld enthalten kann. In Anlehnung an das Buch von HANNA et al. /12/ gibt Tabelle 1 eine Übersicht über verschiedene optisch-nichtlineare Prozesse und die dafür verantwortlichen Terme der nichtlinearen Polarisation.

Man kann noch zusätzlich unterscheiden zwischen rein parametrischen Prozessen und solchen, wo ein Energieaustausch zwischen Strahlungsfeld und Materie stattfindet. Da bei der parametrischen Wechselwirkung der Zustand der Materie am Ende des Prozesses derselbe ist wie zu Beginn, müssen hier Energie und Impuls des gesamten Strahlungsfeldes erhalten bleiben. Aus der Impulserhaltung folgt, daß die Phasen der beteiligten monochromatischen Teilwellen einander angepaßt sein müssen. Die Summe der Wellenvektoren muß vor und nach der Wechselwirkung gleich sein. Diese Phasenanpassung macht die größte Schwierigkeit bei der experimentellen Realisierung der parametri-

Ordnung der Polarisation	Prozeß	$-\omega = -\{\omega_{E_1} + \dots + \omega_{E_n}\}$
1	Absorption, Brechungsindex	$-\omega = -(\omega)$
2	Summen-, Differenzfrequenz	$-\omega_{S,D} = -\{\omega_1 \pm \omega_2\}$
3	Vier-Wellen-Mischung	$-\omega_4 = -\{\omega_1 + \omega_2 + \omega_3\}$
3	Stimulierte Raman-Streuung	$-\omega_s = -\{\omega_p - \omega_p + \omega_s\}$
3	Zwei-Photonen-Emission, -Absorption, -Ionisation (E/A/I)	$-\omega_1 = -\{-\omega_2 + \omega_2 + \omega_1\}$
3	Kerr-Effekt $\left\{ \begin{array}{l} \text{Gleichspannung} \\ \text{optisch} \end{array} \right.$	$-\omega = -\{0 + 0 + \omega\}$
3		$-\omega = -\{\omega_p - \omega_p + \omega\}$
3	Erzeugung der dritten Harmonischen	$-3\omega = -\{\omega + \omega + \omega\}$
3	CARS (Coherent Anti Stokes Raman Scattering)	$-\omega_{AS} = -\{\omega_p + \omega_p - \omega_s\}$
5	Stimulierte Hyper-Raman-Streuung	$-\omega_s = -\{\omega_{p1} + \omega_{p2} - \omega_{p1} - \omega_{p2} + \omega_s\}$
5	Drei-Photonen-E/A/I	$-\omega_1 = -\{-\omega_2 - \omega_3 + \omega_1 + \omega_2 + \omega_3\}$
3/5/...	Selbstinduzierter intensitätsabhängiger Brechungsindex	$-\omega = -\{\omega + \omega - \omega + \dots\}$

Tabelle 1: Verschiedene nichtlineare Prozesse in Abhängigkeit von der Ordnung der verantwortlichen Polarisation. In der dritten Spalte sind die Frequenzen der beteiligten Teilwellen aufgeführt. Dabei ist links vom Gleichheitszeichen die Frequenz der induzierten Polarisation angegeben, während rechts die Frequenzen der induzierenden Felder stehen.

schen Prozesse, ist jedoch im allgemeinen gut beherrschbar.

Von den Effekten, für die der quadratische Term der nichtlinearen Polarisation verantwortlich ist, werden zur Erzeugung frequenzveränderlicher Infrarot-Strahlung die Bildung der Differenzfrequenz zweier "sichtbarer" Laser, von denen einer durchstimmbar sein muß /14/, und der Optisch-Parametrische Oszillator /10/ ausgenutzt. Bei letzterem wird eine eingestrahlte Welle der Frequenz ω im nichtlinearen Medium in zwei neue Wellen mit den Frequenzen ω_1 und ω_2 aufgespalten, für die gilt: $\omega_1 + \omega_2 = \omega$. Dabei stellen sich die erzeugten Frequenzen so ein, daß für diese Wellen gerade die Phasenanpassungsbedingung erfüllt ist. Die Medien für solche "quadratischen" Prozesse sind Kristalle, die kein Inversionszen-

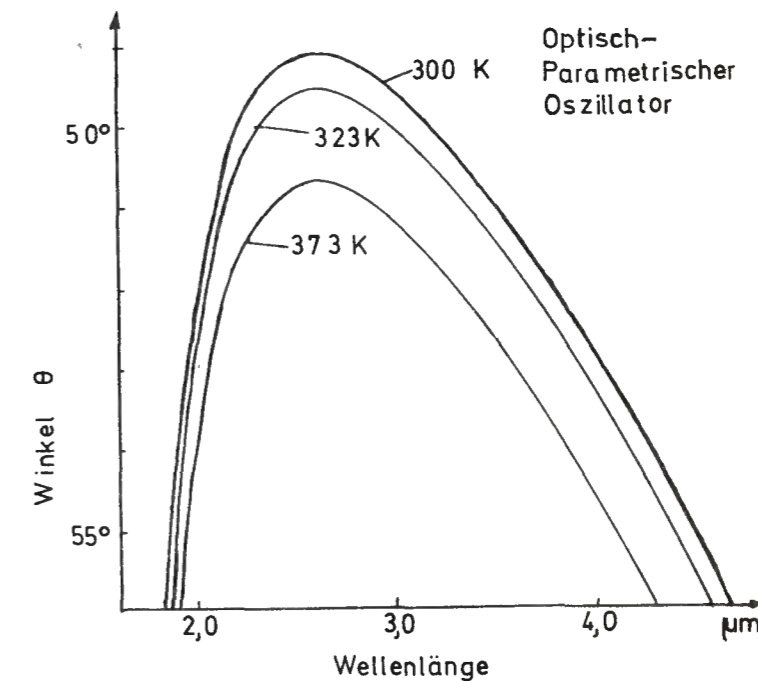


Abbildung 2: Durchstimmverhalten eines Optisch-Parametrischen Oszillators (nach /19/, Pumpwellenlänge 1,3 μm)

trum besitzen, da die geraden Terme der nichtlinearen Polarisation aus Symmetriegründen nur in nicht-zentrosymmetrischen Medien auftreten. Die Doppelbrechung wird zu der bei diesen Prozessen notwendigen Phasenanpassung ausgenutzt. Durch Drehen des Kristalls oder Ändern der Kristalltemperatur kann diese Anpassung über einen größeren Wellenlängenbereich beibehalten werden. Abbildung 2 zeigt die Durchstimmkurve für einen Parametrischen Oszillator mit LiNbO_3 als nichtlinearem Kristall und einem Jod-Laser (Wellenlänge $1,3 \mu\text{m}$) als Pumplichtquelle.

Als nächstes sollen die Effekte vorgestellt werden, für die der kubische Term in der nichtlinearen Polarisation verantwortlich ist. Die Wechselwirkung zwischen Strahlung und Materie wird durch Diagramme veranschaulicht, in denen die Materie durch ein vereinfachtes Termschema und die Wellen durch senkrechte Pfeile repräsentiert werden. Dabei ist die Ordinate eine Energieachse.

Der wohl wichtigste Effekt dritter Ordnung für die Erzeugung durchstimmbarer Infrarot-Strahlung ist die stimulierte RAMAN-Streuung, die schon 1962 von WOODBURY und NG beobachtet wurde /20/, als sie eine organische Flüssigkeit (Nitrobenzol) mit Rubin-Laser-Licht bestrahlten. Beim RAMAN-Effekt wird das Licht durch die Teilchen der Materie inelastisch gestreut. Abbildung 3 soll das verdeutlichen: Unter dem Einfluß des Strahlungsfeldes mit der Frequenz ω_p ändert sich der Energiezustand der Materie um den Betrag $\hbar\Omega$ zwischen den Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$. Die Energiebilanz wird ausgeglichen durch das Freisetzen von Strahlung mit der Frequenz ω_{AS} (Abbildung 3a) oder ω_s (Abbildung 3b,c). Vergleicht man Abbildung 3b und Abbildung 3c, so wird deutlich, daß beim Durchstimmen der Pumpwelle auch die RAMAN-verschobene Welle durch-

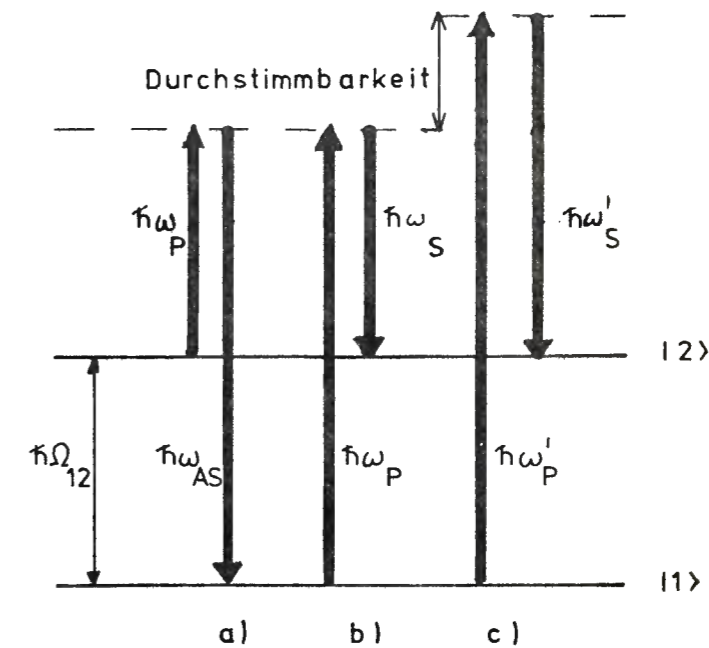


Abbildung 3: Zur Erklärung der stimulierten RAMAN-Streuung:
 a) Anti-STOKES-Streuung
 b), c) STOKES-Streuung

gestimmt wird. Das ist in der Abbildung nur für die STOKES-Streuung gezeigt (hier interessiert die Frequenzumwandlung ins Infrarote), gilt aber natürlich genauso auch für den Anti-STOKES-Fall. Wie in Tabelle 1 aufgeführt, tritt die erzeugte Frequenz ω_s innerhalb ihrer eigenen Quelle auf. Wegen dieser Rückkopplung kann der Prozeß stimuliert ablaufen.

Während die RAMAN-Verschiebung in organischen Flüssigkeiten relativ gering ist (Benzol 992 cm^{-1})/21/ und hauptsächlich zur Frequenzverschiebung von Festfrequenz-Lasern eingesetzt wurde, spielen bei der Umwandlung von Farbstoff-Laser-Licht zunächst einmal

molekulare Gase wie N₂ (RAMAN-Verschiebung 2 326 cm⁻¹) und H₂ (4 155 cm⁻¹) eine große Rolle /15/. Um größere Teilchendichten des Streumediums zu erreichen, werden Stickstoff und Wasserstoff auch unter hohem Druck (einige bar) oder in flüssigem Zustand eingesetzt. Durch mehrfache STOKES-Verschiebung (d.h. das erzeugte Licht wird wieder RAMAN-verschoben) kann man damit kohärente Strahlung erzeugen, die bis weit ins Infrarote verschoben ist.

Weitaus stärker kann die eingestrahlte Frequenz verschoben werden, wenn man als Streumedium einen quasi-resonanten atomaren Metalldampf benutzt /16,17/, bei dem die Zustände |1> und |2> elektronische Zustände sind. Den Nachteil viel geringerer Teilchendichten kann man wettmachen, indem man Atome und eingestrahlte Wellenlänge so wählt, daß eine nahezu resonante Anregung erfolgt. Abbildung 4 verdeutlicht diesen Fall.

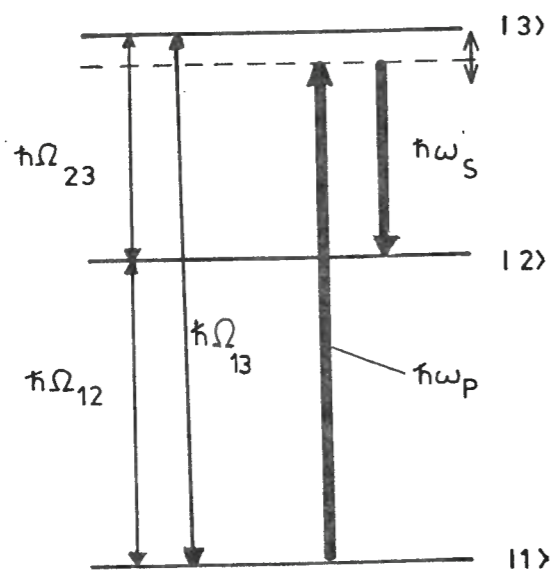


Abbildung 4: Stimulierte RAMAN-Streuung an Atom-Dämpfen. Die eingestrahlte und die erzeugte Frequenz (ω_p bzw. ω_s) liegen in der Nähe der atomaren Eigenfrequenzen Ω_{13} bzw. Ω_{23} .

In der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ treten im wesentlichen die Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen den Zuständen $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ und $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ zusammen mit entsprechenden Resonanznennern auf:

$$\chi^{(3)} \propto \frac{|u_{23}|^2}{\Omega_{12} + \omega_s - \omega_p + i\Gamma} \frac{|u_{13}|^2}{|\Omega_{13} - \omega_p|^2} \quad (3)$$

Daher ist der Umwandlungsgrad bei Quasi-Resonanz um Größenordnungen besser als im nichtresonanten Fall. Neben der stimulierten RAMAN-Streuung beruht auch die parametrische Vier-Wellen-Mischung auf dem kubischen Term der nichtlinearen Polarisation /17/. Dieser Prozeß ist zum besseren Verständnis in Abbildung 5 dargestellt.

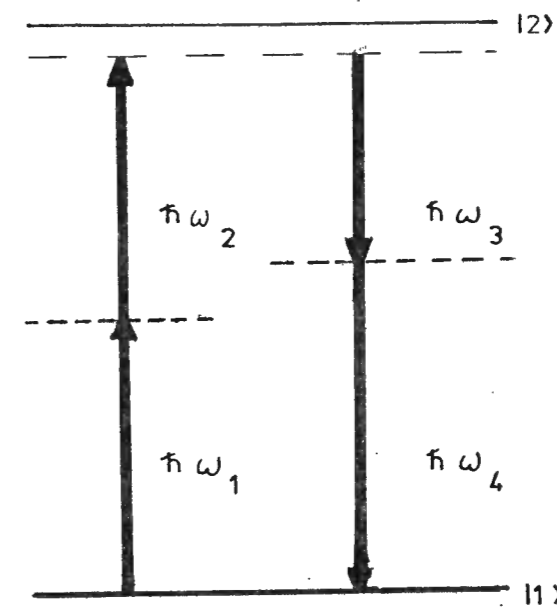


Abbildung 5: Parametrische Vier-Wellen-Mischung

Dabei bewirkt die nichtlineare Polarisation des Mediums (z.B. eines Atomdampfes) eine parametrische Kopplung von Wellen mit vier (verschiedenen) Frequen-

zen. Dabei muß $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 = 0$ sein (es gilt die Konvention, daß abgestrahlte Wellen mit negativen Frequenzen dargestellt werden). Außerdem müssen die Wellenvektoren der Beziehung $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \vec{k}_3 + \vec{k}_4 = 0$ gehorchen. Der bekannteste Prozeß einer solchen Vier-Wellen-Mischung ist die Erzeugung der dritten Harmonischen des Pumplichts. Es ist jedoch möglich, bei geeigneter Wahl von drei Pumpfrequenzen auch durchstimmbare Infrarot-Strahlung zu erzeugen (zum Beispiel in Abbildung 5: $\omega_1 = \omega_2 = \omega_{p1}$; $\omega_4 = -\omega_{p2}$; bei Variation von ω_4 ändert sich dann simultan auch ω_3). Wählt man Atom und eingestrahlte Frequenzen so, daß eine oder zwei Mehrphotonenresonanzen quasi-resonant getroffen werden, so verstärkt man auch hier den Umwandlungsgrad wesentlich*. Die Phasenanpassung läßt sich hier durch Beimischen eines Gases mit anderem Brechungsindex-Verlauf erfüllen und sehr viel leichter aufrechterhalten als bei parametrischen Prozessen in Kristallen.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit soll nun über die Frequenzumwandlung von Farbstoff-Laser-Licht aufgrund eines Effektes berichtet werden, für den die nichtlineare Polarisation fünfter Ordnung verantwortlich ist: die stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung. Dabei geschieht die Anregung durch einen Doppelquantenübergang. Mit Strontium-Dampf als Streumedium und einem Rhodamin-Farbstoff-Laser läßt sich so durchstimmbare monochromatische Strahlung im Wellenlängenbereich um $16 \mu\text{m}$ erzeugen. Dieses System wurde erstmals im Rahmen dieser Arbeit untersucht und soll im folgenden im Prinzip erklärt werden. Der Prozeß wird in Abbildung 6 anhand eines Ausschnitts aus dem Termschema von Strontium verdeutlicht: durch das Pumplicht bei

*So wurde zum Beispiel von SOROKIN et al. /17/ eine RAMAN-Resonanz ($\omega_2 = \Omega_{13} - \omega_1$) ausgenutzt.

576 nm wird durch einen Zwei-Photonen-Übergang ein virtuelles Niveau in der Nähe des $5s5d-^1D_2$ -Zustands angeregt, das unter Abgabe eines weiteren Quants bei $16 \mu\text{m}$ Wellenlänge in den $5s6p-^1P_1$ -Zustand übergeht.

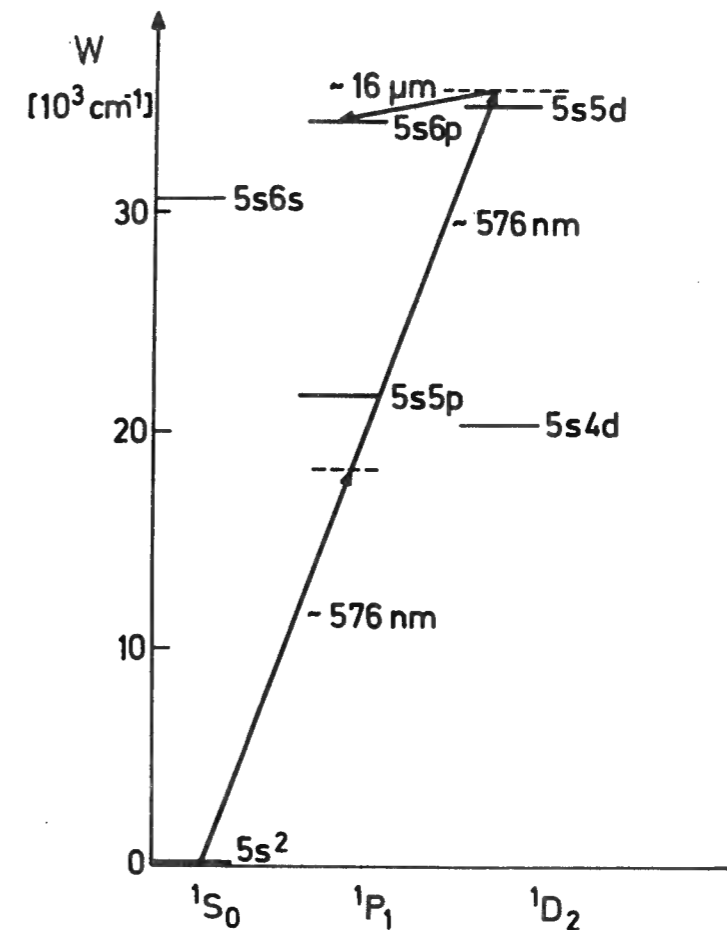


Abbildung 6: Ausschnitt aus dem Termschema von Strontium (Singlett-System) zur Erklärung der stimulierten Hyper-RAMAN-Streuung

Das Pumplicht induziert im Strontium eine nichtlineare Polarisation, die in der störungstheoretischen Beschreibung durch den folgenden Anteil von Gleichung 1 gegeben ist:

$$P_{\omega_s}^{(5)} = \chi^{(5)}(-\omega_s = -\{\omega_p - \omega_p + \omega_p - \omega_p + \omega_s\}) E_p E_p^* E_p E_p^* E_s \quad (4)$$

Hierbei ist die Polarisation faktorisiert dargestellt (vgl. /12/) und die E_i sind die Amplituden der monochromatischen Teilwellen des Wellenfeldes $\vec{E}(\vec{r}, t)$. Es werden also das Quadrat der Pumpintensität und die Feldstärke der erzeugten Welle miteinander verknüpft. Wegen dieser Rückkopplung läuft der Streuprozess stimuliert ab (vgl. Gleichung 2). Obwohl ein virtueller Zwischenzustand sehr nah bei einem realen Zustand des Atoms liegt (5s5d), ist das Medium in erster Näherung (Störungstheorie) für das Pump- und das STOKES-Licht nahezu transparent und dispersionsfrei, da beide Frequenzen sehr weit von einer Ein-Photonen-Resonanz entfernt sind. Man erwartet daher zunächst, daß der Prozeß nicht durch störende Absorptionen beeinflusst wird. Eine exakte theoretische Behandlung (semiklassisch, s. Kapitel III) zeigt jedoch, daß diese Annahme nicht zulässig ist.

Ein weiterer Grund für die Untersuchung dieses Systems ist, daß die Pumpwellenlänge im Emissionsbereich sehr effektiver Laser-Farbstoffe liegt, und nicht zuletzt ist der Bereich der erzeugten Wellenlängen interessant im Zusammenhang mit der Uranisotopentrennung /22/. Die durch die Frequenzumsetzung erzeugte Strahlung ist geeignet, die Übergänge in der ν_3 -Mode von UF_6 zu untersuchen, wo noch exakte spektroskopische Daten benötigt werden. Eine wichtige Voraussetzung für diese Untersuchung ist eine geringe Linienbreite der erzeugten Infrarot-Strahlung.

II. Stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung in Strontium-Dampf als optisch-nichtlinearer Prozeß

In diesem Kapitel sollen die Prozesse, die in dem untersuchten System ablaufen, im Bild der nichtlinearen Optik ausführlicher dargestellt werden. Bei Einstrahlen von intensivem Laser-Licht mit einer Wellenlänge um 576 nm sind im Strontium außer dem hier in erster Linie interessierenden Hyper-RAMAN-Effekt noch andere Wechselwirkungskanäle möglich. In Abbildung 7 sind die entsprechenden Diagramme anhand des Termschemas von Strontium wiedergegeben. Von dem untersuchten Prozeß nicht zu trennen ist eine parametrische Vier-Wellen-Mischung (Abbildung 7a), da der Übergang vom 5s6p-Zustand zum Grundzustand für Dipolstrahlung erlaubt ist. Hyper-RAMAN-Streuung und Vier-Wellen-Mischung sind auch über den 5s5p-Zustand möglich (Abbildung 7b). In diesem Fall wird frequenzveränderliche Strahlung um 768 nm erzeugt. Im Teil c der Abbildung ist schließlich ein störender Konkurrenzeffekt dargestellt, der nicht zur Erzeugung von infraroter, sondern von ultravioletter Strahlung führt. Die Erzeugung der dritten Harmonischen des Pumplichts wird dadurch begünstigt, daß die dreifache Laser-Frequenz in der Nähe einer autoionisierenden* Resonanz von Strontium liegt. Dieser Prozeß wur-

*Da Strontium als Erdalkali-Metall zwei Leuchtelektronen hat, gibt es in diesem Atom Zustände, bei denen beide Elektronen angeregt sind und daher die gesamte Anregungsenergie über der Ein-Elektronen-Ionisationsgrenze liegt. Dadurch ergibt sich für diese Anregungszustände jeweils ein Mischzustand aus gebundenem Zwei-Elektronen-Zustand und Ein-Elektronen-Kontinuum, den man als autoionisierenden Zustand bezeichnet.

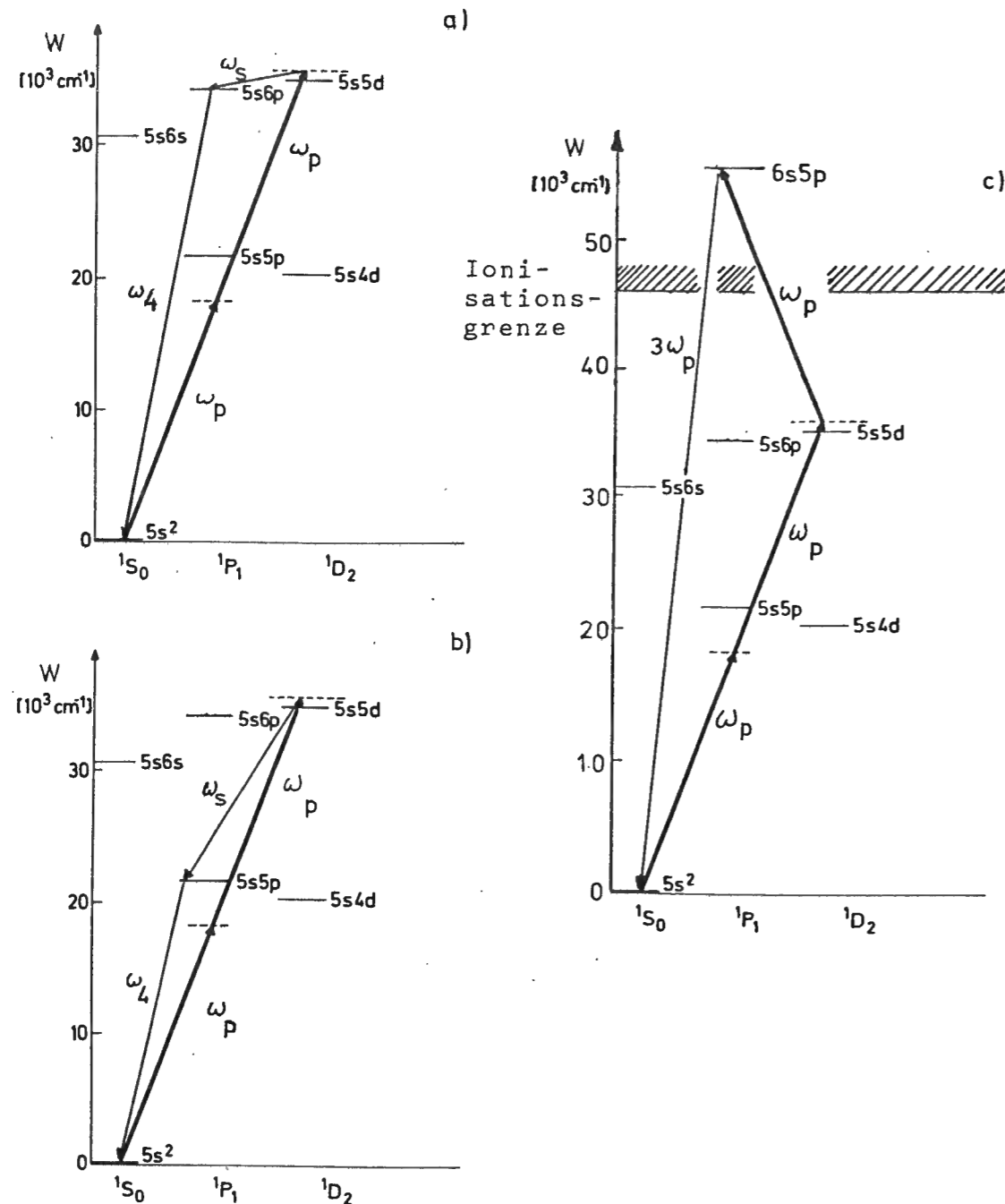


Abbildung 7: Die verschiedenen nichtlinearen Prozesse in Strontium-Dampf bei Einstrahlung von $\omega_p \approx 576 \text{ nm}$

- a) Hyper-RAMAN-Streuung und Vier-Wellen-Mischung ($16 \mu\text{m}/5s6p$)
- b) Hyper-RAMAN-Streuung und Vier-Wellen-Mischung ($767 \text{ nm}/5s5p$)
- c) Erzeugung der dritten Harmonischen mit Hilfe der Resonanz mit einem autoionisierenden Zustand

de von mehreren Autoren beobachtet und beschrieben /23/.

Eine grobe Abschätzung zeigt, daß bei den in Abbildung 7b dargestellten Prozessen die Verstärkung um etwa den Faktor 20 größer ist als bei denen nach Abbildung 7a, die hier wegen der größeren Frequenzverschiebung hauptsächlich interessieren und untersucht werden. Das liegt daran, daß die Verstärkung (berechnet durch Lösen der Wellengleichung, vgl. auch die folgende Gleichung 5) proportional ist zur Frequenz des erzeugten Lichts. Für die dritte Harmonische geben SCHEINGRABER et al. /23b/ einen Umwandlungsgrad an, der vergleichbar ist mit dem für den in dieser Arbeit untersuchten Prozeß.

Bei der störungstheoretischen Berechnung der Polarisation (Gleichungen 1 und 4) können die Effekte nach Abbildung 7b,c von denen nach Abbildung 7a entkoppelt werden, da dort die hier betrachtete Frequenz ω_s ($\approx 16 \mu\text{m}$) und der $5s6p$ -Zustand nicht auftauchen. Damit besteht die Polarisation bei ω_s aus zwei Anteilen: da ist einmal ein Beitrag fünfter Ordnung (vgl. Gleichung 4), der den stimulierten Hyper-RAMAN-Effekt beschreibt, und zum anderen ein Beitrag dritter Ordnung für die parametrische Vier-Wellen-Mischung. Durch Einsetzen in die Wellengleichung (Gleichung 2) erhält man schließlich ein gekoppeltes Gleichungssystem, das die Ausbreitung der monochromatischen Teilwellen ω_p , ω_s und ω_4 im Streumedium beschreibt (dabei wird die Welle mit ω_p als ungeschwächt angenommen). Die Lösung dieses Gleichungssystems führt schließlich zu einem Ausdruck für die Intensität des erzeugten Lichts mit der Frequenz ω_s , wenn das Streumedium die Länge "z" hat:

$$I_s \propto \exp \left\{ z \omega_s \left[a \chi_s^{(5)} I_p^2 + 2b \chi_s^{(3)} I_p \sqrt{\frac{\omega_4}{\omega_s}} (1 - \{\Delta k\}^2 \frac{a \chi_s^{(5)}}{4b \omega_4 \chi_s^{(3)2}} - \frac{\alpha(\omega_4)}{\omega_s}) \right] \right\}. \quad (5)$$

Der erste Summand im Exponenten beschreibt den Einfluß der stimulierten Hyper-RAMAN-Streuung, der zweite den des parametrischen Prozesses (die Phasenfehlanpassung Δk spielt hier eine abschwächende Rolle), und der dritte Summand kommt daher, daß die erzeugte Welle mit ω_4 im Medium absorbiert werden kann ($\alpha(\omega_4)$ ist der entsprechende Absorptionskoeffizient). Die Koeffizienten a und b sind Maßfaktoren.

Nach Gleichung 5 ist zu erwarten, daß bei niedriger Pumpintensität der parametrische Prozeß überwiegt, während bei hohen Intensitäten die Hyper-RAMAN-Streuung dominiert. Die Absorption von ω_4 spielt nur bei geringer Pumpintensität eine Rolle.

Eine Analyse der später beschriebenen Messungen zeigt jedoch, daß diese störungstheoretische Behandlung im vorliegenden Fall nicht zulässig ist. Sie hilft zwar bei der Veranschaulichung der untersuchten Wechselwirkung, doch ist der tatsächliche Einfluß der kohärenten Strahlung auf die Materie so groß, daß die Voraussetzungen für eine einfache Störungsrechnung nicht mehr gegeben sind. Deshalb haben W.H. LOUISELL und P. MEYSTRE - angeregt durch die Messungen dieser Arbeit - ein neues semiklassisches Modell für die Beschreibung der stimulierten Hyper-RAMAN-Streuung entwickelt /24/, das im folgenden Abschnitt kurz vorgestellt werden soll.

III. Semiklassisches Modell für die stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung

Bei dieser Beschreibung werden die elektromagnetischen Wellen klassisch behandelt, das heißt, als Lösung der MAXWELL'schen Wellengleichung dargestellt, wäh-

rend die Materie quantenmechanisch durch eine Dichtematrix für ein Vier-Niveaux-System repräsentiert wird. Daraus läßt sich schließlich ein Satz von Bewegungsgleichungen für die Elemente der Dichtematrix und für die elektrischen Felder aufstellen, der die Wechselwirkung vollständig beschreibt. In Abbildung 8 ist zunächst das Diagramm für das Vier-Niveaux-System gezeigt.

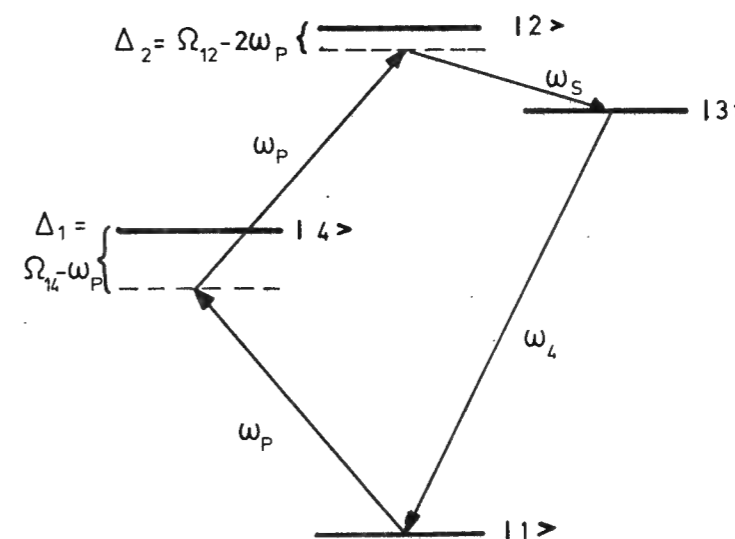


Abbildung 8: Vier-Niveaux-System nach /24/. Δ_1 und Δ_2 sind die jeweiligen Verstimmungen, ω_p ist die Laser-, ω_s die STOKES- und ω_4 die Frequenz der vierten Welle (s.a. Abb.7).

Es entspricht der Darstellung in Abbildung 7a und berücksichtigt die Tatsache, daß Übergänge zwischen dem Endzustand ($5s6p \hat{=} |3\rangle$) der Hyper-RAMAN-Streuung und dem Grundzustand ($5s^2 \hat{=} |1\rangle$) für Dipolstrahlung er-

laubt sind. Deshalb taucht auch die Frequenz ω_4 , genau wie in der störungstheoretischen Gleichung 5, in der Beschreibung an wichtiger Stelle auf. Für das elektrische Feld wird angenommen, daß es aus drei monochromatischen, linear polarisierten Partialwellen besteht (Pump-, STOKES- und vierte Welle)

$$E(z,t) = \sum_{i=p,s,4} E_i(z,t) \cos\{k_i z - \omega_i t + \phi_i(z,t)\}, \quad (6)$$

wobei die Amplituden E_i und Phasen ϕ_i nur noch langsam zeitlich veränderlich sind*.

Die Polarisation im Medium hat dann eine ähnliche Form und läßt sich in Dipolnäherung angeben durch

$$P(z,t) = N \text{Spur}(\hat{\rho} \hat{\mu}). \quad (7)$$

Dabei ist $\hat{\mu}$ der Dipoloperator, die Dichtematrix $\hat{\rho}$ beschreibt das Vier-Niveaux-System, und N ist die Teilchendichte im Streumedium. Da die Intensität des erzeugten STOKES-Lichts nur gering ist (wie die Experimente zeigen), kann man die Vorwärtswelle von der rückläufigen entkoppeln.

Die Polarisation wird zu

$$P(z,t) = N \left\{ (\mu_{14} \tilde{\rho}_{41} + \mu_{42} \tilde{\rho}_{24}) \exp\{-i\omega_p t\} + \mu_{32} \tilde{\rho}_{23} \exp\{-i\omega_s t\} + \mu_{13} \tilde{\rho}_{31} \exp\{-i\omega_4 t\} + \text{c.c.} \right\} \quad (8)$$

mit den Elementen der langsam veränderlichen Dichtematrix $\tilde{\rho}$ (die schnell veränderlichen Anteile stecken in den Exponentialfunktionen). Der erste Summand in der

*Diese Amplituden erhält man aufgrund der Annahme, daß sich die Amplitude nur langsam ändert, d.h. $\partial E_i / \partial t \ll \omega_i$, $\partial P_i / \partial t \ll \omega_i$, $\partial \phi_i / \partial t \ll \omega_i$

geschweiften Klammer beschreibt die Polarisation bei der Laser-Frequenz und bleibt unverändert, wenn das Pumplicht nicht abgeschwächt wird. Der zweite und dritte Summand geben die Polarisation bei der Frequenz der STOKES- und der vierten Welle an. Aus den MAXWELL'schen Gleichungen folgt dann die Wellengleichung

$$(\partial/\partial z + \kappa_i/2) E_i = k_i P_i / 2\epsilon_0, \quad (9)$$

in der die κ_i phänomenologische Verluste darstellen. Einsetzen der Polarisation führt dann zu einem gekoppelten System von Wellengleichungen für die drei Frequenzen, von der die für die STOKES-Welle die Form hat:

$$(\partial/\partial z + \kappa_s/2) \Omega_s = i(3\pi N c^2 / 2\omega_s^2) (\tilde{\rho}_{23} / \tau_{23}) \quad (10)$$

Dabei ist die elektrische Feldstärke durch die entsprechende RABI-Frequenz

$$\Omega_s = \mu_{23} E_s / 2\hbar \quad (11)$$

dargestellt und das Übergangsmoment $|\mu_{23}|^2$ als Ausdruck des entsprechenden EINSTEIN-A-Koeffizienten $A_{ij} = 1/\tau_{ij}$.

Dieses gekoppelte System ist zu kompliziert, um es algebraisch zu lösen und damit die Polarisation analytisch voll zu bestimmen. LOUISELL und MEYSTRE haben daher die Lösungen numerisch ermittelt:

Nach der Wechselwirkung befindet sich eine beträchtliche Anzahl von Atomen nicht mehr im Grundzustand $|1\rangle$, sondern die (nichtresonanten) Zustände $|2\rangle$ und $|4\rangle$ sind erheblich besetzt. Die Wechselwirkung kann also nicht mehr nur als kleine Störung der Atome be-

trachtet werden. Deshalb ist auch der störungstheoretische Ansatz im vorliegenden Fall nicht gerechtfertigt. Der Grund für die merkliche Besetzung in den höheren Zuständen liegt zum einen darin, daß die Relaxationszeiten dort vergleichbar sind mit der Laserpulsdauer, die Atome also nicht sofort wieder in den Grundzustand fallen. Zum anderen sind dafür andere Wechselwirkungskanäle verantwortlich, die weniger "nichtlinear" sind als die stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung (Ein- und Zwei-Photonen-Übergänge im Gegensatz zum Drei-Photonen-Übergang). Schon bei geringer Umwandlung von Laser- in STOKES-Licht tritt als Folge dieser Umbesetzung Sättigung ein. Schwache Infrarot-Intensität bedeutet also nicht, daß die Wechselwirkung noch im Kleinsignalbereich der Störungstheorie stattfindet.

Leider lassen sich die Ergebnisse der theoretischen Berechnungen im wesentlichen nur zu einem qualitativen Vergleich mit den Messungen dieser Arbeit heranziehen. Der Wert, der in den Rechnungen für die Verstimmung Δ_1 (vgl. Abbildung 8) eingesetzt wurde, ist nämlich sehr viel kleiner als im Experiment. Eine Anpassung an die experimentellen Werte würde eine beträchtliche Ausweitung der Rechenzeit erfordern, die physikalische Erklärung würde sich dabei jedoch nicht ändern /24b/.

IV. Experimenteller Aufbau

Die Aufgabe dieser Arbeit besteht in der experimentellen Untersuchung der stimulierten Hyper-RAMAN-Streuung von Farbstoff-Laser-Licht in Strontium-Dampf. Die Meßanordnung muß daher im Prinzip aus Farbstoff-Laser mit Pump-Laser, Streuzelle und Nachweissystem für die erzeugte Strahlung bestehen. Das ist in Abbildung 9 schematisch dargestellt.

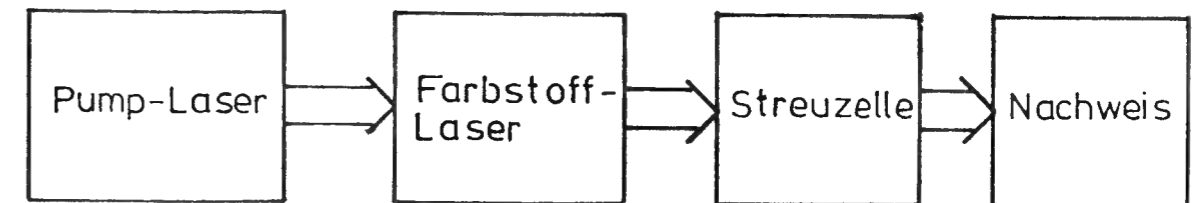


Abbildung 9: Prinzipieller Aufbau des Experiments

IV.1. Laser

Für alle Experimente werden gepulste Farbstoff-Laser benutzt, die nach dem Prinzip von HÄNSCH /25/ aufgebaut sind. Bei den ersten Messungen, mit denen die Erzeugung von frequenzveränderlicher kohärenter 16- μ m-Strahlung durch stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung in Strontium-Dampf erstmals demonstriert wurde /18c/, wurde ein kommerzieller Farbstoff-Laser (Molelectron DL 300) von einem Stickstoff-Laser (Molelectron UV 400) gepumpt (s. Abbildung 10).

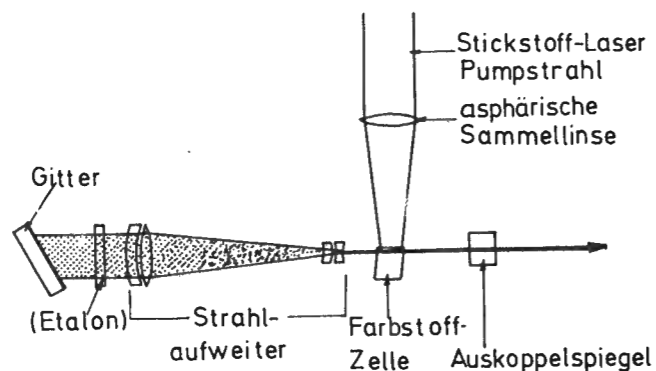


Abbildung 10: Stickstoff-Laser-gepumpter Farbstoff-Laser (Molelectron DL 300, nach /26/)

Diese Anordnung liefert bei der benötigten Wellenlänge von etwa 576 nm (vgl. Abbildung 6) eine Pulsenergie von 0,2 mJ am Eintrittsfenster des Streumediums. Als Farbstoff wird eine 10^{-3} -molare Lösung von Rhodamin 6 G in Äthanol benutzt. Die Pulse haben eine Dauer von 10 ns, so daß sich eine mittlere Leistung von 20 kW pro Puls ergibt. Dabei beträgt die spektrale Breite 0,01 nm ($\approx 0,3 \text{ cm}^{-1}$). Um den Einfluß der Bandbreite des Pumplichts auf die Frequenzverteilung der erzeugten Infrarot-Strahlung untersuchen zu können, ist es notwendig, die Linienbreite des Farbstoff-Lasers zu variieren. Bei einer Einengung sinkt jedoch - aufgrund der Verluste der dafür notwendigen frequenzselektiven Elemente - die Ausgangsleistung zu stark ab, so daß der Variationsbereich eingeschränkt war.

Deshalb wurde für die weiteren Experimente ein stärkerer Farbstoff-Laser im Eigenbau erstellt. Dabei dient ein kommerzieller Nd^{3+} -YAG-Laser (Quanta Ray DCR 1) als Pump-Laser. Dieses Gerät beruht auf einer Entwicklung von HERBST et al. /27/ und besteht aus einem instabilen Resonator mit Güteschalter ("Q-switch") und einem Verstärker. Diese Anordnung ist in Abbildung 11 dargestellt.

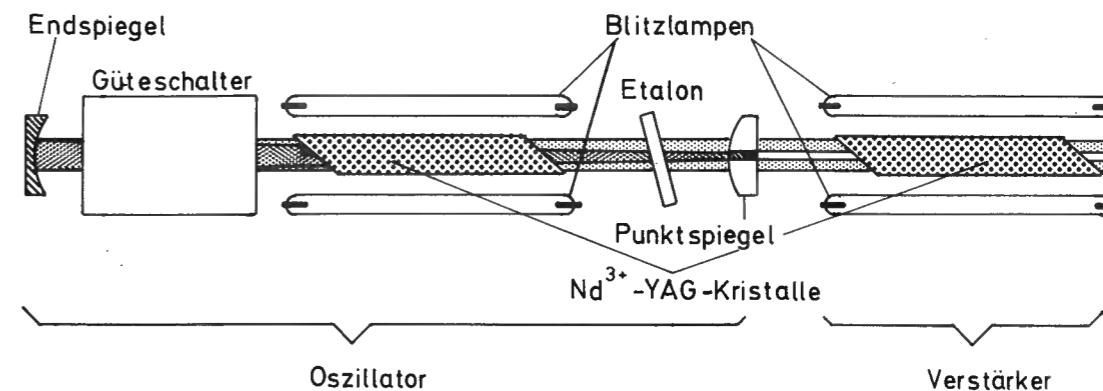


Abbildung 11: Aufbau des Quanta Ray DCR 1 Lasers (schematisch)

Der instabile Resonator, der von zwei hochreflektierenden gekrümmten Spiegeln in "Strahlauflweiter"-Anordnung gebildet wird, nutzt das vom Blitzlampenlicht angeregte Volumen des Oszillator-Kristalls vollständig aus. Die Auskopplung geschieht dabei in einem Ring um das verspiegelte Zentrum des Konkavspiegels. Entsprechend ist die räumliche Intensitätsverteilung des abgestrahlten Lichts im Nahfeld durch einen Ring gegeben (s. Abbildung 12), der beugungs-

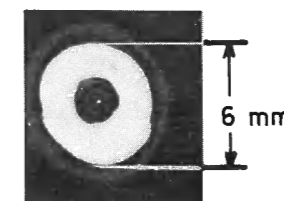


Abbildung 12: Strahlquerschnitt des Nd^{3+} -YAG-Lasers (Brennmuster, etwa 50 cm vom Laser entfernt)

begrenzt ist, sich also gut fokussieren läßt. Da beim plötzlichen Öffnen des Güteschalters mehrere Resonatormoden gleichzeitig anschwingen können, ist die zeitliche Struktur der abgegebenen Laser-Pulse überlagert von einer Schwebung dieser longitudinalen Moden. Diese starke zeitliche Struktur ("Spikes") überträgt sich natürlich verstärkt auf den Verlauf des Farbstoff-Laser-Pulses (vgl. Abbildung 13a,e). Eine Verbesserung war erst gegen Ende der Messungen zu dieser Arbeit durch den Einsatz eines inzwischen

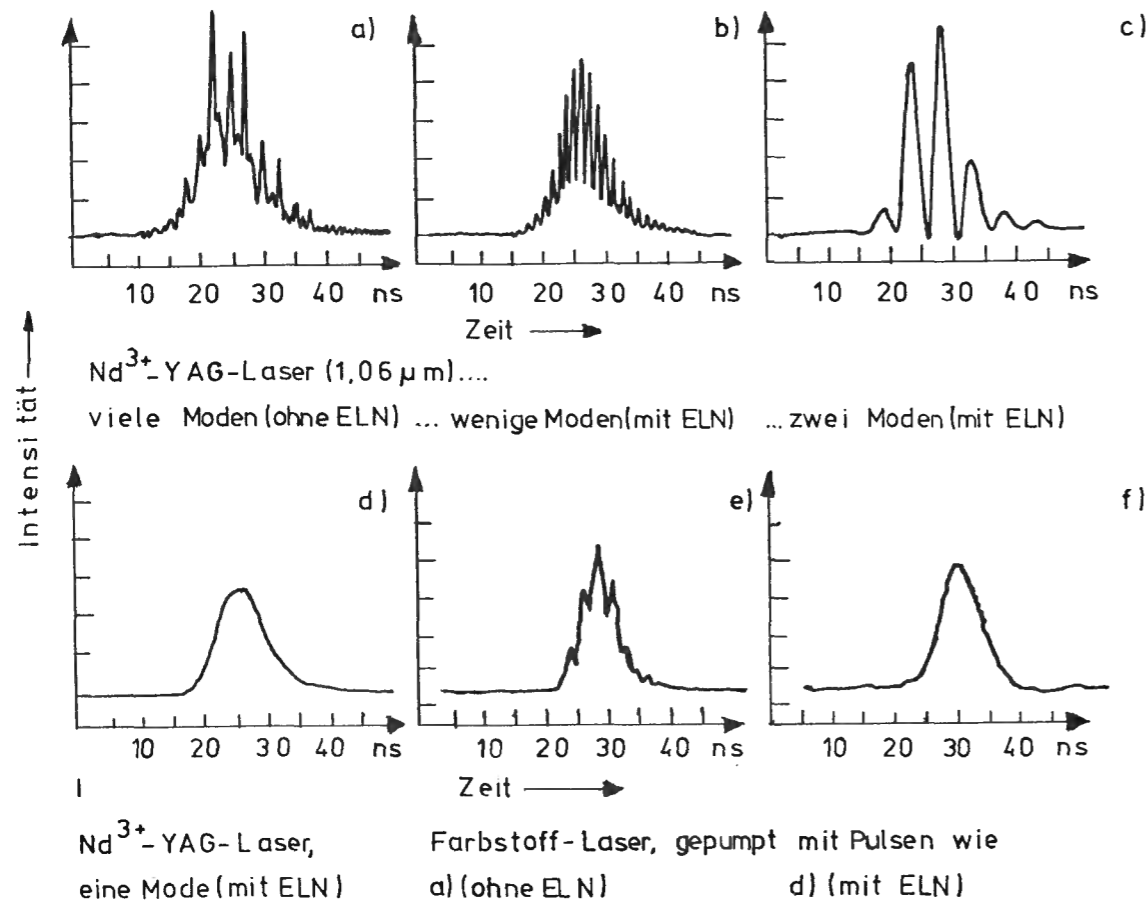


Abbildung 13: Zeitlicher Verlauf der Laser-Pulse
a)-d) Nd-YAG-Laser
e), f) Farbstoff-Laser
Deutlich ist in c) die vollständige Durchmodulation bei der Überlagerung von zwei Moden zu erkennen.

entwickelten externen Steuergerätes für den Güteschalter (Quanta Ray ELN*) möglich. Dieses Gerät bewirkt, daß der Q-switch in einem ersten Schritt nur zum Teil geöffnet wird, so daß zunächst nur eine longitudinale Mode anschwingt. Sobald dieser Zustand erreicht ist – dieser Zeitpunkt wird vom externen Steuergerät über optische Rückkopplung aus dem Resonator kontrolliert – wird der Güteschalter vollständig geöffnet und die gesamte gespeicherte Energie wird in dieser einen Mode emittiert. Dadurch entfallen die "Spikes", und die Pulse haben einen glatten zeitlichen Verlauf. (Vgl. Abbildung 13d,f). Wird der Güteschalter zu Beginn zu weit geöffnet, so können zwei oder mehr Moden gleichzeitig anschwingen. Das führt – gerade bei zwei Moden (Abbildung 13 c) – zu einer langsamen, sinusförmigen Modulation der Pulsform. Da die Energie, die von den Blitzlampen in den Laserkristallen deponiert wird, von Puls zu Puls verschieden sein kann (also die Verstärkung verschieden ist), kann eine solche Modulation häufiger beobachtet werden. Bei den Messungen sind jedoch nur glatte Pulse erwünscht. Deshalb müssen für die Auswertung speziell Pulse mit einem glatten Verlauf ausgewählt werden. Abbildung 14 zeigt schematisch noch einmal die Wirkungsweise des Steuergerätes für den Güteschalter.

Die im Oszillator erzeugte Strahlung wird in einem zweiten Kristall verstärkt. Danach haben die Laser-Pulse eine mittlere Energie von etwa 700 mJ bei einer Dauer von 8 ns und einer Wellenlänge von 1,06 μm. Um einen Farbstoff-Laser bei 576 nm pumpen zu können, wird dieses Infrarot-Licht durch Erzeugen der zweiten Harmonischen in einem KD*P-(Typ II)-Kristall in sichtbares Licht umgewandelt. Hierbei erhält man Pulse mit einer mittleren Energie von etwa 200 mJ bei

*Die Bezeichnung ELN bedeutet "Electronic Line Narrowing"

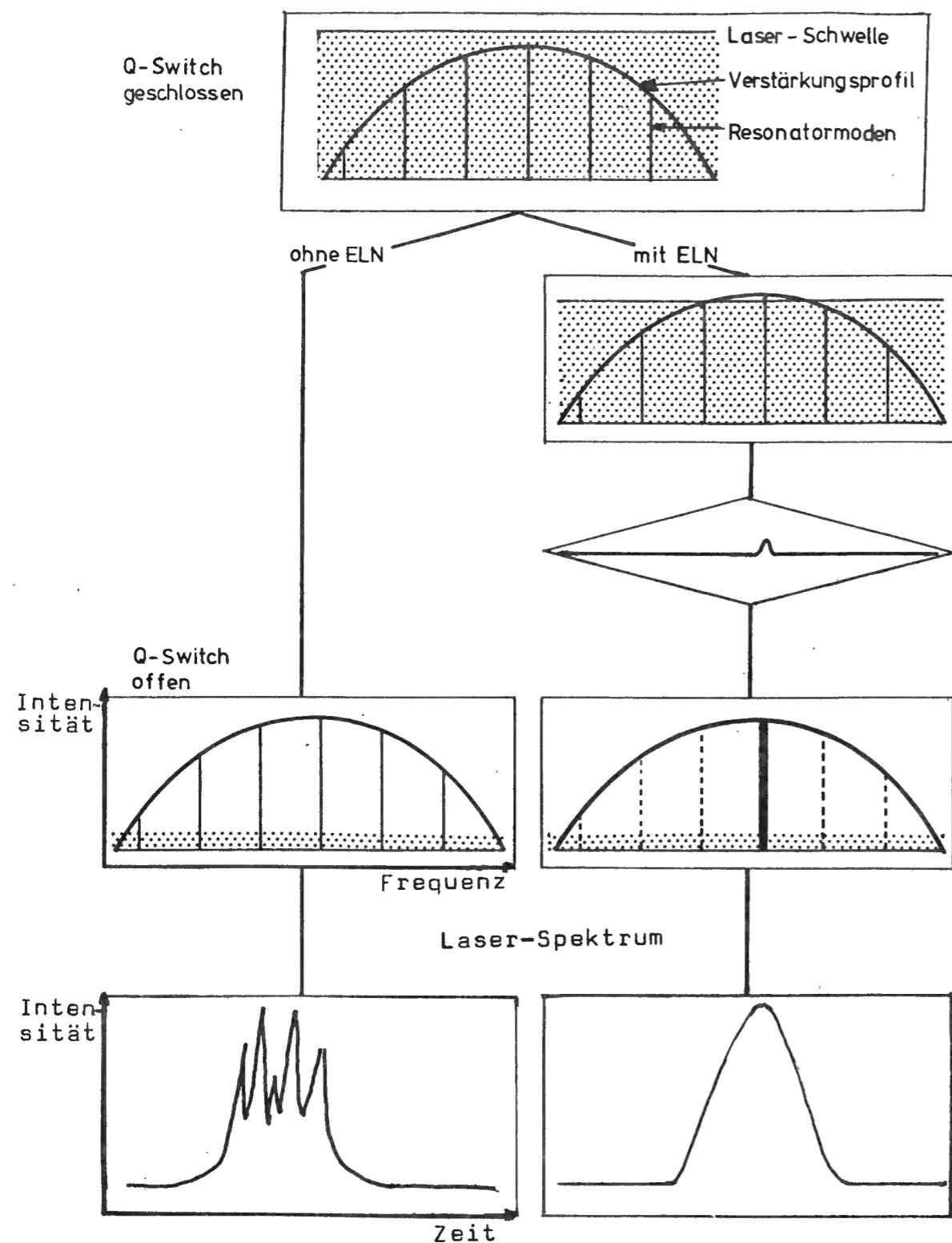


Abbildung 14: Zur Wirkungsweise der externen Q-Switch-Ansteuerung ELN

einer Wellenlänge von 532 nm. Davon werden jedoch aus technischen Gründen (Belastbarkeit der optischen Komponenten) nur bis zu 100 mJ zum Pumpen des Farbstoff-Lasers ausgenutzt.

Der Farbstoff-Laser besteht aus einem Oszillator (HÄNSCH-Typ) mit zwei nachfolgenden Verstärkern (s. Abbildung 15). Der Resonator des Oszillators mit transversal gepumpter Farbstoffzelle wird von einem planen Auskoppelspiegel (Reflexion 33%) und einem Reflexionsgitter (Echelle mit 316 Strichen pro mm) in LITROW-Anordnung gebildet. Zur Vermeidung von störenden Interferenzen ist der Auskoppelspiegel auf ein keilförmiges Substrat aufgedampft. Durch Drehen des Gitters um eine Achse senkrecht zur Resonator-Achse kann die Wellenlänge des Lasers über den gesamten Emissionsbereich des benutzten Farbstoffs durchgestimmt werden.

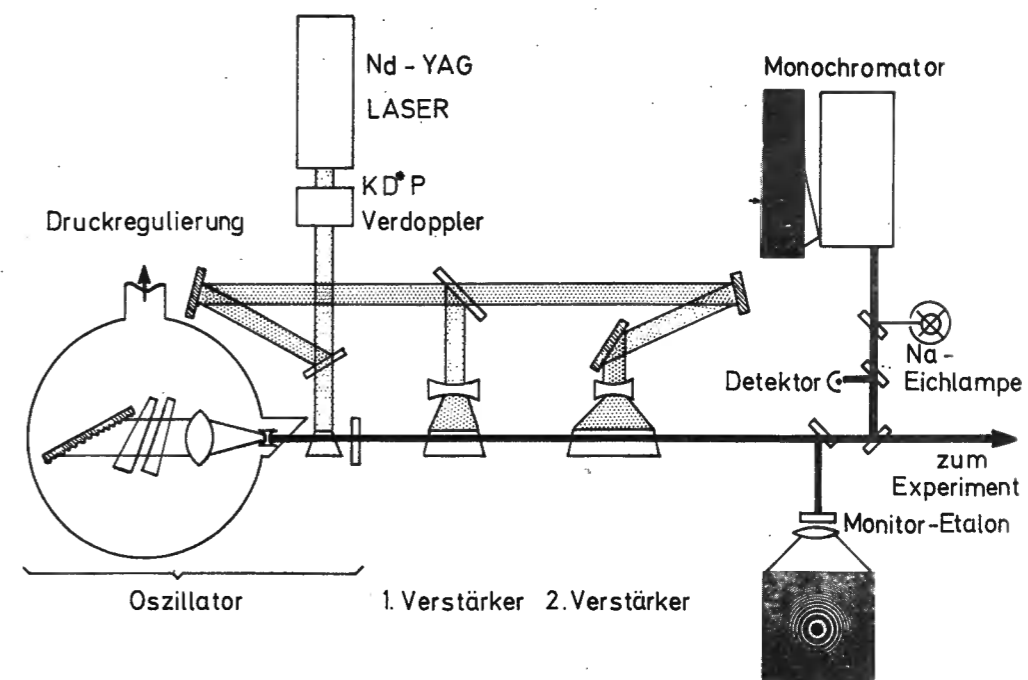


Abbildung 15: Aufbau des Eigenbau-Farbstoff-Lasers

Wird der Strahl zwischen Farbstoffzelle und Gitter mit einem Teleskop (Vergrößerung 25-fach) aufgeweitet, so wird die Auflösung des Gitters durch die bessere Ausleuchtung verbessert und die spektrale Verteilung des emittierten Laser-Lichts eingeengt. Eine noch stärkere Reduzierung der Bandbreite erreicht man durch ein FABRY-PEROT-Etalon /28/, das zwischen Teleskop und Gitter eingebaut wird. Um den Laser auch dann noch ohne großen mechanischen oder elektronischen Aufwand durchstimmen zu können, befinden sich Gitter und Etalon in einer Druckkammer. Durch Verändern des Drucks in dieser Kammer ändert sich der Brechungsindex am Gitter und im Luftspalt-Etalon. Dadurch wird die Eigenfrequenz beider Resonatoren in gleicher Weise verschoben und der Laser durchgestimmt /29/. Durch die Verwendung eines Gases mit großem Brechungsindex (z.B. SF_6) läßt sich der Laser in seiner Frequenz kontinuierlich über etwa zehn Wellenzahlen variieren. Mit dem Etalon wird die Bandbreite des Laser-Lichts auf $0,03 \text{ cm}^{-1}$ ($\hat{=} 1 \text{ GHz}$) reduziert. Damit werden Messungen bei Linienbreiten zwischen $0,03 \text{ cm}^{-1}$ und 3 cm^{-1} ($\hat{=} 100 \text{ GHz}$) möglich (s. Abbildung 16).

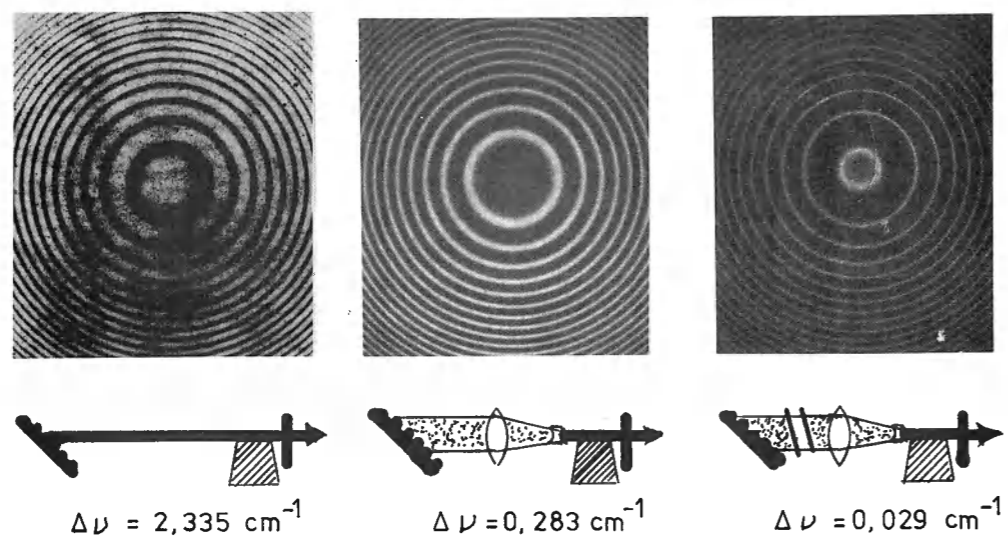


Abbildung 16: Ringsystem bei der Analyse der Laserbandbreite verschiedener Resonatorkonfigurationen durch ein FABRY-PEROT-Etalon

Eine genauere Analyse des abgestrahlten Lichts mit einem durchstimmbaren FABRY-PEROT-Interferometer /30/ ergibt, daß die Form des Laser-Spektrums (über die Pulsdauer und einige Pulse integriert) einigermaßen genau durch eine LORENTZ-Verteilung beschrieben werden kann. Das zeigt Abbildung 17.

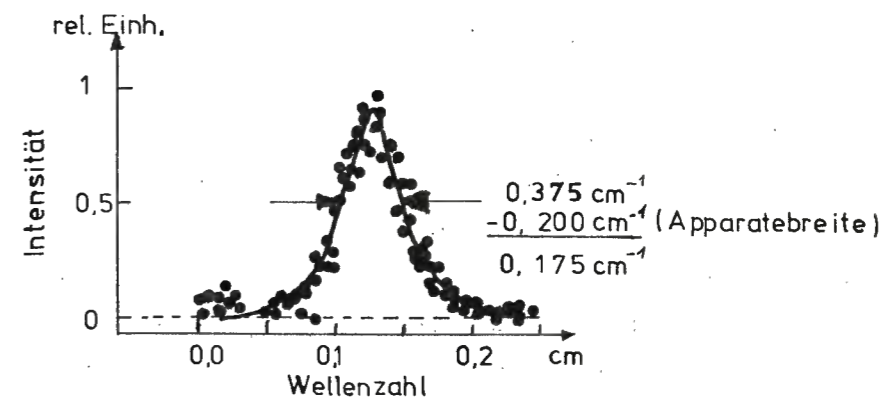


Abbildung 17: Vergleich der spektralen Verteilung der Laserstrahlung (über viele Pulse gemittelt) mit einer LORENTZ-Kurve (durchgezogene Linie), die an Höhe und Halbwertsbreite der gemessenen Kurve (Punkte) angepasst wurde.

Das Licht aus dem Oszillator wird in zwei ebenfalls transversal gepumpten Farbstoffzellen verstärkt (vgl. Abbildung 15). Dabei dient die erste Zelle von 10 mm Länge, die von derselben Farbstofflösung durchflossen wird wie die Oszillator-Zelle*, als Vorverstärker. Somit ist es möglich, den 50 mm langen Hauptverstärker

* Beim Pumpen des Farbstoff-Lasers mit dem Licht des frequenzverdoppelten Nd-YAG-Lasers wird die Emission der rot-orangen Farbstoffe so weit grün-verschoben (gegenüber Pumpen mit anderen Quellen), daß anstelle von Rhodamin 6G eine 10^{-4} -molare Lösung von Rhodamin B in Äthanol benutzt werden muß, um 576 nm zu erreichen.

(mit einer fünf- bis zehnmals dünneren Farbstofflösung) in Sättigung arbeiten zu lassen. Dadurch wird erreicht, daß die Ausgangsleistung des Farbstoff-Laser-Systems unabhängig wird von den Schwankungen der Ausgangsleistung der Oszillator-Stufe.

Mit dieser Anordnung beträgt die Energie des Farbstoff-Lasers (bei 100 mJ Pumpenergie) etwa 10 mJ. Davon wird ein Teil zur spektralen Analyse durch ein Monitor-Etalon ausgekoppelt (vgl. Abbildung 15). Das Ringsystem kann zur Auswertung photographiert werden (s.a. Abbildung 16). Weitere 8 % des Farbstoff-Laser-Lichts werden zusammen mit dem Licht einer Natrium-Spektrallampe in einem 60-cm-Gittermonochromator zur Wellenlängenbestimmung vermessen. Außerdem dient ein Teil dieses ausgekoppelten Lichts dazu, mit Hilfe einer Photodiode die Nachweis-Elektronik zu triggern.

Der Hauptteil des Laser-Lichts wird dann zum eigentlichen Experiment gelenkt. Dort beträgt die Energie aufgrund von Verlusten durch weitere optische Komponenten nur noch maximal 5 mJ, doch genügt das, wie die Messungen (im nächsten Kapitel) zeigen, bereits, um bei der Hyper-RAMAN-Streuung die Sättigung zu erreichen.

IV.2. Heat-Pipe-Ofen

Um eine möglichst lange Dampfzone mit ausreichend hohem Druck und gleichmäßiger Druckverteilung zu erhalten und gleichzeitig ein Beschlagen der Fenster trotz der hohen Dampftemperatur (~ 1300 K) zu verhindern, wurde als Streuzelle ein Heat-Pipe-Ofen /31/ benutzt.

Der Ofen besteht aus einem 120 cm langen und 2,5 cm weiten Rohr aus hitzebeständigem Edelstahl. An der

Eingangsseite ist es mit einem Fenster aus BK-7-Glas und an der Ausgangsseite mit einem Fenster aus Infrarot-durchlässigem NaCl abgeschlossen. Die Heizenergie wird von einem kommerziellen Rohrofen (Heraeus ROK/A 4/30) mit Platin-Heizdrähten geliefert. Zum Betrieb wird der Heat-Pipe-Ofen mit Argon bis zum vorgesehenen Arbeitsdruck gefüllt. Die Enden des Rohres werden mit Wasser gekühlt. An der Innenwand bilden ein feines und ein grobes Drahtnetz (Maschenweite 0,063 mm und 0,71 mm) ein Kapillarsystem, den Docht. Das Metall, das im mittleren Bereich des Rohres verdampft und in den Endzonen durch das kalte Edelgas wieder in die flüssige Phase kondensiert wird, fließt über diesen Docht in den Verdampfungsbereich zurück. Auf diese Weise erhält man einen Kreislauf des Metalls. Im stationären Zustand stellt sich ein Gleichgewicht zwischen Atomdampf und Edelgas ein. Der Atomdampf ist im wesentlichen auf den zentralen Bereich der Heat-Pipe beschränkt, während sich das Edelgas an den Enden befindet. Die Temperatur stellt sich aufgrund des Argondrucks ein (sie folgt aus der Dampfdruckkurve für das Metall). Der Partialdruck des Atomdampfes ist über eine größere Zone konstant (bei 25 mbar und der vorhandenen Heizleistung etwa 30 cm). Durch Verändern der Heizleistung kann die Länge der Dampfzone variiert werden. Wegen des großen Temperaturunterschieds zwischen Dampf und Puffergas ist die Durchmischungszone nur sehr klein. Daher bleiben die Fenster kalt und beschlagen nicht. Abbildung 18 zeigt den Aufbau des Heat-Pipe-Ofens.

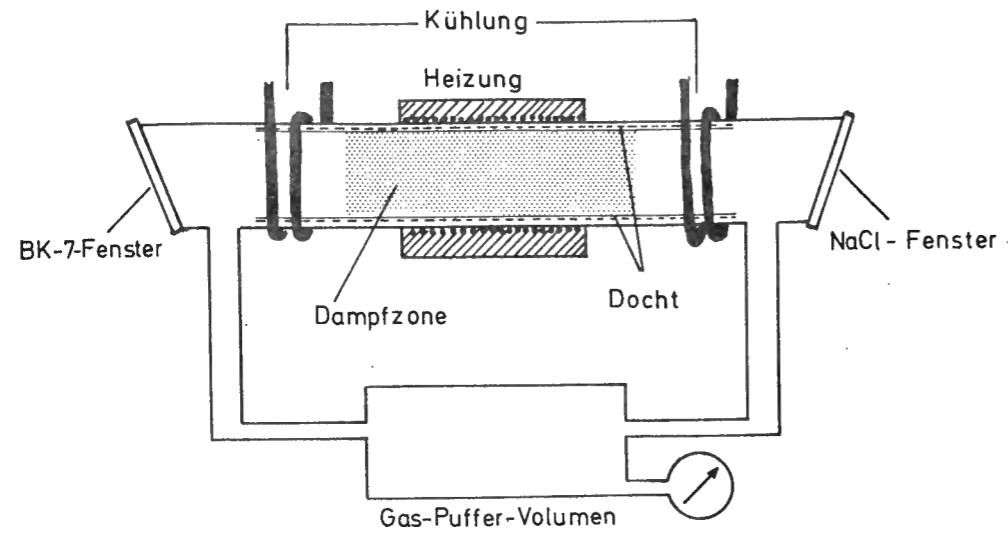


Abbildung 18: Heat-Pipe-Ofen

IV.3. Nachweissystem

Hinter dem Heat-Pipe-Ofen tritt das erzeugte Infrarot-Licht kollinear mit dem restlichen Pumplicht wieder aus und kann weiter untersucht werden. Bei der Vermessung des 16- μm -STOKES-Lichts werden alle anderen auftretenden Wellenlängen und das Pumplicht durch ein Interferenzfilter direkt hinter dem Ofen abgeblockt (Abbildung 19).

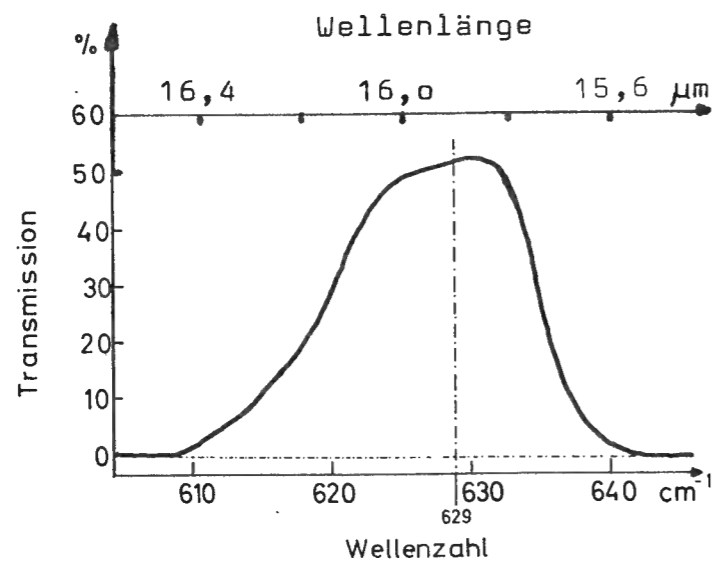


Abbildung 19: Transmission des 16 μm Interferenzfilters

Als Detektor für das Infrarot-Licht dient ein Kupfer-dotierter Germanium-Kristall, der - mit flüssigem Helium gekühlt - als Photowiderstand arbeitet (s. Abbildung 20). Für Messungen des zeitlichen Verhaltens der STOKES-Pulse erweist sich die vom Hersteller empfohlene Schaltung (Abbildung 20b), bei der die Vorspannung über einen Ladewiderstand an den Detektor angelegt wird und die Spannungsänderungen aufgrund der lichtinduzierten Widerstandsänderungen gemessen werden, als ungünstig.

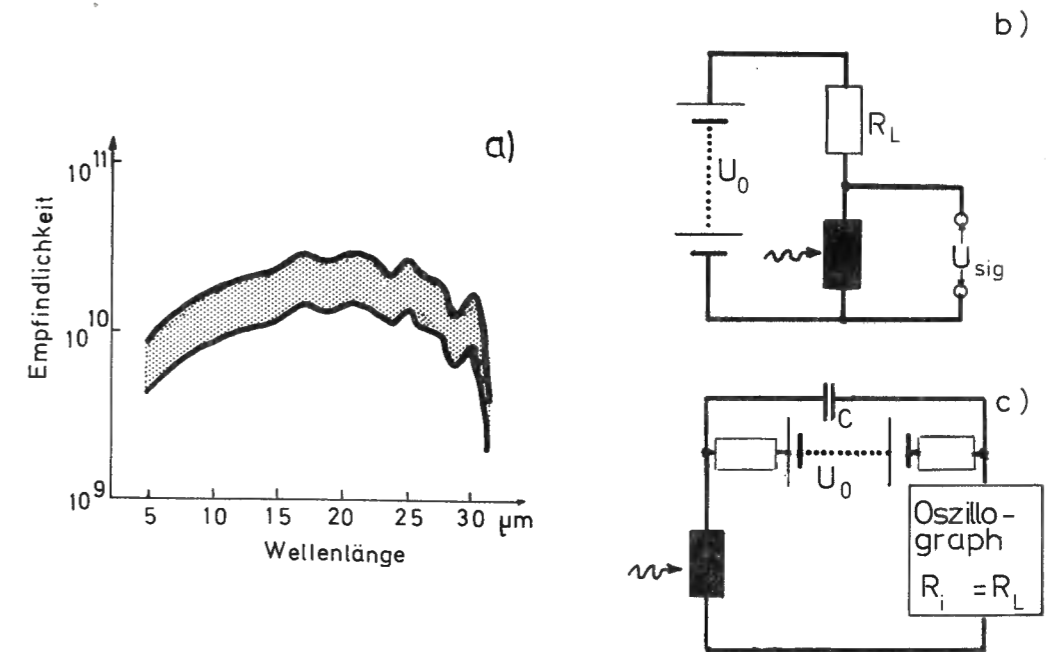


Abbildung 20: Ge:Cu-Detektor
 a) Empfindlichkeit (nach /32/)
 b) Übliche Schaltung (nach /32/)
 c) Schaltung für zeitaufgelöste Messungen (nach /33/)

Im Nanosekundenbereich wird die Pulsform durch Reflexionen der elektrischen Pulse gestört. Deshalb wird für zeitaufgelöste Messungen die Schaltung nach Abbildung 20c benutzt, bei der der Innenwiderstand

des messenden Oszillographen als Ladewiderstand dient. In diesem Fall wird nicht die Spannungsänderung am Detektor gemessen, sondern der von der Widerstandsänderung bewirkte Strom durch den Oszillographen. Auch bei der Schaltung nach Abbildung 20b können die Signale direkt am Oszillographen beobachtet werden. Zur quantitativen Auswertung werden sie jedoch bei dieser Anordnung vorverstärkt und dann in einem Boxcar-Integrator weiterverarbeitet. Das Ausgangssignal wird dann schließlich mit einem Schreiber oder einem (Speicher-)Oszillographen registriert.

IV.4. Aufbau des gesamten Experiments

Abbildung 21 zeigt den gesamten Aufbau für die ersten Experimente, die noch mit dem Stickstoff-Laser-gespumpten Farbstoff-Laser durchgeführt wurden. Bei ei-

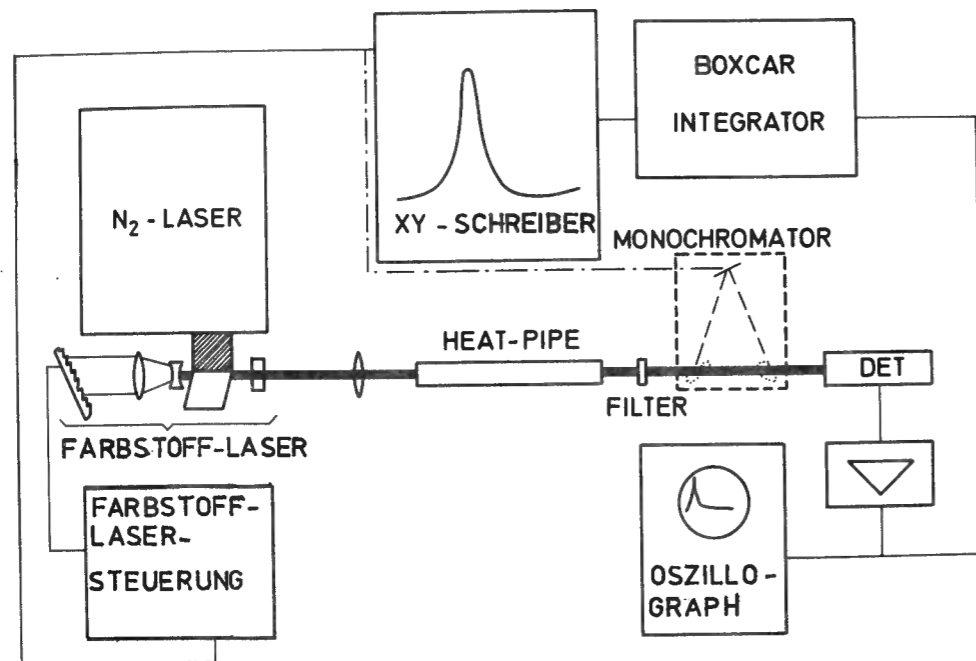


Abbildung 21: Erster Versuchsaufbau

nem Teil der Messungen wird der X-Vortrieb des Schreibers mit dem Wellenlängenantrieb des Farbstoff-Lasers synchronisiert; bei den restlichen Messungen wird das Infrarot-Licht durch einen Gittermonochromator analysiert, der dann den Schreiber steuert. Bei den Messungen mit der neuen Farbstoff-Laser-Anordnung ist der Aufbau des Experiments ähnlich. Auch hier kann der X-Vortrieb des Schreibers mit der Wellenlängenverstellung des Lasers synchronisiert werden. Beim Betrieb ohne Etalon, wo das Durchstimmen durch Drehen des Gitters geschieht, treibt der Motor für die Gitterdrehung gleichzeitig ein Potentiometer an; die Änderung der abgegriffenen Spannung ist der Wellenlängenänderung proportional. Beim Betrieb mit Etalon gibt ein piezoresistiver Druckaufnehmer eine dem Druck proportionale Spannung ab, die den Schreiber steuert.

Abbildung 22 zeigt die Anordnung zur Untersuchung der spektralen Verteilung der Hyper-RAMAN-Strahlung mit Hilfe eines durchstimmbaren FABRY-PEROT-Interferometers. Bei einer Messung, bei der über viele Pulse gemittelt werden soll, wird das Ausgangssignal des Boxcar-Integrators mit einem Speicher-Oszillographen beobachtet, dessen Horizontalablenkung vom Plattenabstand des Interferometers gesteuert wird. Das im Eigenbau erstellte Instrument wird im nächsten Abschnitt noch genauer beschrieben. Zuvor soll jedoch noch auf die Messungen mit zeitlich glatten Pulsen eingegangen werden. Bei der Beschreibung des Nd^{3+} -YAG-Lasers in Abschnitt 1 dieses Kapitels wurde schon darauf hingewiesen, daß auch bei Einsatz der externen Q-switch-Ansteuerung noch nicht alle Pulse glatt sind, sondern immer noch Pul-

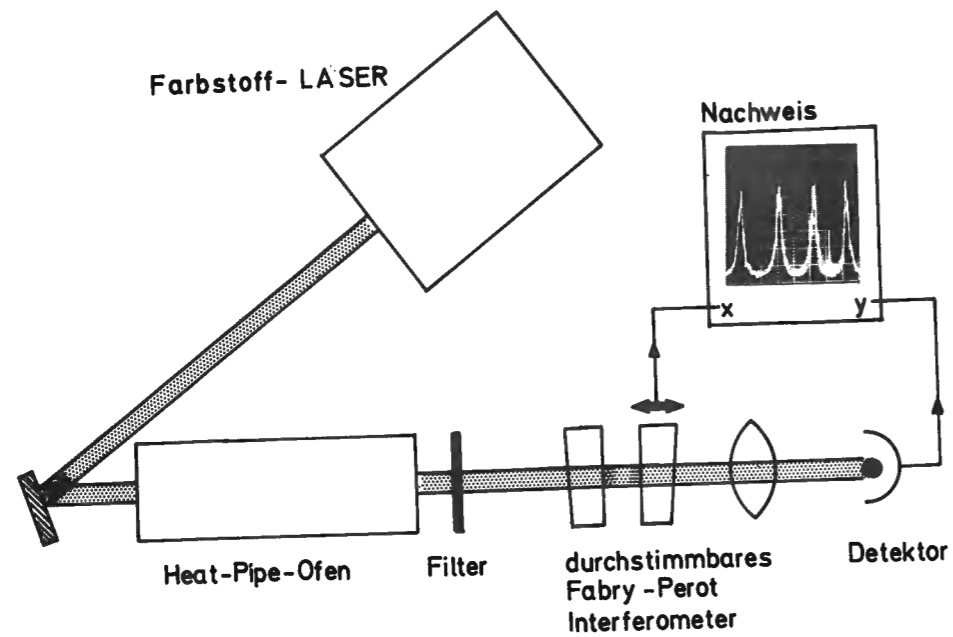


Abbildung 22: Versuchsaufbau zur Messung der Infrarot-Bandbreite

se mit Zeitstruktur auftreten (vgl. Abbildung 13b,c). Daher ist es — zur Erhaltung vollständig definierter Meßbedingungen — nicht möglich, das Signal von vielen aufeinanderfolgenden Pulsen zu mitteln. Der Einsatz eines Boxcar-Integrators ist deshalb nicht gestattet. Es ist vielmehr notwendig, Einzelpulse zu untersuchen. Da außerdem die Zeitstruktur der Farbstoff-Laser-Pulse ständig kontrolliert werden muß, liegt es nahe, auch die Infrarot-Pulse zeit aufgelöst zu beobachten. Deshalb wird für Messungen mit glatten Pulsen eine Anordnung nach Abbildung 23 eingesetzt.

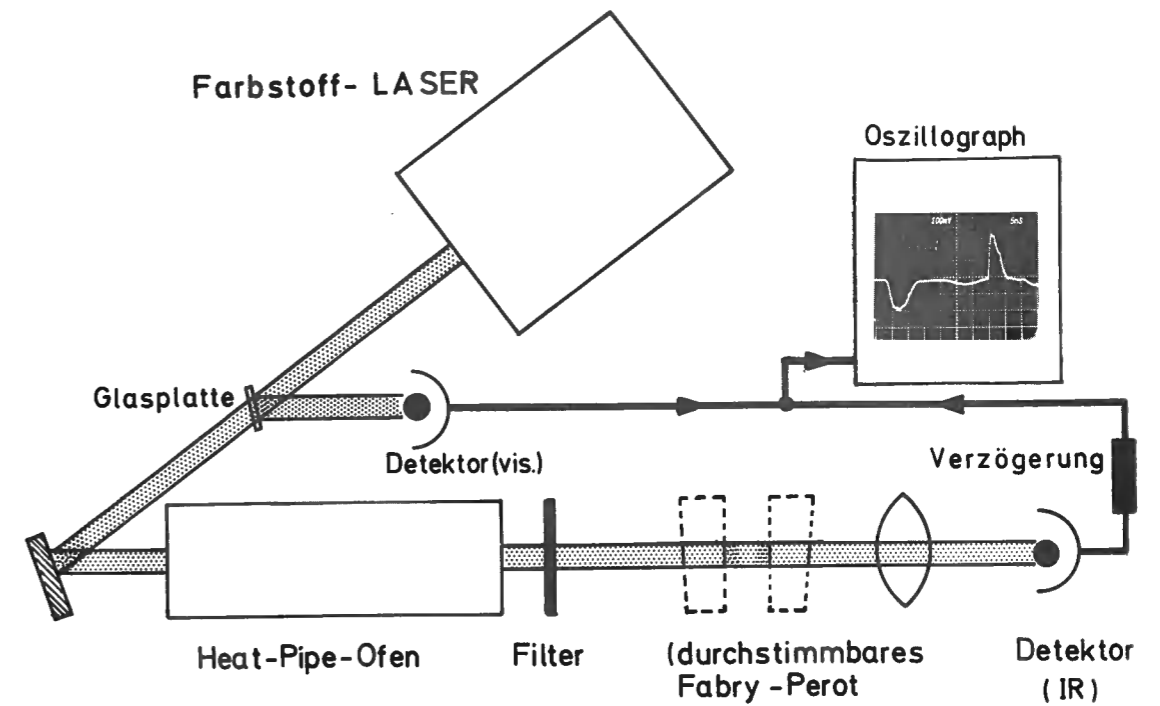


Abbildung 23: Versuchsaufbau

Dabei wird das Infrarot-Signal verzögert auf denselben Eingang des Oszillographen gegeben wie der Ausgang des Detektors für das Laser-Licht. Auf diese Weise erhält man in einer einzigen Oszillographenspur hintereinander die Form des Laser-Pulses und des STOKES-Pulses (der Infrarot-Detektor ist nach Abbildung 20c geschaltet). Diese Spur wird dann photographisch registriert. Zur weiteren Auswertung werden nur die Photos herangezogen, auf denen der Pumpuls den gewünschten zeitlichen Verlauf hat. Die Durchstimmkurve wird dann punktweise aufgenommen, ebenso das STOKES-Spektrum bei fester Laser-Wellenlänge, wo die einzelnen Meßpunkte verschiedene Plattenabstände des FABRY-PEROT-Interferometers repräsentieren.

IV.5. Durchstimmbares FABRY-PEROT-Interferometer

Die Basis für das Interferometer bildet ein Gestell aus zwei Trägern, die durch drei Stäbe aus Vacodil (einer Legierung mit extrem geringer Wärmeausdehnung) verbunden sind. Auf diesen Stäben sitzen die Halterungen für die beiden Interferometer-Platten. Die eine Platte ist auf einem piezoelektrischen Träger befestigt, der starr mit den Vacodilstäben verbunden ist. Die zweite Platte kann auf einem beweglichen Träger so justiert werden, daß man sowohl den Abstand als auch die bestmögliche Parallelität der beiden Platten einstellen kann. Die gesamte Basis kann dann optimal auf den zu untersuchenden Strahl ausgerichtet werden. Das Instrument wird durchgestimmt, indem der piezoelektrische Träger durch Anlegen einer Hochspannung seine Länge und damit den Plattenabstand ändert. Abbildung 24 zeigt den Aufbau des Instruments.

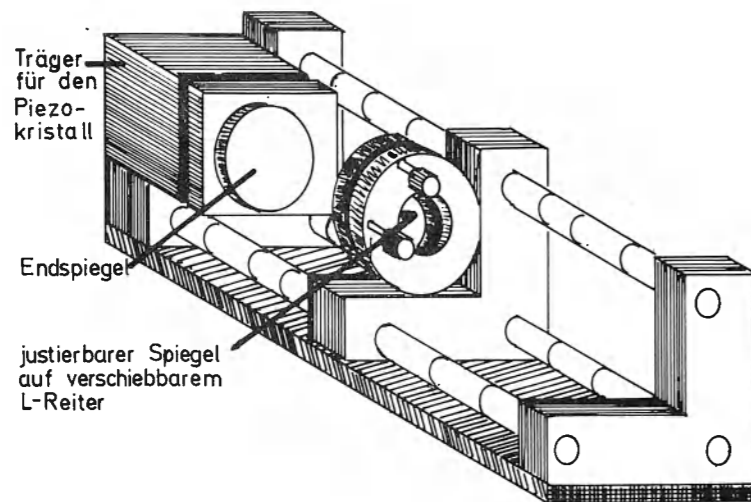


Abbildung 24: Aufbau des durchstimmbaren FABRY-PEROT-Interferometers

Die beiden Spiegel sind plane Germanium-Platten mit einem leichten Keilwinkel zwischen Vorder- und Rückseite, um Etalon-Effekte innerhalb der Platten auszuschließen. Die Platten sind dielektrisch so beschichtet, daß sie auf den einander zugewandten Seiten eine Reflexion von je 91 % aufweisen, auf den einander abgewandten Seiten aber möglichst wenig reflektieren.

Bei guter Justierung läßt sich so eine Finesse von 20 für das plan-parallele FABRY-PEROT-Interferometer erreichen.

IV.6. Messung der Pumplicht-Abschwächung

Um messen zu können, ob und wie sich der Pumpuls beim Durchgang durch das Streumedium verändert, wird die Anordnung in Abbildung 25 benutzt. Dabei wird

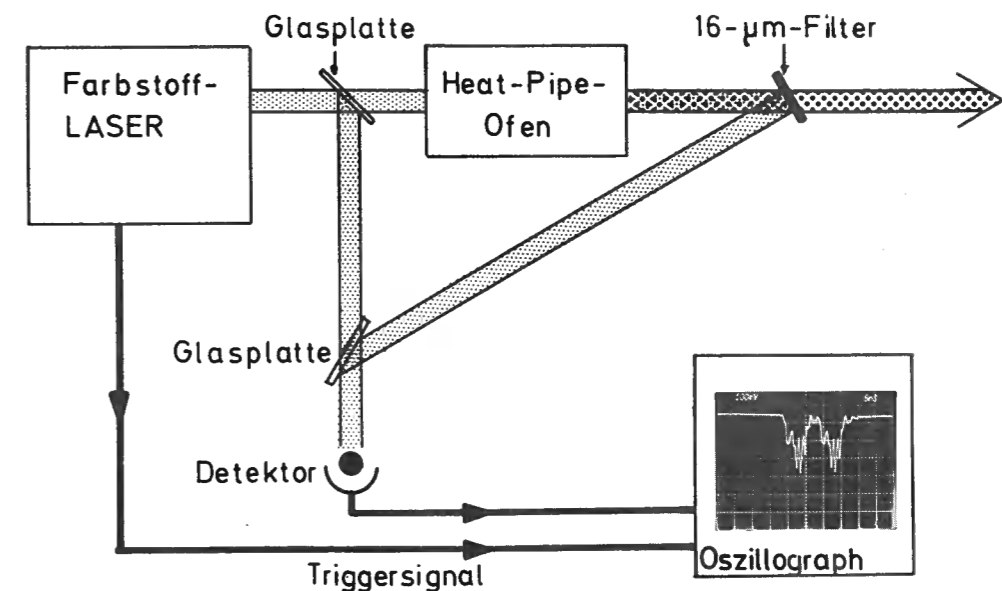


Abbildung 25: Anordnung zum Messen der Pumplicht-Pulsform vor und nach der Streuzelle

die Form der Farbstoff-Laser-Pulse vor und nach dem Heat-Pipe-Ofen verglichen. Der transmittierte Pump-puls gelangt dabei wegen des längeren optischen We-ges später auf den Detektor als der Teil des Pulses, der vor dem Heat-Pipe-Ofen ausgekoppelt wird. Da-durch werden beide Pulse hintereinander auf dem Schirm dargestellt. Der Oszillograph wird dabei ex-tern getriggert. Durch geeignete Graufilter lassen sich beide Pulse bei kaltem Ofen auf gleiche Ampli-tude einstellen. So läßt sich sofort feststellen, ob im Fall der stimulierten Hyper-RAMAN-Streuung das Pumplicht merklich abgeschwächt wird oder sei-ne Pulsform ändert.

V. Experimentelle Ergebnisse

V.1. Durchstimmkurve

Die kohärente Infrarotstrahlung im Wellenlängenbereich von $16 \mu\text{m}$, die mit dem beschriebenen Aufbau erzeugt wird, läßt sich bei geringer Leistung des Farbstoff-Lasers nur über einen kleinen Bereich um die Zwei-Pho-tonen-Resonanz durchstimmen. Das zeigt die Durchstimm-kurve, die mit dem Stickstoff-Laser-gepumpten Farbstoff-Laser aufgenommen wurde (Pulsenergie $0,2 \text{ mJ}$) und in Abbildung 26 dargestellt ist.

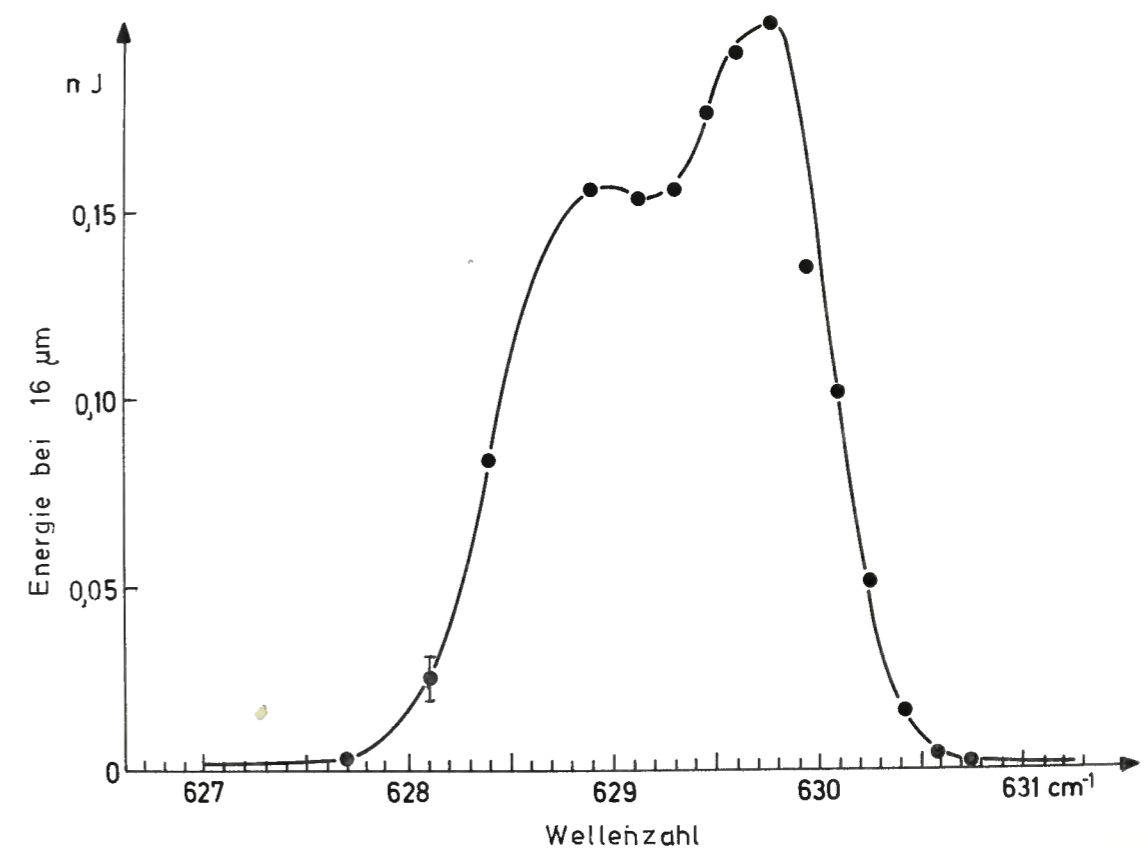


Abbildung 26: Durchstimmkurve der stimulierten Hyper-RAMAN-Strahlung bei einer Pumpenergie von $0,2 \text{ mJ}$

In dieser Abbildung stellt die Abszisse bereits die Infrarotfrequenz (in Wellenzahlen) dar, die sich jedoch sehr einfach aus der Frequenz des eingestrahlt Lichts ergibt. Es gilt

$$\omega_s = 2\omega_p - \Omega_{5s^2+5s6p}, \quad (12)$$

wie sich auch an der Messung in Abbildung 27 zeigt.

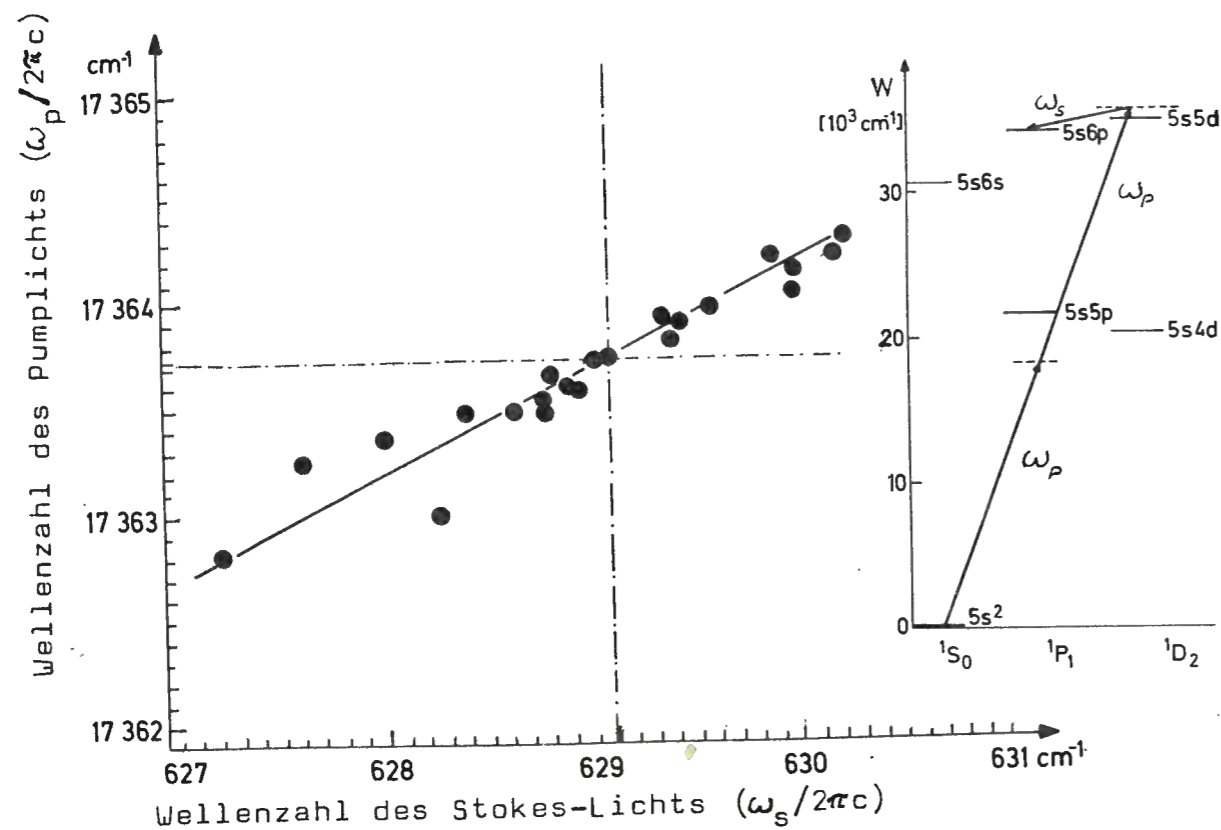


Abbildung 27: Linearität des Durchstimmverhaltens. Die strichpunktierten Linien bezeichnen die Resonanz mit dem Zwischenzustand $5s5d-^1D_2$.

Die Durchstimmkurve in Abbildung 26 ist asymmetrisch bezüglich der Resonanz mit dem $5s5d-^1D_2$ -Zustand. Da diese Kurve hinter dem Interferenzfilter (s. Abbildung 19) gemessen wurde, dessen Transmission auf der niederfrequenten Seite der Resonanz geringer ist als auf der hochfrequenten Seite, ist ein Teil dieser gemessenen Asymmetrie auf die des $16\text{-}\mu\text{m}$ -Interferenzfilters zurückzuführen. Ein weiterer Grund liegt darin, daß die Energie des $5s5p$ -Zwischenzustands immer größer ist als die des einzelnen Pumpphotons. Bei Variation der Pumpfrequenz zu höheren Werten findet daher stets eine Annäherung an diesen Zwischenzustand statt. Dagegen wird das zweite virtuelle Niveau über den $5s5d$ -Zustand hinweggeschoben. Die Verstimmung zum ersten Zwischenzustand (1P_1) wird also immer kleiner, während die Verstimmung zum zweiten Zwischenzustand (1D_2) zunächst ab- und dann wieder zunimmt. Oberhalb der Zwei-Photonen-Resonanz mit dem D -Zustand ist also das Produkt der Verstimmungen kleiner als unterhalb. Entsprechend ist dort der Umwandlungsgrad (vgl. Gleichung 3) größer. Beim Einsatz des stärkeren Farbstoff-Lasers wird die Messung des Durchstimmbereichs durch den Transmissionsbereich des Interferenzfilters etwas begrenzt*. Das ist in Abbildung 28a deutlich zu erkennen (Pumpenergie 2 mJ).

*Eine Messung ohne Filter – z.B. mit einem Monochromator – ist nicht möglich, da immer sehr viel intensivere kurzwellige Strahlung (Pumplicht, Strahlung bei 767 nm nach Abbildung 7b, Abbau der Besetzung in den höheren Zuständen [$1,3\ \mu\text{m}$, $6,5\ \mu\text{m}$]) gleichzeitig aus dem Heat-Pipe-Ofen austritt und die Messung stören würde.

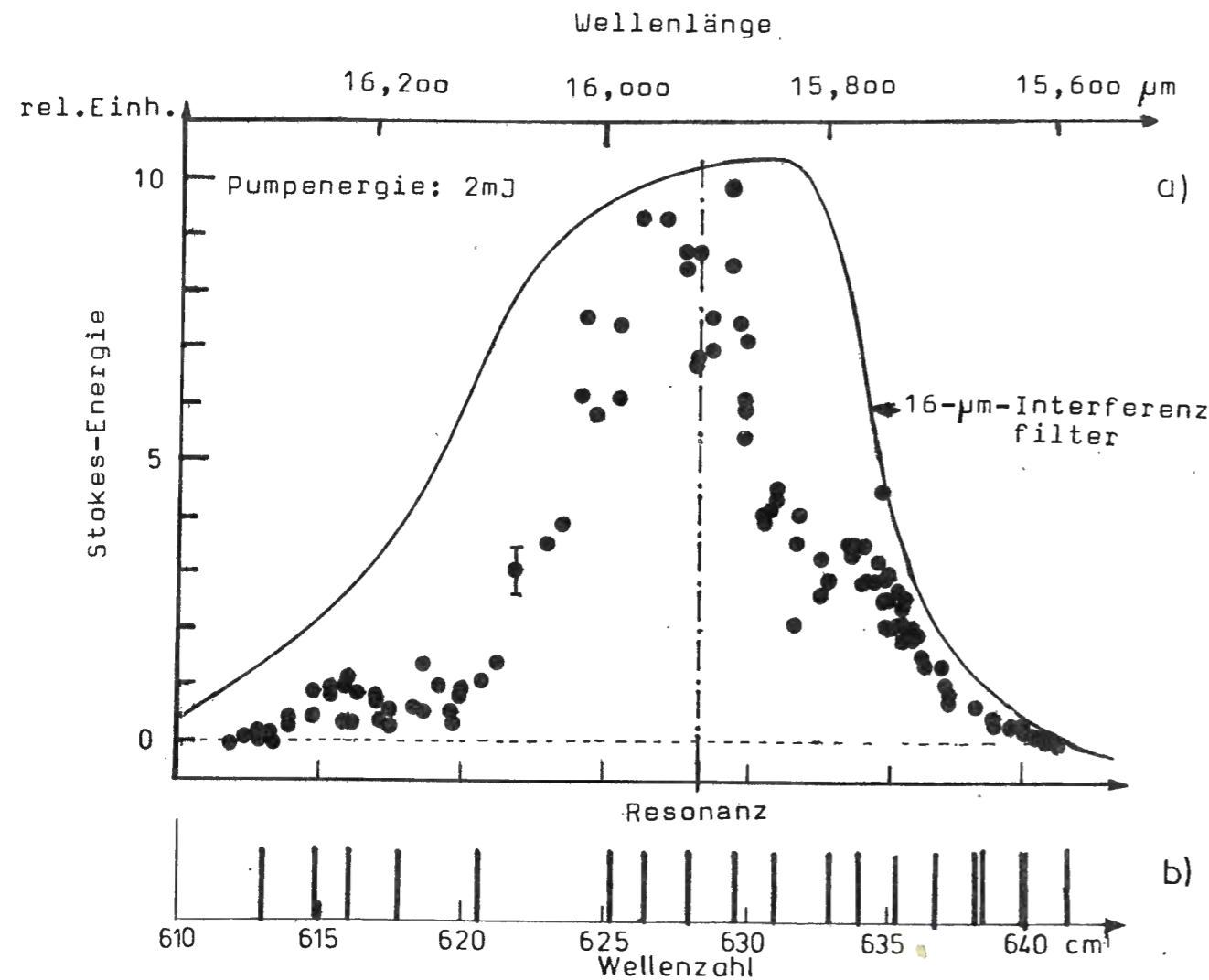


Abbildung 28: a) Durchstimmkurve der stimulierten Hyper-RAMAN-Strahlung bei hoher Pumpenergie (2 mJ). Die Kurve ist beeinflusst durch das Interferenzfilter
 b) Lage von Absorptionslinien von Luft

Beide Durchstimmkurven zeigen offensichtlich ein Minimum, wenn die Frequenz des Pumplichts exakt auf die Zwei-Photonen-Resonanz mit dem 5s5d-Zustand abgestimmt ist. Das bedeutet, daß in diesem Fall andere Prozesse im Strontium-Dampf ablaufen (vgl. Abbildung 7), die auf Kosten der stimulierten Hyper-RAMAN-Streuung gehen. Abbildung 28a zeigt auch abseits der Resonanz eine starke Struktur in der Durchstimmkurve. Eine mögliche Ursache dafür liegt in der Absorption der RAMAN-Strahlung durch Gase in der Luft. In Abbildung 28 b sind die Absorptionslinien von Luft aufgetragen, wie sie aus den theoretischen Daten von McCLATCHEY et. al. /34/ ermittelt wurden. Diese Absorption kommt im wesentlichen von Wasser und Kohlendioxid und kann teilweise erheblich werden (Abbildung 29). Da es im Rahmen dieser Arbeit vor allem auf die Untersuchung der Frequenzumwandlung ankam, wurde darauf verzichtet, einen evakuierten Strahlengang aufzubauen, um diese Absorptionen auszuschließen. Aufgrund der ungünstigen Detektorgeometrie, aber auch aus anderen technischen Gründen (u.a. wegen des Meß-Interferometers (IV.5.)), wäre dies im Vergleich zum Nutzen zu aufwendig geworden. Bei einem Einsatz der erzeugten Infrarot-Strahlung zur Spektroskopie wäre ein solcher evakuierter Lichtweg jedoch unerlässlich.

Die bisher beschriebenen Messungen wurden – bei konstanter Pumpenergie – auch noch für andere Bandbreiten des Farbstoff-Lasers durchgeführt. Dabei zeigt sich, daß Intensität und Durchstimmverhalten des STOKES-Lichts unabhängig von der Linienbreite des Pumplichts sind. Außerdem wurden Messungen bei verschiedenen Pumpenergien durchgeführt. Dabei verändert sich neben der Infrarot-Energie vor allem der Durchstimmbereich der STOKES-Strahlung. Das zeigen schon die ersten Messungen mit dem Stickstoff-Laser-gepumpten Farbstoff-

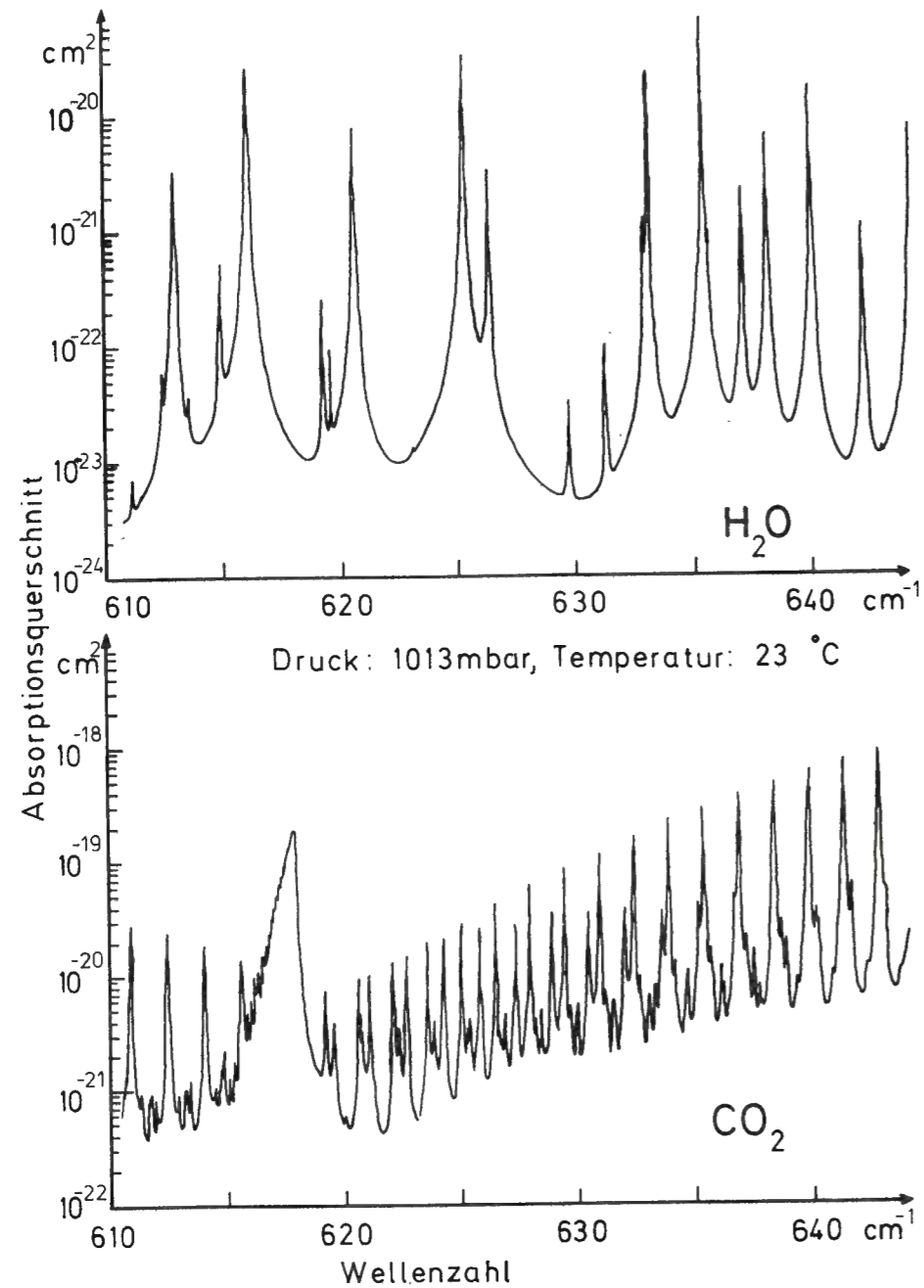


Abbildung 29: Absorptionsquerschnitte von Wasser und Kohlendioxid im Bereich des 16- μm -Interferenzfilters (nach /34/)

Laser (Abbildung 30). Bei höheren Pumpenergien (ab etwa 0,5 mJ) beschränkt dann – wie erwähnt – das benutzte 16- μm -Interferenzfilter die Messung des Durchstimmbereichs.

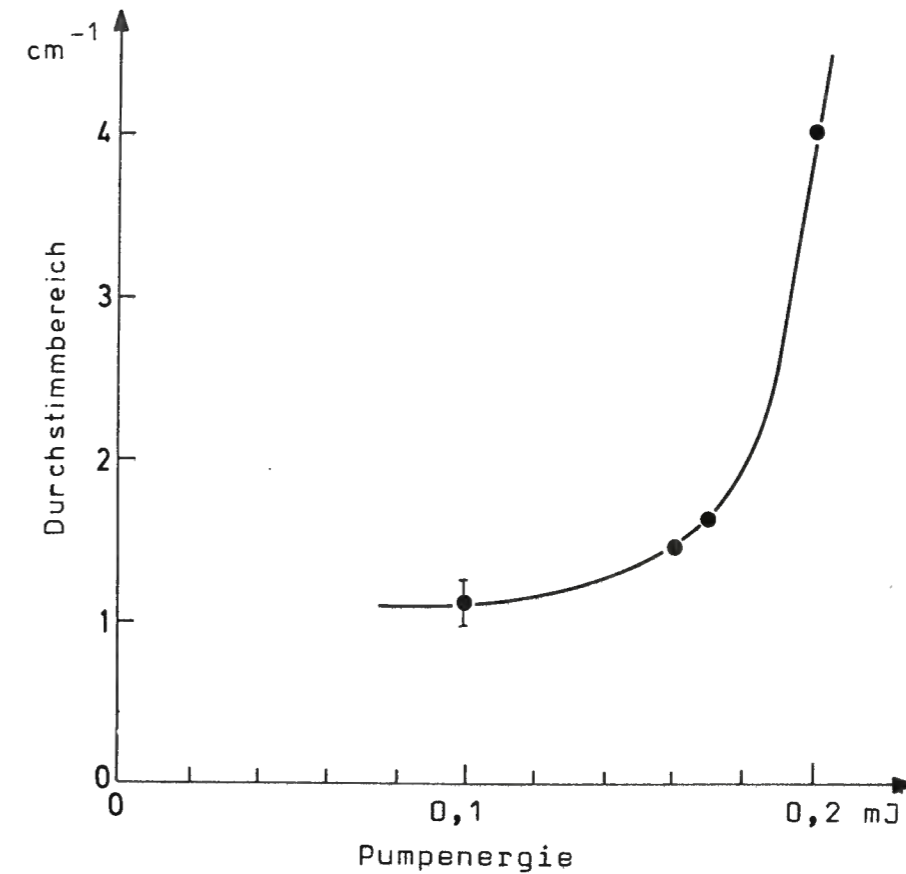


Abbildung 30: Abhängigkeit des Durchstimmbereichs von der Pumpenergie

V.2. Abhängigkeit der Infrarot-Energie von der Pumpenergie

Als nächstes soll die Abhängigkeit der Energie der erzeugten Infrarot-Strahlung von der des Pumplichts untersucht werden. Abbildung 31 zeigt das Ergebnis der Messung mit dem schwachen Farbstoff-Laser.

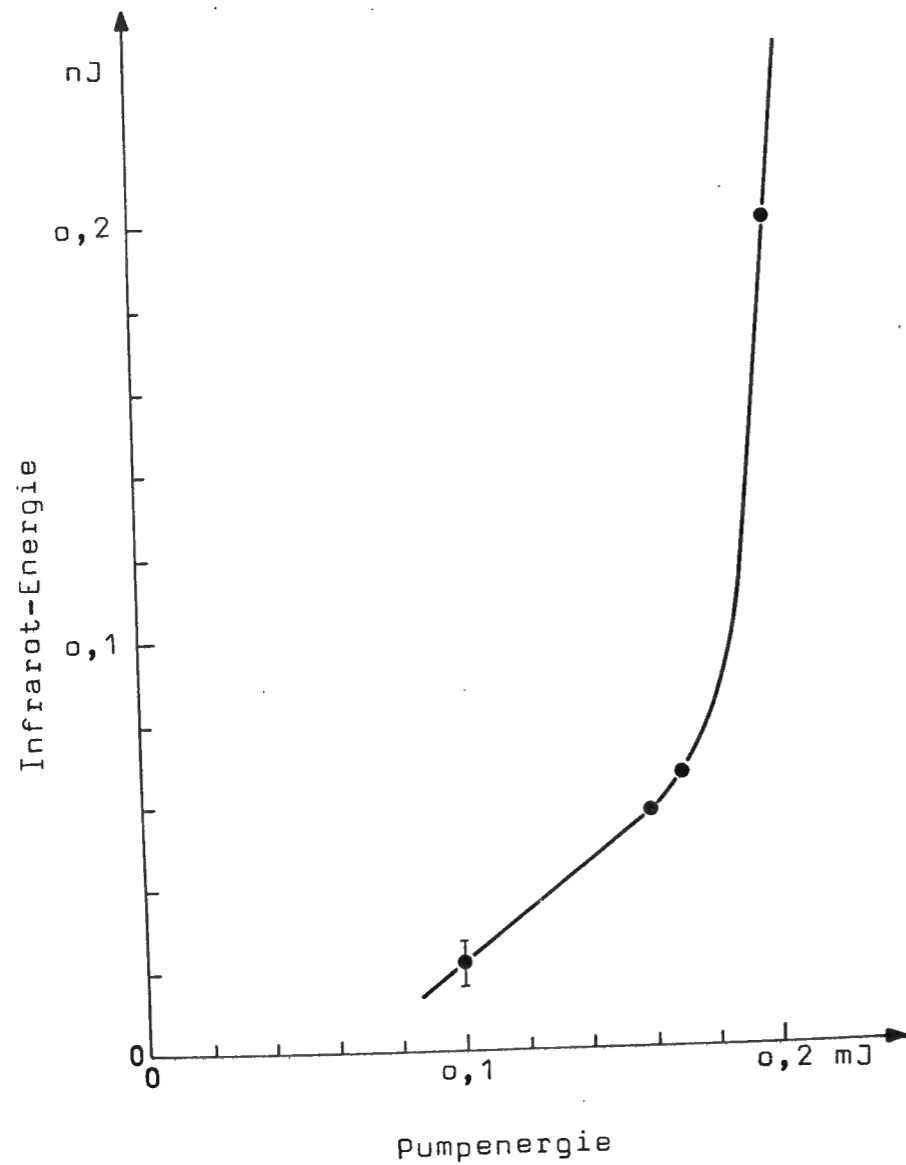


Abbildung 31: Abhängigkeit der Infrarot-Energie von der Pumpenergie

Aus Gleichung 5 folgt, daß bei Gültigkeit der störungstheoretischen Beschreibung der Polarisation der folgende Zusammenhang zwischen Pump- und STOKES-Intensität (und damit entsprechend auch zwischen den beiden Energien) gelten muß:

$$\ln I_s \propto (\zeta I_p^2 + \xi I_p) z. \quad (13)$$

Dabei beschreibt gerade der quadratische Anteil die Hyper-RAMAN-Streuung. Die Messung bestätigt den erwarteten Verlauf nicht. Auch bei höheren Energien kann keine Bestätigung gefunden werden. Abbildung 32 zeigt vielmehr ein deutliches Sättigungsverhalten. Dabei wird das Pumlicht nicht merklich abgeschwächt, es stehen also genügend Photonen für die stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung zur Verfügung. Auch aufgrund der Teilchenzahl im Wechselwirkungsvolumen ($\sim 10^{17}$ Atome) wäre nach der Störungsrechnung noch keine Sättigung zu erwarten.

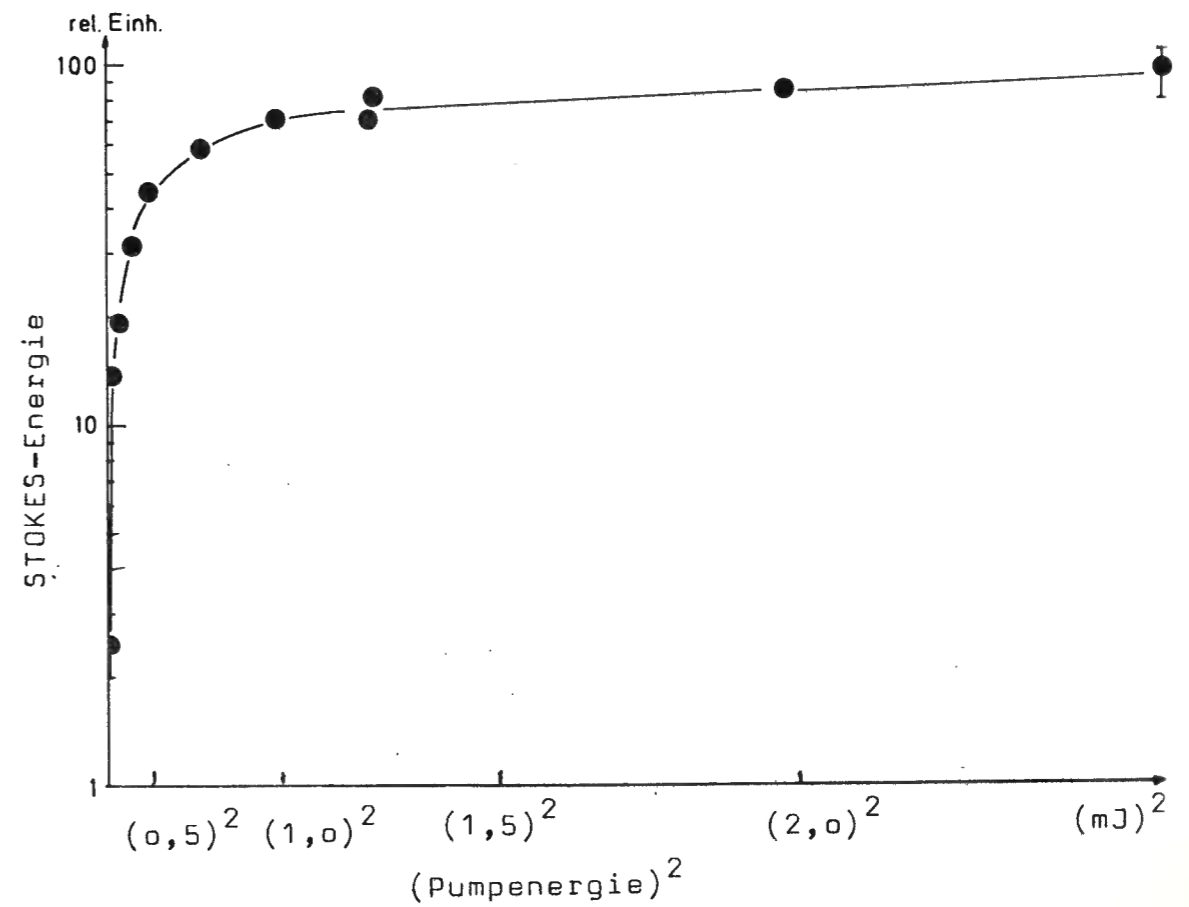


Abbildung 32: Abhängigkeit der STOKES- von der Pumpenergie zur Überprüfung von Gleichung 13 (Druck: 20 mbar, Länge der Dampfzone: 30 cm)

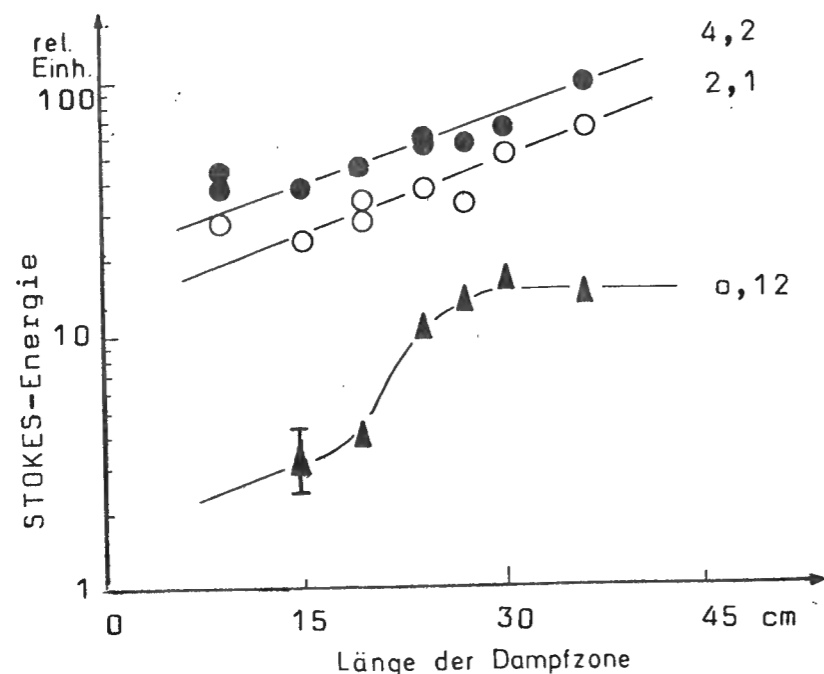


Abbildung 33: Abhängigkeit der STOKES-Energie von der Länge der Streuzone bei konstantem Druck (26 mbar). Der Parameter bei den drei Kurven ist die Pumpenergie, angegeben mJ.

Auch die Abhängigkeit der STOKES-Energie von der Länge der Dampfzone in Abbildung 33 entspricht nicht dem — in Analogie zu Gleichung 13 — erwarteten $\exp(\gamma I^2 z)$ -Verlauf. Der Anstieg der Kurven ist im Gegenteil unabhängig von der Pumpintensität* (bei schwachem Pump-Laser — untere Kurve — gilt das allerdings nur für kurze Dampfzonen). Das bedeutet, daß die Verstärkung nicht mehr von der Pumpintensität abhängt. Damit wird die beobachtete Sättigung bei fester Dampfzonenlänge (Abbildung 32) bestätigt. Die Ursache kann nur darin liegen, daß im Streuvolumen nicht genügend Grundzustandsatome für die Frequenzumwandlung zur Verfügung stehen, sondern durch andere Effekte (Umbesetzung) verloren gehen. Erst bei höheren Teilchenzahlen im

*Diese Messung wurde mit glatten Pulsen durchgeführt, so daß in sehr guter Näherung die Pumpintensität zur Pumpenergie proportional ist.

Streuvolumen (bei 0,12 mJ etwa $0,5 \times 10^{17}$ Atome) wird das Pumplicht völlig aufgebraucht, so daß dadurch keine weitere Verstärkung des STOKES-Lichts mehr möglich ist. Das ist in Abbildung 33 an der unteren Kurve zu erkennen (bei den höheren Pumpenergien wurde die notwendige Dampfzonenlänge nicht erreicht). Nur im Zwischenbereich, wo keine Sättigung die stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung stört (bei 0,12 mJ Pumpenergie etwa 25 cm Dampfzone $\hat{=} 0,3 \times 10^{17}$ Atome) könnte die störungstheoretische Beschreibung gültig sein. Sonst lassen sich die Messungen damit nicht interpretieren. Im folgenden sollen daher die Experimente mit der semiklassischen Theorie von LOUISELL und MEYSTRE verglichen werden, die in Kapitel III bereits diskutiert wurde.

V.3. Vergleich der experimentellen Energieabhängigkeit mit der semiklassischen Rechnung

Bei der Vorstellung der semiklassischen Rechnungen von LOUISELL und MEYSTRE wurde schon darauf hingewiesen, daß nur eine numerische Lösung des entwickelten Gleichungssystems möglich ist. Die Ergebnisse dieser Rechnungen lassen sich mit den Experimenten nur qualitativ vergleichen, da eine genaue Anpassung der Parameter an die experimentellen Werte — z.B. bei der Verstimmung Δ_1 (zum 5s5p-Zustand, vgl. Abbildung 6) — zu lange Rechenzeiten erfordern würde, ohne physikalisch neue Erkenntnisse zu liefern.

Ein wichtiges Resultat der Rechnungen ist die beträchtliche Besetzung höherer Zustände ($|2\rangle \hat{=} 5s5d$ und $|4\rangle \hat{=} 5s5p$, s. Abbildungen 6, 8) bereits bei niedriger STOKES-Energie und die damit verbundene Sättigung. In Abbildung 34a ist die Abhängigkeit der Infrarot-Energie von der Länge der Dampfzone (=: "z"-Abhängigkeit, vgl. Gleichung 12) aufgetragen, wie sie aus der Theorie folgt. Dabei charakterisiert der Parameter an den Kurven die Stärke des Pumpfeldes; der Zahlenwert ist jeweils die entsprechende RABI-Frequenz ($\Omega_p = \mu_{14} E_p / 2\hbar$; vgl. Abbildung 8 und Gleichung 11) multipliziert mit der Phasenrelaxationszeit T_2 (das System wird als druckverbreitert angenommen). Die Sättigung aufgrund der Entvölkerung des Grundzustandes äußert sich darin, daß die STOKES-Energie für weite Bereiche unabhängig von der Pumpfeldstärke ist. Die Sättigung aufgrund von Pumplichtabschwächung wird in der Kurve bei schwachem Laser-Licht (Parameter: 10) deutlich. Es verblüfft zunächst, daß das Verhältnis von STOKES-Ausgangs- zu -Eingangsenergie (W/W_0) für geringe Pumpfeldstärken größer ist als für hohe. Hier muß jedoch berücksichtigt werden, daß das Verhältnis W/W_0 im Bereich der Teilchensättigung nur von der Zahl der Atome im Grundzustand abhängt. Da die Besetzung der höheren Zustände - und damit die Entvölkerung des Grundzustandes - nur von der Pumpintensität bestimmt ist, gibt es bei schwachem Laser-Licht mehr Atome im Grundzustand als bei intensiverem. Entsprechend höher ist der Zuwachs an STOKES-Licht.

Auf den ersten Blick stimmt diese theoretisch ermittelte Kurvenschar nicht mit dem Ergebnis der Messungen (Abbildung 33) überein. Das liegt jedoch daran, daß LOUISELL und MEYSTRE in ihren Rechnungen nur einen reinen Verstärker* für das Infrarot-Licht untersucht haben, während im Experiment das STOKES-

*Eine von außen eingestrahlte Welle mit der STOKES-Frequenz wird durch die stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung im Medium verstärkt.

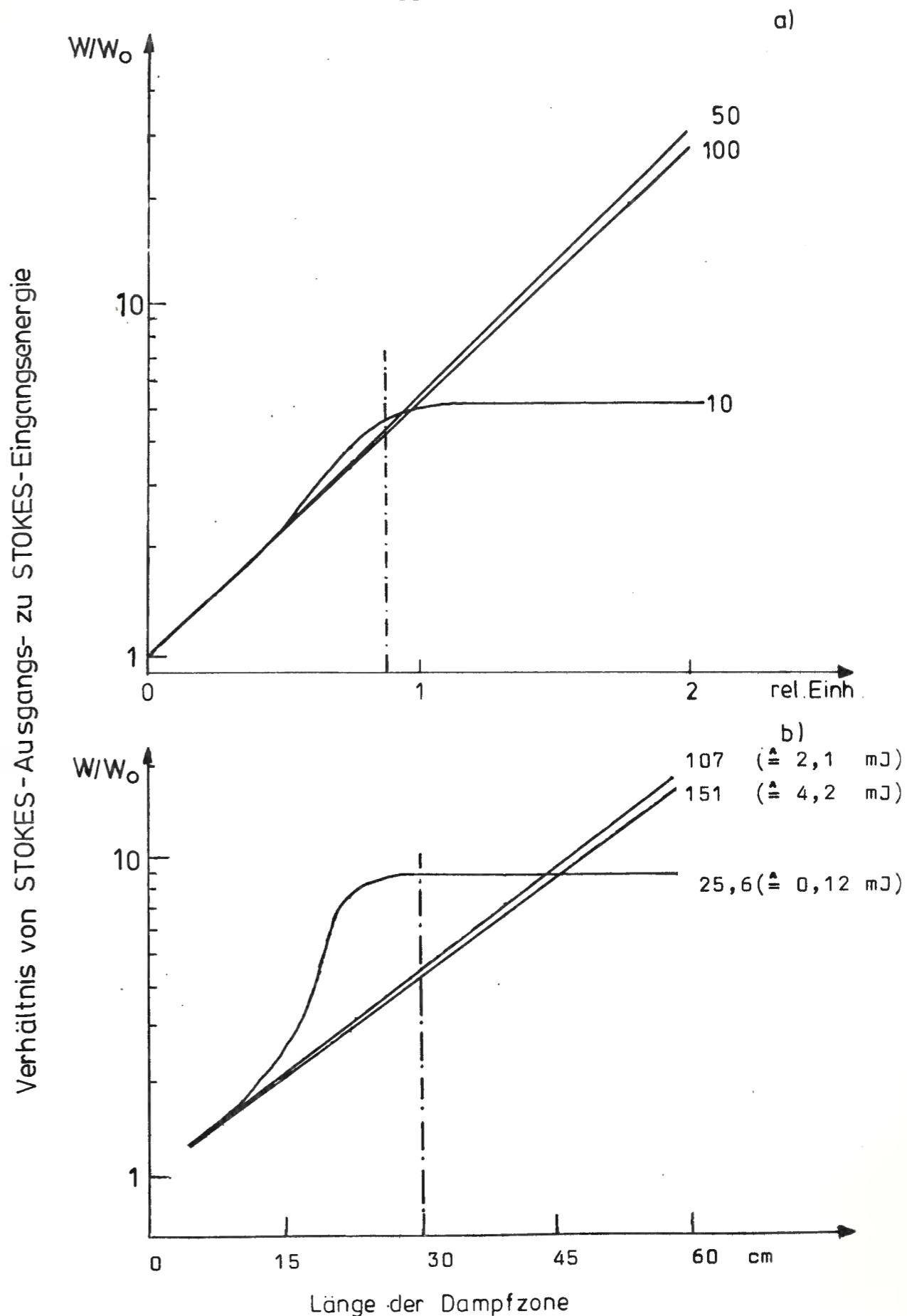


Abbildung 34: Abhängigkeit des Verhältnisses von Infrarot-Ausgangs- zu Infrarot-Eingangs-Energie von der Länge der Dampfzone (bei konstantem Druck (26 mbar))
 a) berechnet von LOUISELL und MEYSTRE
 b) gemessen

Signal erst durch spontane Hyper-RAMAN-Streuung aus dem Rauschen aufgebaut wird und daher schon das Eingangssignal des Verstärkers von der Pumpintensität abhängt. Um die experimentellen Kurven mit der Theorie vergleichen zu können, müssen sie so umgerechnet werden, daß nur noch das Verhältnis $W_{\text{STOKES}}/W_{\text{STOKES},0}$ übrig bleibt (das heißt, die Kurven werden so gegeneinander verschoben, daß sie nach einer bestimmten Anfangslänge - in der sich die Eingangsenergie für den Verstärker aus dem Rauschen aufbaut - zusammenfallen*). Das Ergebnis ist in Abbildung 34 wiedergegeben. Auch hier ist der Parameter die entsprechende RABI-Frequenz des Pumpfeldes in Einheiten von $1/T_2$ (die Phasenrelaxationszeit wurde näherungsweise aus der Asymmetrie der zeitlichen STOKES-Pulsform ermittelt [vgl. dazu Fußnote auf S. 62]). Die qualitative Übereinstimmung mit der Theorie ist offensichtlich, die quantitative Vergleichbarkeit ist aber aus den oben erwähnten Gründen nicht gegeben. (Die sehr viel größere Verstimmung Δ_1 im Experiment führt zu einem stärkeren "Überschwingen" der Kurven kurz vor Einsetzen der Sättigung aufgrund von Pumplichtabschwächung /24b/).

Ähnlich ist es auch bei der Untersuchung der Abhängigkeit der STOKES-Energie von der Pumpenergie bei konstanter Teilchenzahl im Streuvolumen. Die theoretische Kurve in Abbildung 35a zeigt deutliche Sättigung. Das zunächst unerwartete Maximum vor dem eigentlichen Sättigungsbereich wird verständlich, wenn man die strichpunktierte Linie in Abbildung 34a berücksichtigt. Auf dieser Linie konstanter Teilchenzahl ist die Verstärkung bei niedriger Pumpenergie größer als bei hoher. Die experimentelle Kurve (Abbildung 35b) muß zunächst wieder auf das Energieverhältnis W/W_0 umgerechnet werden, um sie mit der Theorie vergleichen zu können. Dann zeigt sie qualitativ

*Die Messungen ergeben Proportionalität zwischen der Anfangsenergie der STOKES-Pulse und der Wurzel aus der Pumpenergie. Diese Abhängigkeit widerspricht einem einfachen Bild für die spontane Hyper-RAMAN-Streuung und ist theoretisch noch nicht verstanden.

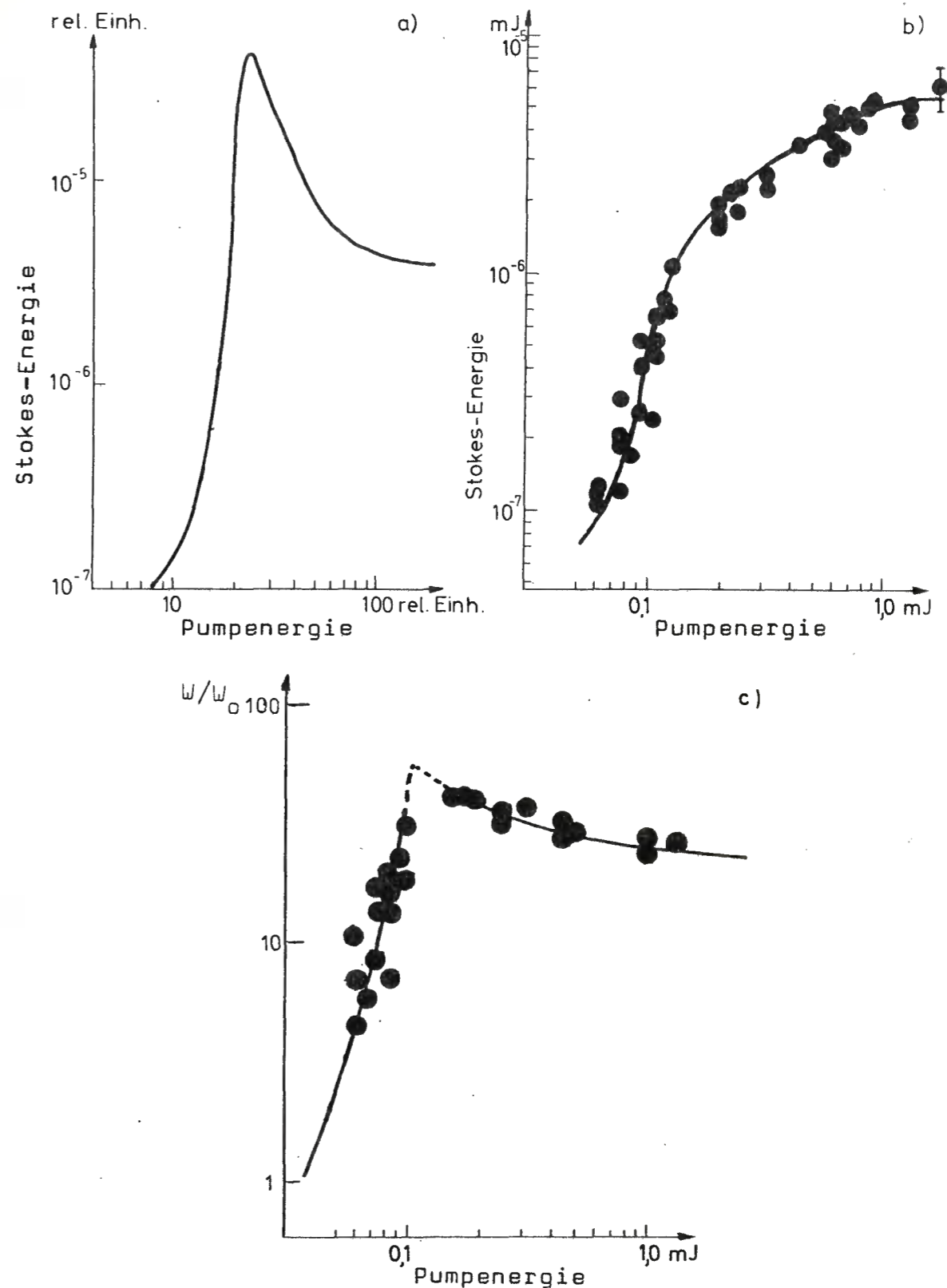


Abbildung 35: Abhängigkeit der STOKES-Energie von der Pumpenergie
 a) berechnet von LOUISELL und MEYSTRE /24/
 b) gemessen
 c) gemessene Werte, umgerechnet auf das Verhältnis W/W_0

die gleichen Eigenschaften wie die Rechnung (vgl. auch hier die strichpunktierte Linie in Abbildung 34b).

Die gute qualitative Übereinstimmung zwischen der Theorie und den bisher beschriebenen Messungen bestätigt die physikalischen Aussagen der semi-klassischen Rechnungen. Auch wenn aufgrund des großen Unterschieds in der Verstimmung Δ_1 (zum 5s5p-Zustand, vgl. Abbildungen 6 und 8) keine quantitative Vergleichsmöglichkeit besteht, muß selbst bei der großen Verstimmung im Experiment der 5s5p-Zustand schon erheblich besetzt sein. Daher ist auch nicht zu erwarten, daß sich die Ausbeute an STOKES-Licht durch eine resonante Anregung der ersten Stufe (nach 5s5p) verbessern läßt, da dadurch nur die Besetzung des Zustandes $|4\rangle$ gefördert wird. Das zeigen bereits sehr frühe Messungen zu Beginn dieser Arbeit, wo mit dem Stickstoff-Laser zwei Farbstoff-Laser gepumpt wurden. Mit dem ersten wurde der erste Zwischenzustand (5s5p) resonant angeregt, mit dem anderen konnte die Nähe des oberen Zwischenzustands (5s5d) erreicht werden. Das Ergebnis in Abbildung 36 bestätigt, daß der Umwandlungsgrad dabei nicht besser ist. Da im Gegenteil eine derartige Anordnung weitaus aufwendiger ist und der für den Laser der zweiten Stufe benötigte Farbstoff (767 nm) nur eine Betriebsdauer von wenigen Stunden hat - dann sind die Moleküle durch das Pumplicht zerstört -, war schon zu Beginn dieser Arbeit auf eine weitere Verfolgung dieses Anregungsweges verzichtet worden.

Ein weiterer Grund für die geringe Ausbeute an 16- μm -STOKES-Licht ist die gleichzeitig stattfindende Hyper-RAMAN-Streuung mit dem 5s5p-Zustand als Endzustand (vgl. Abbildung 7b). Auch die dabei stimuliert entstehende Strahlung mit einer Wellenlänge um 767 nm wurde bereits mit dem Stickstoff-Laser-gepumpten Farbstoff-Laser beobachtet. Das zeigt Abbildung 37.

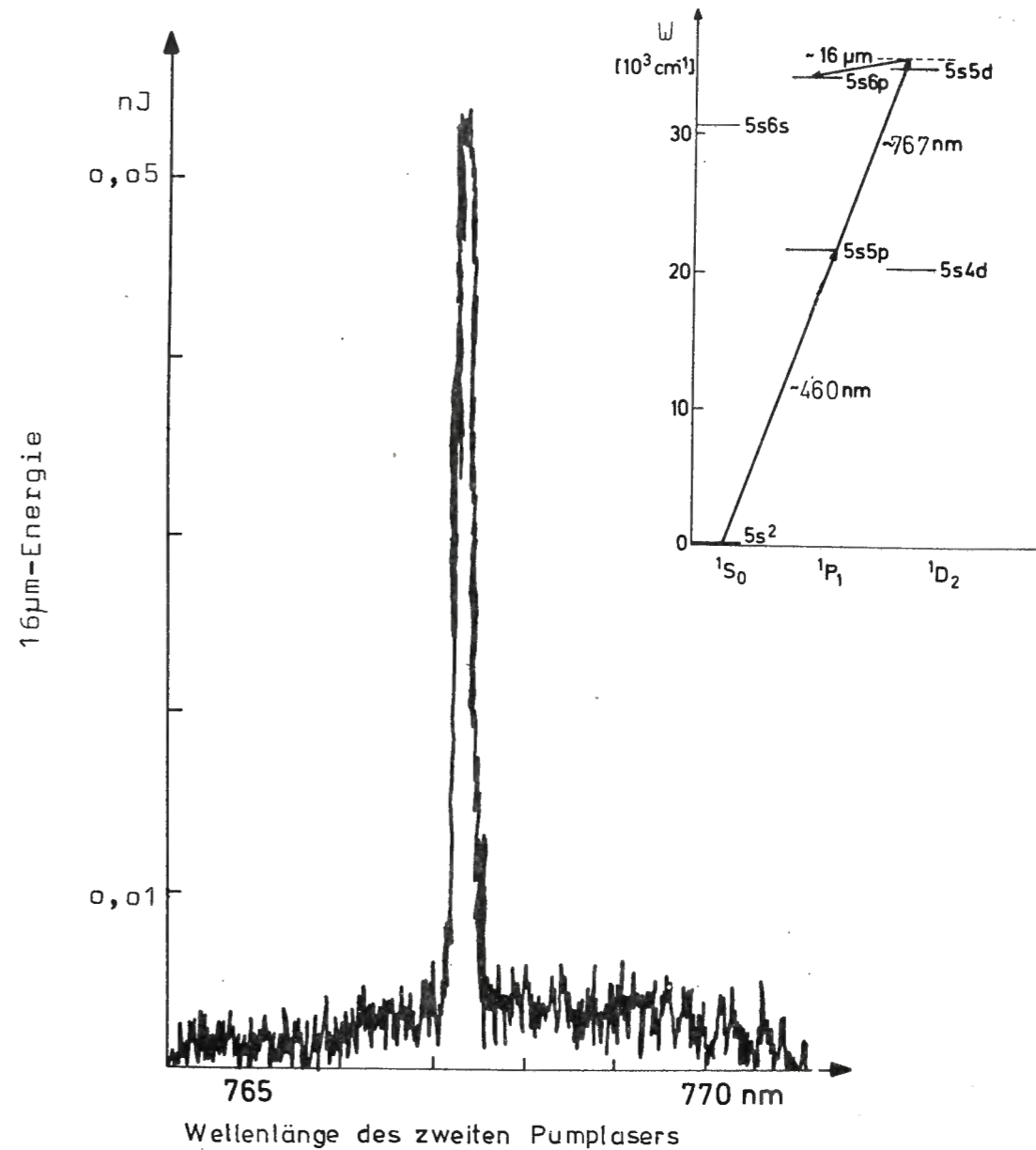


Abbildung 36: Hyper-RAMAN-Streuung mit resonanter erster Anregungsstufe (mit Stickstoff-Laser als Pumpe für zwei Farbstoff-Laser)

Der Durchstimmbereich ist hier größer als in der vergleichbaren 16- μm -Messung in Abbildung 26. Das bedeutet, daß der Wirkungsgrad für diesen Prozeß offensichtlich besser ist als für die Erzeugung längerer Wellenlängen.

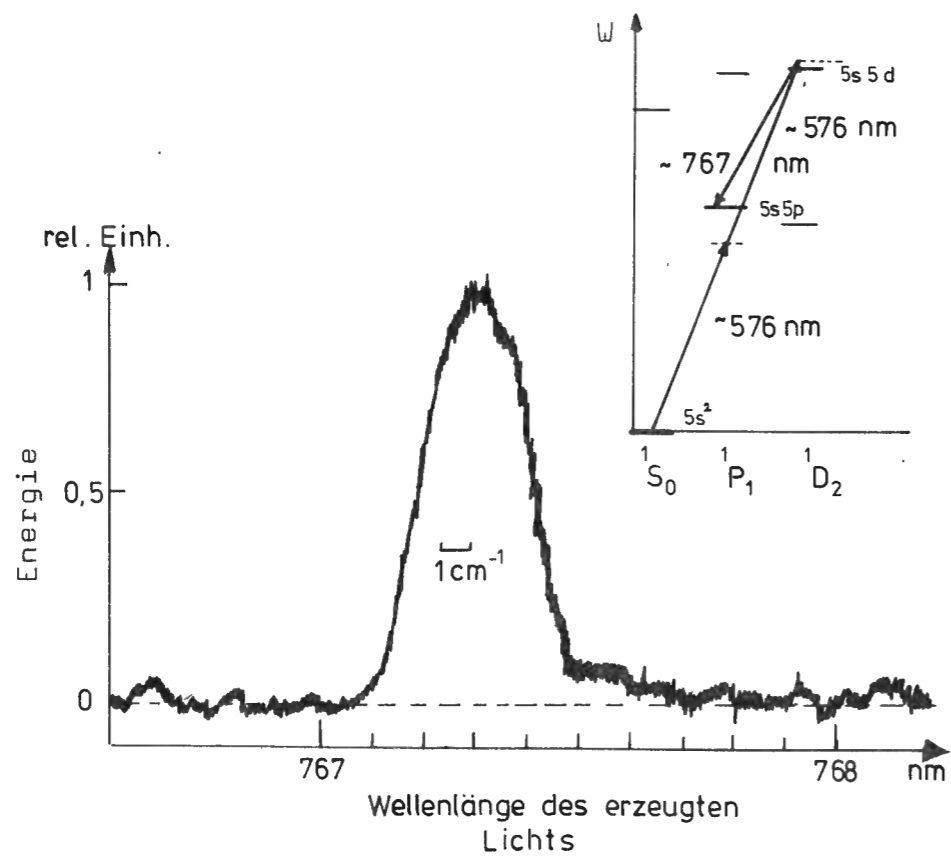


Abbildung 37: Stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung bei 767 nm

V.4. Zeitliches Verhalten der Infrarot-Pulse und Vergleich mit der semiklassischen Rechnung

Erst mit dem Einsatz des externen Steuergerätes für den Güteschalter des Nd^{3+} -YAG-Lasers war es möglich, zeitlich glatte und definierte Farbstoff-Laser-Pulse herzustellen. Damit und mit der schnellen Detektorschaltung aus Abbildung 20c konnte der zeitliche Verlauf der erzeugten STOKES-Pulse untersucht werden.

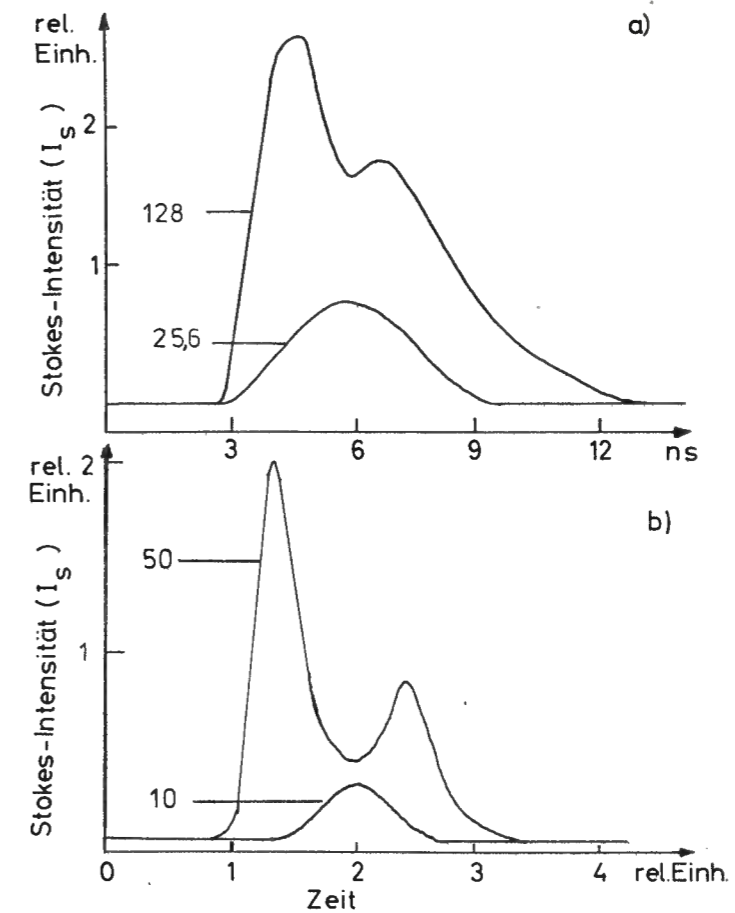


Abbildung 38: Zeitlicher Verlauf der Infrarot-Pulse bei verschiedener Pumpfeldstärke
 a) gemessen
 b) von LOUISELL und MEYSTRE berechnet

Die gemessene Pulsform ist in Abbildung 38a für zwei verschiedene Pumpfeldstärken dargestellt, die sich um den Faktor 5 unterscheiden (Parameter ist wieder die RABI-Frequenz Ω_p^*). In Abbildung 38b sind die Ergebnisse der Berechnung von LOUISELL und MEYSTRE zum Vergleich gezeigt. Die qualitative Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie ist wiederum gut.

In beiden Fällen folgt die Pulsform bei niedriger Pumpleistung dem Laser-Puls, während bei stärkerem Laser der Infrarot-Puls nicht in der Höhe mitwächst, sondern vor allem breiter wird und seine Form völlig ändert. Die führende Flanke steilt mit zunehmender Pumpintensität immer mehr auf, dann folgt ein Minimum (an der Stelle des Maximums bei schwacher Pumpe), gefolgt von einem zweiten, schwächeren Maximum. Das Minimum bei maximalem Pumpfeld hat die gleiche Ursache wie schon früher in Abbildung 34 und 35: je intensiver das Laser-Licht ist, desto stärker wird der Grundzustand entvölkert. Entsprechend stehen dort weniger Atome für die stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung zur Verfügung. Die Asymmetrie der Pulsform

*In der Arbeit von LOUISELL und MEYSTRE ist die RABI-Frequenz in Einheiten der inversen Phasenrelaxationszeit $1/T_2$ angegeben. Da diese im Experiment nicht bekannt war, wurde sie (zum Vergleich der experimentellen RABI-Frequenzen mit der Theorie) aus der Asymmetrie im Zeitverlauf der STOKES-Pulse näherungsweise ermittelt. Dazu wurde von dem Ansatz ausgegangen, daß die beiden Maxima (bei starkem Pumpfeld) im Falle unendlich kurzer Relaxationszeiten gleiche Höhe haben müßten, die Asymmetrie also von einer exponentiellen Wiederbesetzung des Grundzustands herrührt. Die Differenz zwischen symmetrischer und asymmetrischer Form wurde dann durch eine Exponentialkurve angepaßt, deren Zeitkonstante von 0,54 ns als T_2 gesetzt wurde.

— das zweite Maximum ist schwächer als das erste und der Abfall sehr viel weniger steil als der Anstieg — lassen darauf schließen, daß die Wiederbesetzung des Grundzustandes, also die Relaxation der höheren Zustände, sehr langsam abläuft. Dies bestätigt wiederum die Unzulässigkeit einer störungstheoretischen Behandlung, da die Voraussetzungen dafür nicht erfüllt sind. Allerdings gilt auch hier wieder, daß die Ergebnisse der Theorie von LOUISELL und MEYSTRE nicht quantitativ mit dem Experiment vergleichbar sind, sondern die physikalischen Vorgänge bei dem nicht-linearen Prozeß nur qualitativ wiedergeben.

V.5. Bandbreite des Infrarot-Lichts

Neben der Intensität der erzeugten STOKES-Strahlung wurde im Rahmen dieser Arbeit auch deren spektrale Verteilung untersucht. Dafür gibt es noch keine theoretischen Berechnungen. Deshalb sollen in diesem Kapitel nur die Meßergebnisse dargestellt werden. Schon die ersten Messungen mit dem schwächeren Farbstoff-Laser, bei denen das Infrarot-Licht nur mit einem Gittermonochromator analysiert wurde, zeigen, daß die Bandbreite des erzeugten Lichts nicht größer ist als die des Pumplasers.

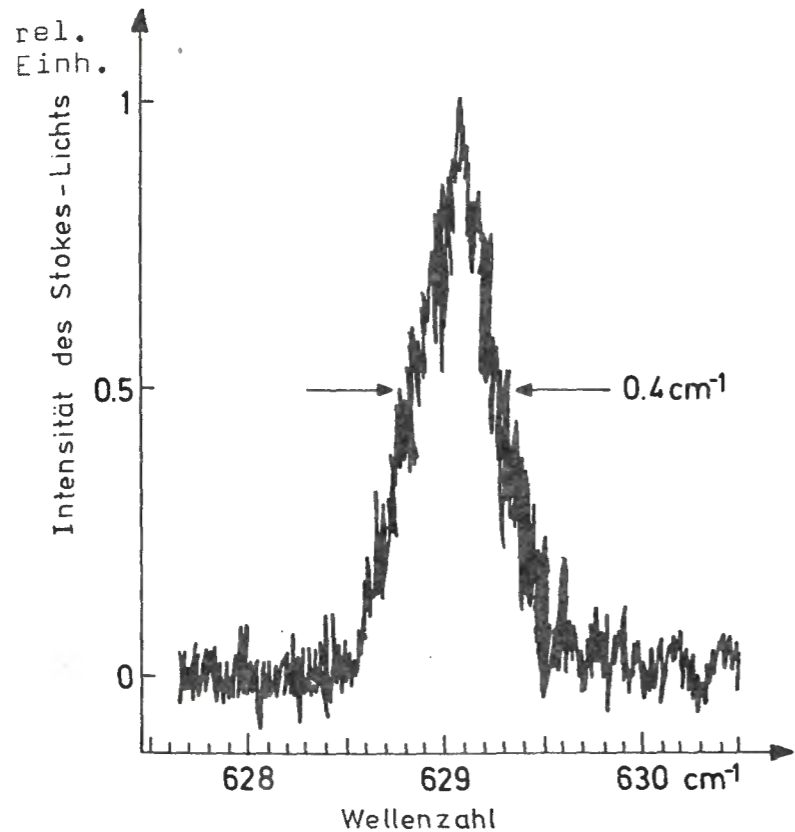


Abbildung 39: Bandbreite der Hyper-RAMAN-Strahlung bei fester Pump-Laser-Wellenlänge (Verstimmung von der Resonanz mit dem zweiten Zwischenzustand: $\Delta_2 = 0,6 \text{ cm}^{-1}$). Die Auflösung des Monochromators beträgt $0,2 \text{ cm}^{-1}$, die Bandbreite des Pumplichts $0,3 \text{ cm}^{-1}$.

Das steht in Widerspruch zu den Ergebnissen von COTTER et al. /18a/, die bei stimulierter Hyper-RAMAN-Streuung in Natrium-Dampf feststellten, daß die Bandbreite des gestreuten Lichts um etwa eine Größenordnung breiter war als die des eingestrahlten Lichts. Das könnte, wie die Autoren annehmen, unter anderem am störenden Einfluß von Alkali-Dimeren liegen. Ist dies richtig, so eignet sich die stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung an Erdalkalien eher als spektroskopische Quelle als die Streuung an Alkali-Dämpfen. Gleichzeitig wird durch die beiden Experimente die Voraussage /13/ widerlegt, daß nur die Bandbreite des eingestrahlten Lichts einen Einfluß auf die Linienbreite des erzeugten Lichts hat und das Streumedium keine Rolle spielt.

Bei den Messungen mit dem stärkeren Farbstoff-Laser wurde das STOKES-Licht mit einem Gerät höherer Auflösung, dem vorher beschriebenen FABRY-PEROT-Interferometer, analysiert. Dabei ist durch Verändern der Laser-Bandbreite auch die Untersuchung ihres Einflusses auf die spektrale Verteilung der Infrarot-Strahlung möglich. Der Zusammenhang zwischen beiden Linienbreiten ist linear. Abbildung 40 zeigt dies für die stark strukturierten Pulse, Abbildung 41 für glatte Pulse (mit Q-switch-Ansteuerung ELN beim Nd^{3+} -YAG-Laser). Die Steigung ist in beiden Fällen im Rahmen der Fehlergrenzen gleich, doch liegen die absoluten Werte für glatte Pulse – bei sonst gleichen Bedingungen – niedriger. Das bedeutet, der Anteil an der STOKES-Bandbreite, der von den Atomen herkommt, ist bei glatten Pulsen geringer als bei stark strukturierten. Bei beiden Pulsformen ist die Energie, also die Pulsfläche, gleich. Daher sind die Spitzenintensitäten bei unregelmäßiger Form weit größer als bei glatten Pulsen. Entsprechend größer wird der Einfluß auf die Intensitätsverbreiterung der atomaren Zustände, die mitverantwortlich ist dafür, daß die störungs-

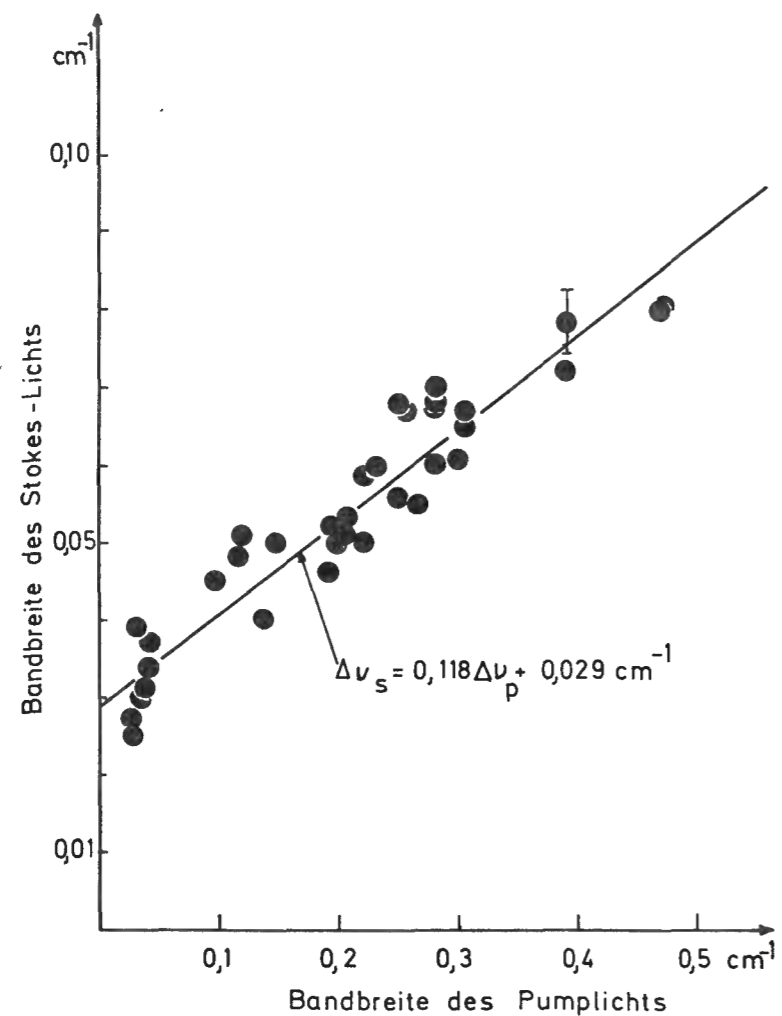


Abbildung 40: Abhängigkeit der STOKES-Bandbreite von der Bandbreite des Pumplichts bei Verwendung von Laser-Pulsen mit Spikes (Pumpenergie 2 mJ, Druck 26 mbar). Der Einfluß der FABRY-PEROT-Apparatebreite auf die Messwerte ist bereits abgezogen (vgl. Abbildung 47).

theoretische Betrachtung des Streuprozesses nicht gültig ist. Diese breiteren atomaren Zustände führen zu einer breiteren spektralen Verteilung des Infrarotlichts. Wichtig ist noch, daß diese Verteilung -

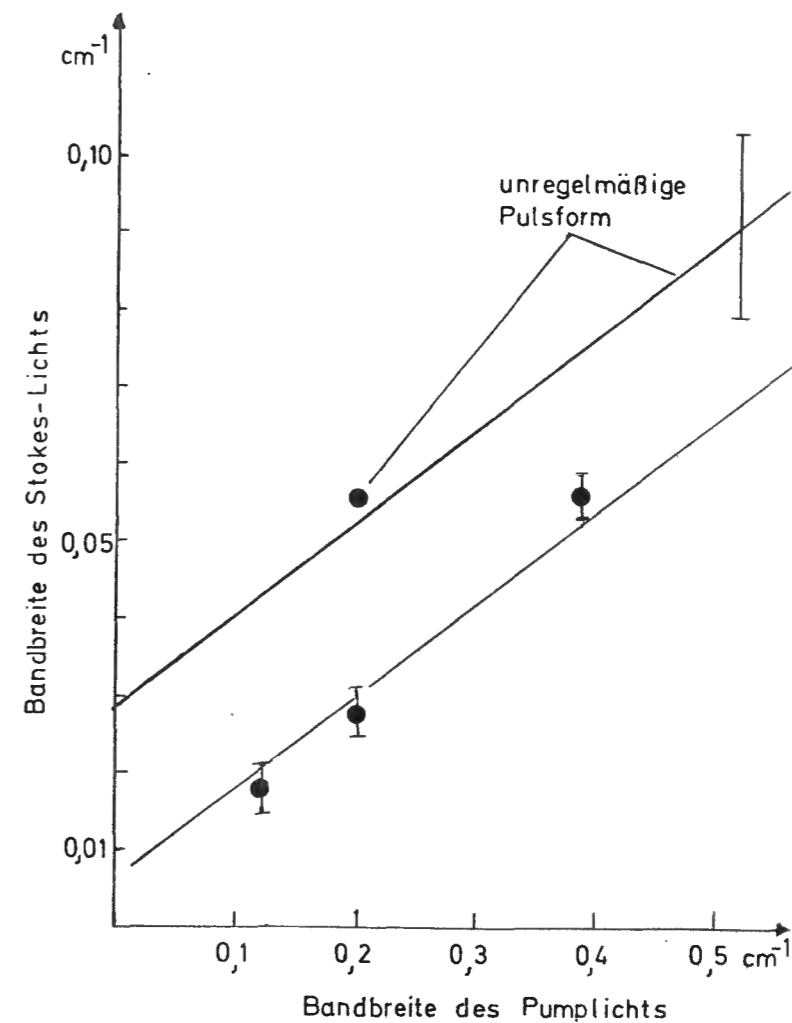


Abbildung 41: Abhängigkeit der STOKES-Bandbreite von der des Pumplichts bei glatter Form der Laser-Pulse (Pumpenergie: 2 mJ, Druck: 26 mbar); zum Vergleich wurde noch einmal ein Punkt mit unregelmäßiger Pulsform aufgenommen und die Gerade aus Abbildung 40 eingezeichnet.

bis auf den Fall sehr kleiner Pumpbandbreiten - sehr viel schmäler ist als beim Pumplicht. Diese Einengung hängt mit der Nichtlinearität des Verstärkungsvorgangs zusammen. So wird der zentrale Teil des STOKES-Spek-

trums, der intensiver ist als die Flügel, mehr verstärkt als diese, da bei dem stimulierten Prozeß die Verstärkung von der STOKES-Feldstärke beeinflußt wird ("gain-narrowing").

Der Einfluß der Breite der atomaren Zustände auf die Bandbreite des Infrarot-Lichts wird auch deutlich bei der Untersuchung der STOKES-Linienbreite in Abhängigkeit vom Dampfdruck in der Streuzelle. Hält man die Linienbreite und Intensität des Pumplichts konstant, so ist auch diese Abhängigkeit linear. Das zeigt Abbildung 42.

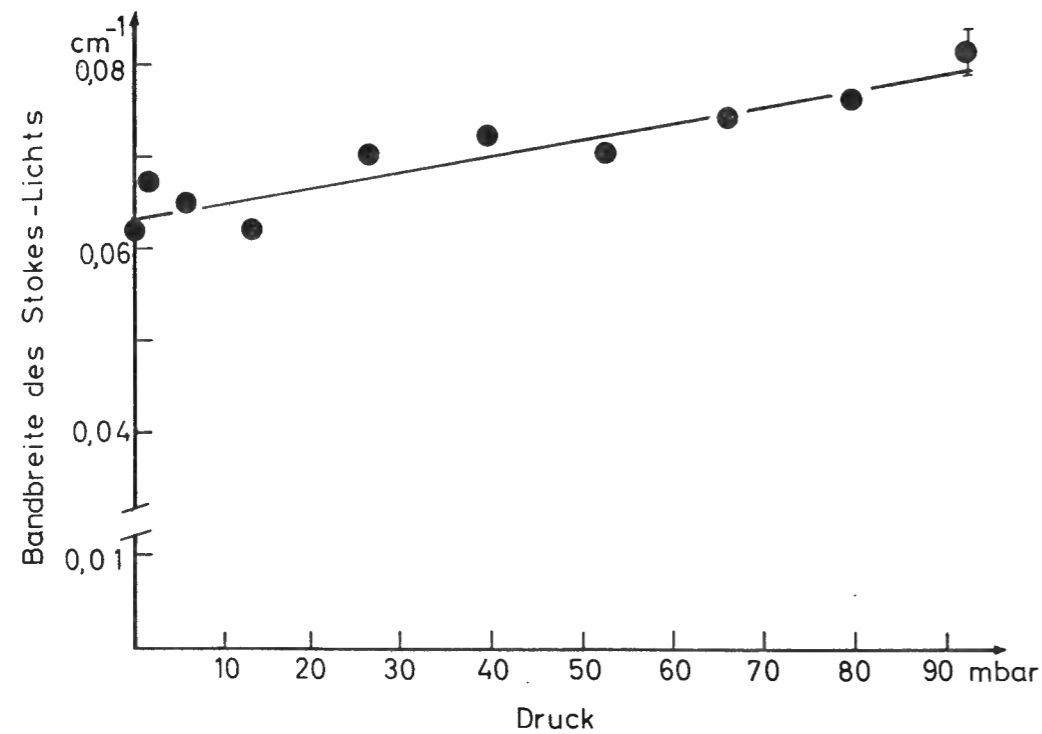


Abbildung 42: Druckabhängigkeit der STOKES-Bandbreite ($\Delta\nu_p = 0,283 \text{ cm}^{-1}$, Pumpenergie 2 mJ)

Diese Messung liefert im Rahmen der Fehlergrenzen für einen Druck von 26 mbar denselben Wert wie die Messung in Abbildung 40 für eine Pump-Bandbreite von $0,283 \text{ cm}^{-1}$. Beide Messungen sind also konsistent. Die Steigung bedeutet eine Druckverbreiterung der STOKES-Bandbreite von $5,56 \text{ MHz/mbar}$. Das ist jedoch nicht die Druckverbreiterung der atomaren Linien, da das STOKES-Licht durch die Verstärkung schmalbandiger wird als bei spontaner Streuung.

Von der Verstimmung Δ_2 zwischen der doppelten Pumpfrequenz und dem zweiten Zwischenzustand hängt die Bandbreite des erzeugten Lichts offensichtlich nicht ab. Das ist in Abbildung 43 zu erkennen.

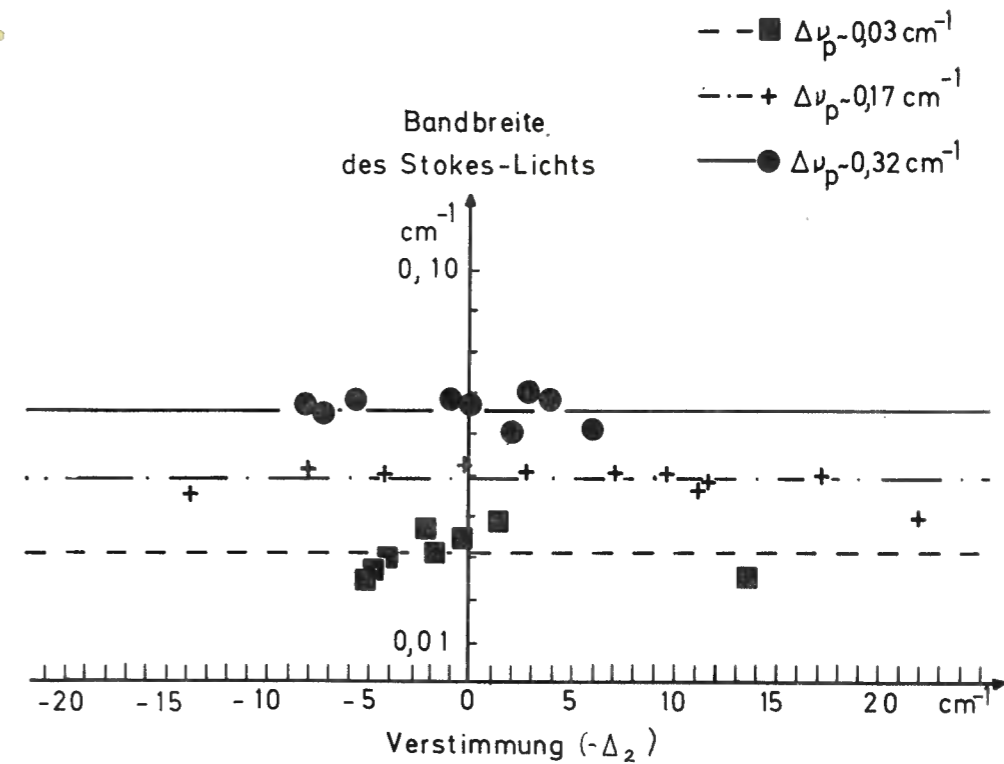


Abbildung 43: Abhängigkeit der STOKES-Bandbreite von der Verstimmung Δ_2 (Druck 26 mbar, Pumpenergie 2 mJ)

Die Pulslänge nimmt dagegen mit zunehmender Verstimmung ab (Abbildung 44). Wäre die Bandbreite FOURIER-limitiert, so müßte sie daher im Resonanzfall am geringsten sein. Es zeigt sich jedoch im Experiment, daß die FOURIER-limitierte Linienbreite nicht erreicht werden kann, selbst bei der kürzesten Pulsdauer. Der Grund dafür könnten schnelle Fluktuationen der Phase im STOKES-Licht und im Laser-Licht sein. Dies wurde nicht näher untersucht.

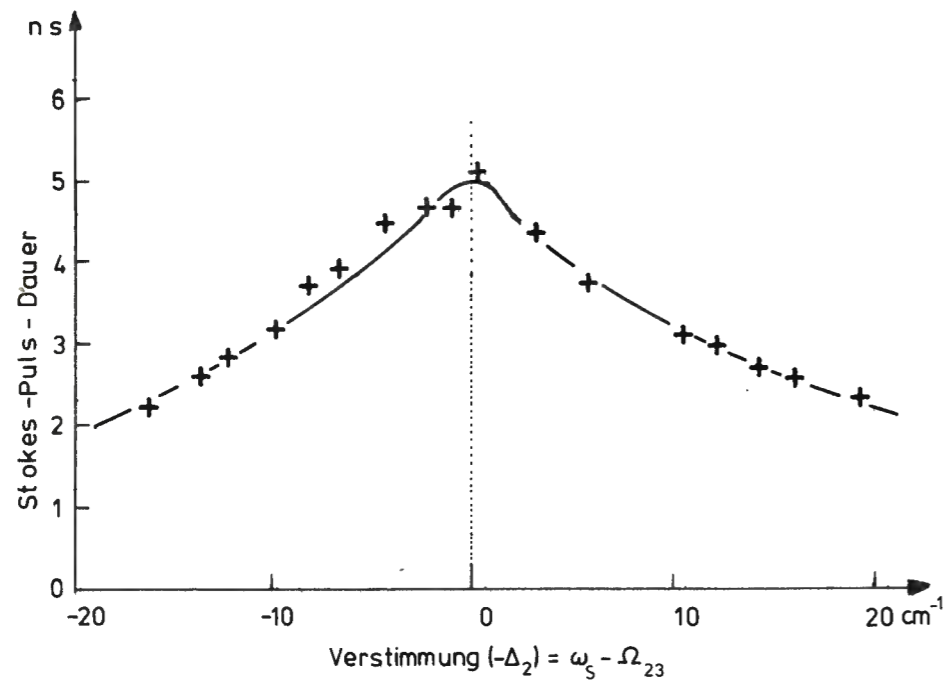


Abbildung 44: Abhängigkeit der STOKES-Pulsdauer von der Verstimmung Δ_2

Allerdings entsprechen die Ergebnisse aus Abbildung 43 auch nicht denen, die WYATT et al. für die stimulierte RAMAN-Streuung erhielten /35/. Dort wurde gezeigt, daß die Bandbreite bei Annäherung an die Resonanz zunimmt (was einer Pulsverkürzung entsprechen würde).

Schließlich wurde noch die Abhängigkeit der STOKES-Bandbreite von der Pumpenergie untersucht. Abbildung 45 zeigt, daß die Linienbreite nach einem kurzen Anstieg bei weiter steigender Pumpenergie relativ gleich bleibt.

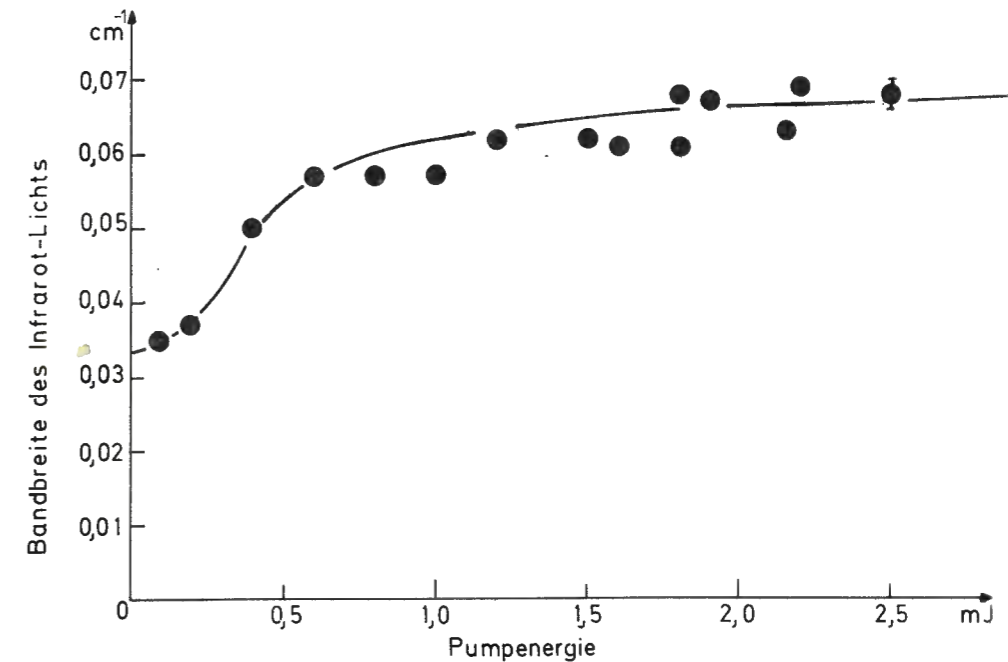


Abbildung 45: Abhängigkeit der Infrarot-Linienbreite von der Pumpenergie (Druck 26 mbar, Pumpbandbreite 0,292 cm⁻¹)

Da auch die Pulsenergie der Infrarot-Strahlung – wie in Abbildung 35 zu sehen war – einen ähnlichen Verlauf in Abhängigkeit von der Pumpenergie zeigt, liegt es nahe, die STOKES-Bandbreite mit der Infrarot-Energie zu vergleichen. Tatsächlich ergibt sich bei doppelt logarithmischer Auftragung ein linearer Zusammenhang, wie Abbildung 46 zeigt.

Der Ordinatenabschnitt der Kurve in Abbildung 45 entspricht – im Rahmen des Meßfehlers – dem Wert, den man aus Abbildung 40 für dieselbe Bandbreite des Pumplichts ermittelt. Dabei wird angenommen, daß der dortige Achsenabschnitt im wesentlichen von der Wechselwirkung

mit dem Strahlungsfeld herrührt (Intensitätsverbreiterung der atomaren Linien, vgl. auch Abbildung 46) und daher abgezogen werden muß ($0,29 \text{ cm}^{-1}$).

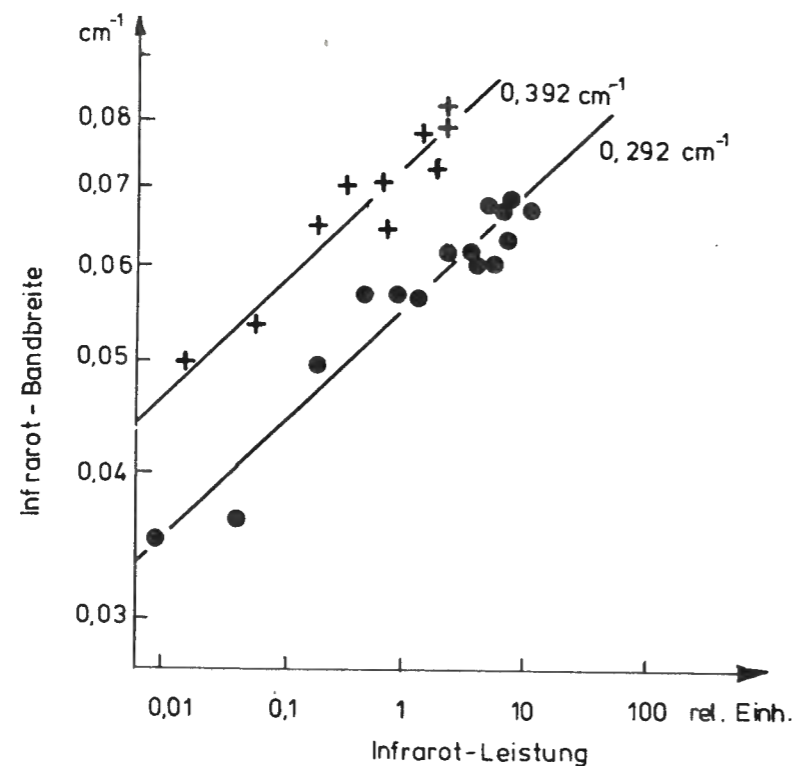


Abbildung 46: Abhängigkeit der Infrarot-Bandbreite von der Infrarot-Intensität (Druck 26 mbar, Parameter: Linienbreite des Pump-Lasers)

Entsprechendes gilt für den Unterschied der Ordinatenabschnitte in Abbildung 46, während dort die Steigungen unabhängig von der Pumpbandbreite sind. Aus diesen Messungen folgt, daß der wesentliche Teil des atomaren Beitrags zur STOKES-Linienbreite (Ordinatenabschnitt in Abbildung 40) von der Intensitätsverbreiterung der atomaren Zustände herrührt. Damit ist möglicherweise auch der Widerspruch zwischen den Messungen dieser Arbeit und den Messungen von WYATT et al. /35/ geklärt: Während bei den Messungen in Abbildung 43 die Intensität des STOKES-Lichts nicht sehr stark variiert wurde (Sättigung der STOKES-Ausbeute), war das offensichtlich bei

WYATT et al. der Fall (bei der von einem Photon induzierten RAMAN-Streuung wurden die hier erwähnten Sättigungseffekte nicht beobachtet). Da die Intensität der STOKES-Strahlung bei der stimulierten RAMAN-Streuung mit zunehmendem Abstand von der Resonanz abnimmt /12/, folgt in Analogie zu Abbildung 46, daß auch die Bandbreite abnehmen muß.

Der lineare Beitrag der Druckverbreiterung der atomaren Zustände ist — wie auch Abbildung 42 zeigt — nur gering verglichen mit dem Beitrag durch die Wechselwirkung zwischen Strahlungsfeld und Materie. Insgesamt läßt sich empirisch die folgende Beziehung aufstellen:

$$\Delta v_s \{ \text{cm}^{-1} \} = 0,118 \Delta v_p \{ \text{cm}^{-1} \} + 0,19 \times 10^{-3} p \{ \text{mbar} \} + a I_s^\beta. \quad (14)$$

Die theoretische Berechnung des Spektrums der STOKES-Pulse beinhaltet größere Schwierigkeiten, da der Einfluß der Apparatfunktion des messenden FABRY-PEROT-Interferometers berücksichtigt werden muß. Die spektrale Verteilung, die sich im Experiment ebenso näherungsweise durch eine LORENTZ-Kurve anpassen läßt (Abbildung 47) wie die des Pumplichts (Abbildung 17), könnte in der semiklassischen Theorie von LOUISELL und MEYSTRE nach dem Beispiel von EBERLY und WÓDKIEWICZ /36/ berechnet werden. Für die notwendige Computer-Simulation werden aber so lange Rechenzeiten benötigt, daß diese Rechnungen bisher aus Kostengründen nicht durchgeführt wurden.

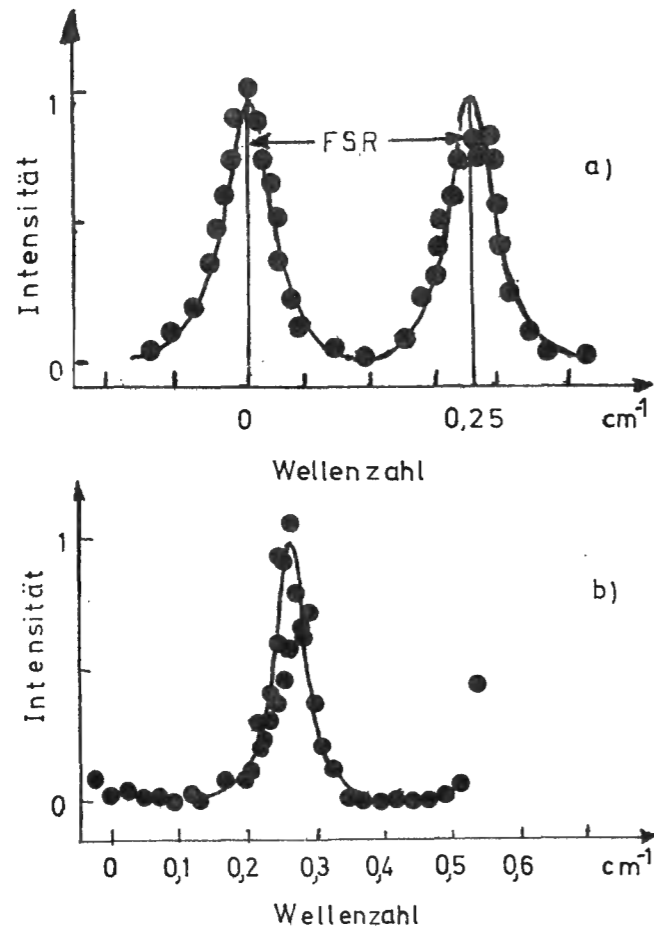


Abbildung 47: Transmission durch das durchstimmbare Infrarot-FABRY-PEROT-Interferometer (die Punkte sind die Messungen, die durchgezogenen Linien angepaßte LORENTZ-Kurven)

a) unregelmäßige Pulsform (Spikes)
 gemessene Linienbreite nach Berücksichtigung der Apparatebreite des Instruments: $0,060 \text{ cm}^{-1}$ {Linienbreite des Pumplichts: $0,283 \text{ cm}^{-1}$ }

b) glatte Pulsform
 gemessene Linienbreite: $0,028 \text{ cm}^{-1}$ {Linienbreite des Pumplichts: $0,194 \text{ cm}^{-1}$ }

Im Zusammenhang mit den zeitaufgelösten Bandbreitenmessungen ist es noch interessant, auf die oft übersehene Tatsache hinzuweisen, daß ein FABRY-PEROT-Interferometer für optische Pulse ähnlich als Integrationsfilter wirkt wie ein Widerstands-Kondensator-Glied (RC-Glied) für elektrische Pulse. Beobachtet man hinter dem Instrument nur die zentrale Transmissionsordnung, so werden die Lichtpulse ähnlich ausgeschmiert, wie es mit elektrischen Pulsen beim Durchgang durch einen Tiefpaß geschieht. Abbildung 49 zeigt sehr deutlich, daß der Anstieg des Pulses bedeutend langsamer wird und der gesamte Puls nach Durchgang durch das Interferometer länger ist.

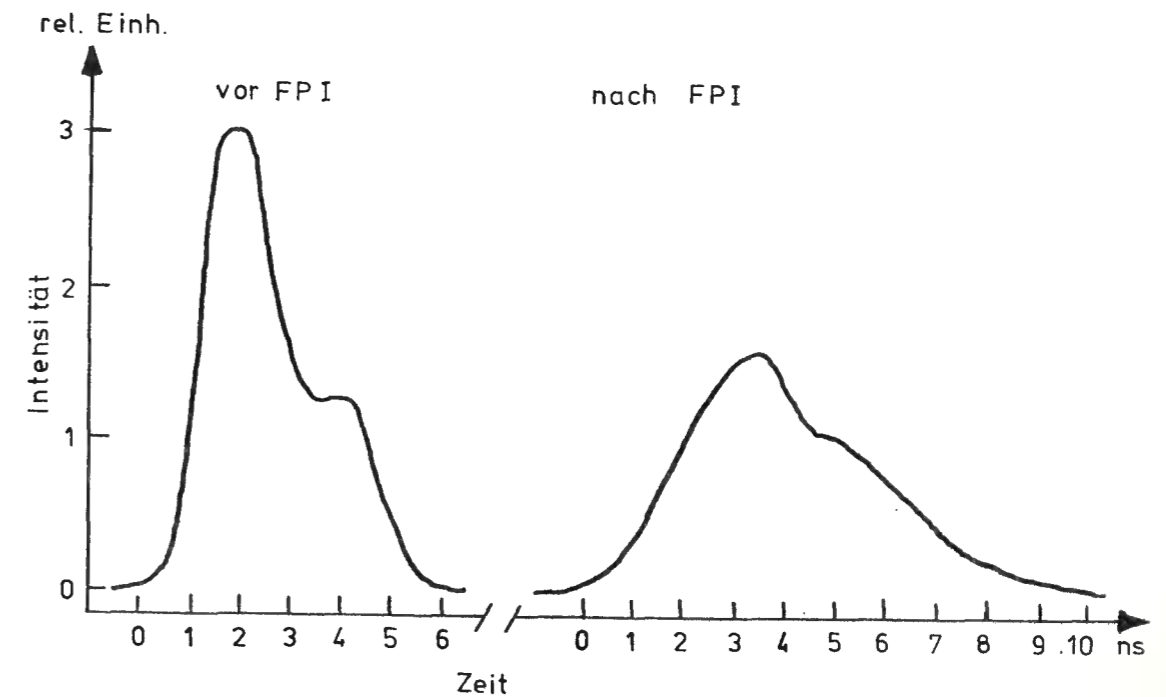


Abbildung 48: Zeitliches "Ausschmieren" eines Lichtpulses beim Durchgang durch ein FABRY-PEROT-Interferometer ("optisches RC-Glied")

VI. Schlußbemerkung und Ausblick

Die stimulierte Hyper-RAMAN-Streuung von sichtbarem Farbstoff-Laser-Licht in Strontium-Dampf bietet, so wurde in dieser Arbeit gezeigt, eine Möglichkeit, durchstimmbare schmalbandige Infrarot-Strahlung im Wellenlängenbereich um $16 \mu\text{m}$ zu erzeugen. Allerdings ist die Ausbeute dieser Frequenzumwandlung sehr viel geringer, als sich nach einer störungstheoretischen Abschätzung erwarten läßt. Das liegt daran, daß zwei starke Sättigungsmechanismen auftreten: Bei geringer Pumpenergie wird das Pumplicht bereits nach kurzer Wechselwirkungszone völlig aufgebraucht und liefert bei längeren Wechselwirkungszone keine größere Infrarot-Energie. Bei großer Pumpenergie werden die nichtresonanten Zwischenzustände des Hyper-RAMAN-Prozesses merklich besetzt. Dadurch stehen nicht mehr genügend Grundzustandsatome für die stimulierte Streuung zur Verfügung. Entsprechend gering ist die Ausbeute an STOKES-Energie.

Da die Besetzung der Zustände des Mediums bei der Hyper-RAMAN-Streuung sehr stark beeinflußt wird, liefert die Störungsrechnung keine gute Beschreibung dieser optisch-nichtlinearen Frequenzumwandlung. Stattdessen ist es notwendig, die Bewegungsgleichungen für die Dichtematrix und die Wellen vollständig zu lösen. Die dabei erhaltenen Ergebnisse stimmen qualitativ sehr gut mit den Experimenten überein. Eine quantitative Vergleichbarkeit wäre nur bei Einsatz sehr großen Rechenaufwands möglich, ohne weitere physikalische Erkenntnisse über den Prozeß zu liefern.

Eine Verbesserung des Wirkungsgrades bei der stimulierten Hyper-RAMAN-Streuung läßt sich nur erzielen, wenn es gelingt, den Einfluß der Sättigung gering zu halten.

Das kann einmal durch die Wahl eines anderen Streume-
diums geschehen, bei dem die Übergangswahrscheinlich-
keiten vom Grundzustand zu den höheren Zuständen sehr
viel geringer sind als beim Strontium. Dadurch wird
der Grundzustand weniger leicht entvölkert. Eine ande-
re Möglichkeit wäre, die Streuzone und damit die Teil-
chenzahl im Wechselwirkungsvolumen sehr viel größer zu
machen. Dadurch würde der lineare Bereich (wo keiner
der beiden Sättigungsmechanismen wirksam ist) erst bei
höheren Intensitäten erreicht.

Ein Punkt, der noch weitere Modellrechnungen erfordert,
ist das Spektrum des erhaltenen Infrarot-Lichts. Die
Messungen zeigen hier, daß die Bandbreite abhängt von
der des Pumplichts, von der Wechselwirkung zwischen
den Atomen und dem Wellenfeld und vom Druck des Atom-
dampfes. Die Linienbreite der Hyper-RAMAN-Strahlung
ist schmaler als die des eingestrahlt Lichts, was
man als Einengung aufgrund der durch den Hyper-RAMAN-
Effekt hervorgerufenen Verstärkung verstehen kann. Ein
theoretisches Modell für die Bandbreite, das auf den
semiklassischen Berechnungen aufbaut und alle diese
Punkte berücksichtigt, könnte zu einer weiteren Ver-
tiefung des Verständnisses der stimulierten Hyper-RA-
MAN-Streuung führen.

VII. Literatur

/1/ W. Demtröder: *Laser Spectroscopy*, 2nd ed. (Berlin, Heidelberg, New York, 1973)

/2/ H. Walther (Hrsg.): *Laser Spectroscopy of Atoms and Molecules*, Topics in Applied Physics 2, (Berlin, Heidelberg, New York, 1976)

/3/ Erste Arbeit: W. Kaiser, C.G.B. Garrett: Phys. Rev. Lett. 7, 229 (1961)

/4/ M. Goeppert-Mayer: Naturw. 17, 932 (1929)

/5/ F.P. Schäfer (Hrsg.): *Dye Lasers*, Topics in Applied Physics 1, (Berlin, Heidelberg, New York, 1973)

/6/ M. Trautmann, PLF-Report 20 (1979)

/7/ H. Welling, G. Litfin, R. Beigang: *Tunable Infrared Lasers Using Color Centers* in J.L. Hall, J.L. Carlsten (Hrsg.): *Laser Spectroscopy III*, (Berlin, Heidelberg, New York, 1977)

/8/ A. Mooradian: *High Resolution Tunable Infrared Lasers* in R.A. Smith (Hrsg.): *Very High Resolution Spectroscopy*, (London, 1976)

/9/ C.K.N. Patel in R.G. Brewer, A. Mooradian (Hrsg.): *Laser Spectroscopy*, 471 (New York, 1974)

/10/ S.E. Harris, Proc. IEEE 57, 2096 (1969)

/11/ N. Bloembergen: *Nonlinear Optics*, (New York, 1965)

/12/ D.C. Hanna, M.A. Yuratich, D. Cotter: *Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules*, Springer Series in Optical Sciences 17, (Berlin, Heidelberg, New York, 1979)

/13/ J.J. Wynne, P.P. Sorokin: *Optical Mixing in Atomic Vapors* in Y.-R. Shen (Hrsg.): *Nonlinear Infrared Generation*, Topics in Applied Physics 16, (Berlin, Heidelberg, New York, 1977)

/14/ K.G. Weyer: Diplomarbeit. (Köln, 1975)

/15/ a) W. Schmidt, W. Appt: Z. Naturforsch. 27a, 1373 (1972)
 b) R. Frey, F. Pradère, J. Lukasik, J. Ducuing: Opt. Comm. 22, 355 (1977)
 c) W. Hartig, W. Schmidt: Appl. Phys. 18, 235 (1979)

/16/ a) P.P. Sorokin, N.S. Shiren, J.R. Lankard, E.C. Hammond, T.G. Kazyaka: Appl. Phys. Lett. 10, 44 (1967)
 b) D. Cotter, D.C. Hanna, P.A. Kärkkäinen, R. Wyatt: Opt. Comm. 15, 143 (1975)

/17/ J.J. Wynne, P.P. Sorokin, J.R. Lankard: *A Tunable Infrared Coherent Source for the 2 to 25 Micron Region and Beyond* in R.G. Brewer, A. Mooradian (Hrsg.): *Laser Spectroscopy*, (New York, London, 1974)

/18/ a) Q.H.F. Vreken, H.M.J. Hikspoors: Opt. Comm. 21, 127 (1977)
 b) D. Cotter, D.C. Hanna, W.H.V. Tuttlebee, M.A. Yuratich: Opt. Comm. 22, 190 (1977)
 c) J. Reif, H. Walther: Appl. Phys. 15, 361 (1978)

/19/ W. Krieger: private Mitteilung

/20/ E.J. Woodbury, W.K. Ng: Proc. IRE 50, 2367 (1962)

/21/ W. Kaiser, W. Maier in F.T. Arecchi, E.O. Schulz-Du-bois (Hrsg.): *Laser Handbook 2*, 1093 (Amsterdam, 1972)

/22/ S. Rockwood in A. Mooradian, T. Jaeger, P. Stokseth (Hrsg.): *Tunable Lasers and Applications*, 140 (Berlin, Heidelberg, New York, 1976)

/23/ a) R.T. Hodgson, P.P. Sorokin, J.J. Wynne: Phys. Rev. Lett. 32, 343 (1974)
 b) H. Scheingraber, H. Puell, C.R. Vidal: Phys. Rev. A 18, 2585 (1978)

/24/ W.H. Louisell, P. Meystre; a) Phys. Rev. A 23, 1015 (1981)
 b) private Mitteilung

/25/ T.W. Hänsch: Appl. Opt. 11, 895 (1972)

/26/ *Molelectron DL-Series Tunable Dye Lasers*, Molelectron Corp., Sunnyvale (1975)

/27/ R.L. Herbst, H. Komine, R.L. Byer: Opt. Comm. 21, 5 (1977)

/28/ Ch. Fabry, A. Perot: Ann. Chim. Phys. 12, 459 (1897)
 Ch. Fabry, A. Perot: Ann. Chim. Phys. 15, 289 (1899)

/29/ R. Wallenstein, T.W. Hänsch: Appl. Opt. 13, 1625 (1974)

/30/ Ch. Fabry, A. Perot: Ann. Chim. Phys. 16, 115 (1899)

/31/ C.R. Vidal, J. Cooper: J. Appl. Phys. 40, 3370 (1969)

- /32/ Santa Barbara Research Corp., Katalog (1976)
- /33/ M. Diegelmann, private Mitteilung
- /34/ R.A. McClatchey, W.S. Benedict, S.A. Clough, D.E. Burch, R.E. Calfee, K. Fox, L.S. Rothman, J.S. Garing: *AFCRL Atmospheric Absorption Line Parameter Compilation*, AFCRL-TR-73-0096 (1973)
- /35/ R. Wyatt, D. Cotter, D.C. Hanna: private Mitteilung
- /36/ J.H. Eberly, K. Wódkiewicz: *J. Opt. Soc. Am.* 67, 1252 (1977)

Zum Abschluß dieser Arbeit möchte ich ganz besonders Herrn Professor Dr. H. WALTHER für die Anregung zu diesem Thema und für seine hilfreiche Unterstützung während der Durchführung danken. In zahlreichen Diskussionen half er bei der Lösung auftretender Probleme.

Auch Herrn Dr. W. KRIEGER von der Projektgruppe für Laserforschung und Herrn Dr. K.W. ROTHE von der Sektion Physik der Ludwig-Maximilians-Universität, der mir die Absorptionsdaten von Luft zugänglich machte, bin ich für ihre ständige Diskussionsbereitschaft dankbar.

Für ihre technische Unterstützung danke ich der mechanischen Werkstätte der Projektgruppe für Laserforschung, außerdem den Herren C. GEISREITER, H. KÄSBAUER und E. WALLNER.

Nicht zuletzt gilt mein Dank Herrn Prof. Dr. W.H. LOUISELL und Herrn Dr. P. MEYSTRE, die mir nicht nur die Ergebnisse ihrer Rechnungen schon vor der Veröffentlichung zur Verfügung stellten, sondern mir auch durch viele Diskussionen ein tieferes Verständnis der beobachteten Prozesse ermöglichten.

