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

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR QUANTENOPTIK

Stimulierte Ramanstreuung von Jodlaserlicht in flüssigem Stickstoff

H. Jetter, L. Werner

M P Q 63 Mai 1982

MPQ-Report
63

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

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

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

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR QUANTENOPTIK

Stimulierte Ramanstreuung von Jodlaserlicht in flüssigem Stickstoff

H. Jetter, L. Werner

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

M P Q 63 Mai 1982

MPQ 63 / 1982

Stimulierte Ramanstreuung von Jodlaserlicht in flüssigem Stickstoff

H. Jetter und L. Werner

Zusammenfassung

Die stimulierte Ramanstreuung stellt ein leistungsfähiges Prinzip zur Erzeugung frequenzverschobener Laserstrahlung dar. Dabei erscheint flüssiger Stickstoff als Ramanmedium besonders geeignet, da er einen sehr hohen Verstärkungsfaktor und gute Transparenz über einen ausgedehnten Wellenlängenbereich vereint.

Bei Experimenten mit Jodlaserstrahlung wurde jedoch stimulierte Brillouinstreuung und Selbstfokussierung in Konkurrenz zur Ramanstreuung beobachtet. Zwar kann die Brillouinstreuung durch kurze Pumppulse oder einen selektiv wirkenden Resonator unterdrückt werden, die Selbstfokussierung beschränkt aber die nutzbare Pulsenergie auf relativ kleine Werte.

Diese Arbeit wurde gefördert durch das Bundesministerium für Forschung und Technologie und im Rahmen des Zusammenarbeitsvertrages zwischen dem Max-Planck-Institut für Quantenoptik und der Uranit GmbH, Jülich, durchgeführt.

1. Einleitung

Für die Untersuchung der isotopenselektiven Anregung von Uranhexafluorid (UF_6) ist ein schmalbandiger Infrarotlaser wünschenswert, der im Wellenlängenbereich um 16 µm kontinuierlich abstimmbar ist. In Vorversuchen [1] konnte gezeigt werden, daß durch dreifache stimulierte Ramanstreuung in flüssigem Stickstoff die Strahlung des Jodlasers in den relevanten Wellenlängenbereich transformiert werden kann. In einem weiteren Experiment [2] wurde demonstriert, daß sich die Wellenlänge des Jodlasers mit Hilfe eines Magnetfeldes über einen ausreichenden Bereich kontinuierlich abstimmen läßt, ohne daß dabei die Laserleistung wesentlich abnimmt oder die Emissionslinienbreite zunimmt. Durch die Kombination "magnetisch abstimmbarer Jodlaser + Raman-Streuung in flüssigem Stickstoff" sollte sich somit ein für die Untersuchung des Uranhexafluorids geeignetes System verwirklichen lassen.

Mehrere Gründe lassen ein solches System besonders attraktiv erscheinen:

1. Der Jodlaser hat bereits einen sehr hohen Entwicklungsstand erreicht und kann zu hohen Pulsenergien und Repetitionsraten skaliert werden.

2. Die Wellenlänge des Jodlasers kann bequem durch das Magnetfeld kontrolliert werden. Zusätzliche dispergierende optische Elemente zur Wellenlängenkontrolle oder Einengung der Emissionslinienbreite sind nicht erforderlich.

3. Von allen bekannten Substanzen besitzt flüssiger Stickstoff den höchsten Verstärkungsfaktor für stimulierte Ramanstreuung. Daher sollte bereits bei relativ kleinen Laserleistungen eine sehr effektive Umwandlung des Pumplichts in Raman-Licht erfolgen. Aus der Literatur sind Umwandlungsgrade bis zu 70 % bekannt [3].

4. Entsprechend der Literatur [3], [4] sollten konkurrierende nichtlineare Prozesse erst bei Laserleistungen auftreten, die wesentlich über der Schwelle für stimulierte Ramanstreuung liegen.

Jedoch sind beim Bau eines solchen Systems folgende Kriterien zu beachten:

Die Schwelleistung und der Wirkungsgrad für die Ramankonversion hängen entscheidend von der Strahlqualität des Pumplasers ab. Entsprechend hoch sind die Anforderungen an die Homogenität des Lasermediums, die Qualität der optischen Komponenten und die Justierung des Resonators.

Für die Abstimmung der Wellenlänge in dem relevanten Bereich sind Magnetfelder von 5 - 7 Tesla erforderlich. Mit ausreichender Stabilität und Betriebssicherheit lassen sich solche Felder nur in supraleitenden Magneten realisieren. Da der Laser innerhalb des Magneten betrieben werden muß, ist auf eine besonders kompakte Bauweise zu achten.

Der flüssige Stickstoff in der Ramanzelle muß optisch homogen sein. Insbesondere dürfen keine Eiskristalle oder Gasbläschen auftreten, da sonst das Laserlicht durch Mie-Streuung verlorengeht. Die Ramanzelle muß daher als Kryostat ausgeführt werden, in der der flüssige Stickstoff unterkühlt werden kann.

2. Abschätzungen zur stimulierten Ramanstreuung

Für die Intensität J_s der stimulierten Ramanstreuung gilt im Falle einer ebenen Pumpwelle der Intensität J_p:

$$J_s(l) = J_s(0)\, e^{J_p \cdot l \cdot g_{Ra}} \qquad (1)$$

wobei l die Wechselwirkungslänge und g_{Ra} der Verstärkungsfaktor für die stimulierte Ramanstreuung bedeuten. Der Verstärkungsfaktor g_{Ra} läßt sich aus dem Raman-Streuquerschnitt $\frac{d\sigma}{d\Omega}$
der Raman-Linienbreite $\Delta\omega_{Ra}$
der Teilchendichte N
dem Brechungsindex n
sowie der Frequenz des Pumplichts ω_p
berechnen.

$$g_{Ra} = \frac{4\pi_s^2 N \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)}{n^2 \hbar \omega_p \Delta\omega_{Ra}} \qquad (2)$$

Aufgrund von "motional narrowing" ist in flüssigem Stickstoff die Raman-Linienbreite $\Delta\omega_{Ra} = 0{,}067\ cm^{-1}$ [4] atypisch klein. Daher ist der Verstärkungsfaktor g_{Ra} um 2 bis 3 Größenordnungen höher als in typischen Gasen (H_2, CH_4) oder Flüssigkeiten (CS_2).

Die Molekülschwingung in flüssigem Stickstoff hat die Eigenfrequenz $\tilde{\nu}_{N_2} = 2326{,}5\ cm^{-1}$ [4]. Bei der Streuung des Jodlaserlichts ($\tilde{\nu} = 7603{,}4\ cm^{-1}$) werden folgende Stokeskomponenten erzeugt.

1. Stokes: $(7603{,}4 - 2326{,}5)\ cm^{-1} = 5276{,}9\ cm^{-1}$
   entspr. $\lambda_{s1} \approxeq 1{,}9\ \mu m$

2. Stokes: $(7603{,}4 - 2 \times 2326{,}5)\ cm^{-1} = 2950{,}4\ cm^{-1}$
   entspr. $\lambda_{s2} \approxeq 3{,}4\ \mu m$

3. Stokes: $(7603{,}4 - 3 \times 2326{,}5)\ cm^{-1} = 623{,}9\ cm^{-1}$
   entspr. $\lambda_{s3} \approxeq 16\ \mu m$

Für die Verstärkungsfaktoren erhält man gemäß Gl. (2) aus den in der Literatur bekannten Daten

$$g_{s1} = 8 \times 10^{-3}\ cm/MW$$

$$g_{s2} = 3{,}6 \times 10^{-3}\ cm/MW$$

$$g_{s3} = 3 \times 10^{-4}\ cm/MW$$

Wie aus Gl. (1) ersichtlich, muß zur Erzielung einer hohen Konversion das Pumplicht über eine möglichst lange Wechselwirkungslänge l mit großer Intensität J_p aufrechterhalten bleiben. Im einfachsten Fall wird dies durch Fokussierung erreicht. Bei einem Gaußschen Strahl ergibt sich dabei die Gesamtverstärkung

$$\alpha = \int_0^\infty J_p(l)\, g_{Ra}\, dl$$

unabhängig von der Fokussierung zu [5]

$$\alpha = \frac{4 \cdot g_{Ra} \cdot P_p}{\lambda_s + \lambda_p} = \alpha_s P_p$$

Hierbei ist P_p die Leistung des Pumplasers. Entsprechend erhält man für den Koeffizienten α_s der Gesamtverstärkung bei den Wellenlängen der 1., 2. und 3. Stokeskomponente folgende Werte:

$$\alpha_{s1} = 94\ /\ MW$$
$$\alpha_{s2} = 27\ /\ MW$$
$$\alpha_{s3} = 0{,}6/\ MW$$

Erfahrungsgemäß wird die Schwelle für die stimulierte Ramanstreuung erreicht, wenn die Gesamtverstärkung $\alpha_s \times P \cong 30$ ist. Zur Erzeugung der 1,9 µm und 3,4 µm Strahlung sind demzufolge 300 kW bzw. 1 MW Pumpleistung erforderlich. Diese Leistungen lassen sich mit einem relativ kleinen Jodlaser realisieren. Soll dagegen die 16 µm - Strahlung ebenfalls durch stimulierte Ramanstreuung erzeugt werden, so ist eine Pumpstrahlung von 50 MW Leistung bei der Wellenlänge $\lambda = 3{,}4\ \mu m$ erforderlich. Die hierfür erforderliche Leistung bei $\lambda = 1{,}3\ \mu m$ läßt sich zu 500 MW abschätzen, wenn man für die Erzeugung der 1. und 2. Stokeskomponente jeweils 50 % Quantenwirkungsgrad annimmt und außerdem die unterschiedliche Photonenenergie bei $\lambda = 1{,}3\ \mu m$ und $\lambda = 3{,}4\ \mu m$ berücksichtigt. Ein Jodlaser, der diese Leistung in einem beugungsbegrenzten Strahl liefert, erfordert eine aufwendige Anordnung, die sich kaum in einem supraleitenden Magneten betreiben lassen dürfte. Es müssen deshalb Maßnahmen zur Reduktion der erforderlichen Laserleistung getroffen werden.

Die bisherigen Abschätzungen gelten für einen einfach fokussierten Pumpstrahl. Wenn in einer optischen Anordnung die Strahlung mehrfach fokussiert wird und somit über eine größere Strecke mit hoher Intensität aufrechterhalten bleibt, so erhöht sich die Verstärkung für stimulierte Ramanstreuung entsprechend. Mit der in Abschnitt 4 beschriebenen Multireflexzelle sollte sich die Verstärkung um den Faktor 30 steigern lassen. Dementsprechend würde sich die erforderliche Leistung des Jodlasers auf weniger als 20 MW reduzieren.

Nimmt man für die Erzeugung der einzelnen Stokes-Komponenten jeweils 50 % Quantenwirkungsgrad an, so kann man bei der Konversion in 16 µm-Strahlung den Gesamtwirkungsgrad $\eta_a = (0{,}5)^3 \triangleq 12{,}5\ \%$ erwarten. Unter Berücksichtigung

der Photonenenergie entspricht dies dem Energiewirkungsgrad η_E = 1 %. Zur Erzeugung von 1 mJ 16 µm-Strahlung wäre somit ein Pumplaser mit 100 mJ Energie und einer Leistung von 20 MW erforderlich.

3. Pumplaser

Bei Blitzlampen-gepumpten Jodlasern erzielt man typischerweise Emissionspulse von 50 ns Dauer. Auch durch elektro-optische Güteschaltung läßt sich diese Pulsdauer nicht wesentlich verkürzen, ohne daß dabei gleichzeitig eine deutliche Reduzierung der Pulsenergie auftritt. Um 20 MW-Leistung zu erzielen, muß daher eine Pulsenergie von mindestens 1 J angestrebt werden. Desweiteren muß der Laser so kompakt aufgebaut werden, daß er sich innerhalb eines supraleitenden Solenoids betreiben läßt.

Bei der gewählten Anordnung sind 8 Blitzlampen und ein gemeinsamer Reflektor konzentrisch um das Laserrohr angeordnet. Das aktive Volumen besitzt den Durchmesser d = 4 cm und die Länge l = 60 cm. Das Lasermedium (C_3F_7J + Ar) wird mit Hilfe einer Wälzkolbenpumpe (Fördermenge 150 l/s) kontinuierlich umgewälzt und dabei über einen Jodabscheider geleitet. Die Umwälzgeschwindigkeit ist so hoch, daß die Strömung extrem turbulent ist. Dadurch ist gewährleistet, daß das Medium optisch homogen erscheint.

Für die magnetische Abstimmung ist ein supraleitender Solenoid mit horizontaler Bohrung vorgesehen. Für das longitudinale Magnetfeld fordern die optischen Auswahlregeln zirkularpolarisiertes Licht [2]. Dabei bestimmt der Drehsinn des zirkularpolarisierten Lichts, ob die Abstimmung zu größeren oder kleineren Wellenlängen erfolgt.

Abb. 1 zeigt die für den Laser gewählte Resonatoranordnung. Sie stellt einen instabilen Ringresonator dar, der zwei- für den Betrieb im Magnetfeld entscheidende - Vorteile besitzt. Aufgrund der Aufweitung durch das Teleskop kann über den gesamten, relativ großen Querschnitt des aktiven Volumen die gespeicherte Energie in einem nahezu beugungsbegrenzten Strahl extrahiert werden. Außerdem wird durch die Aufweitung eine Umlaufrichtung im Ringresonator bevorzugt. Das Verhältnis der in

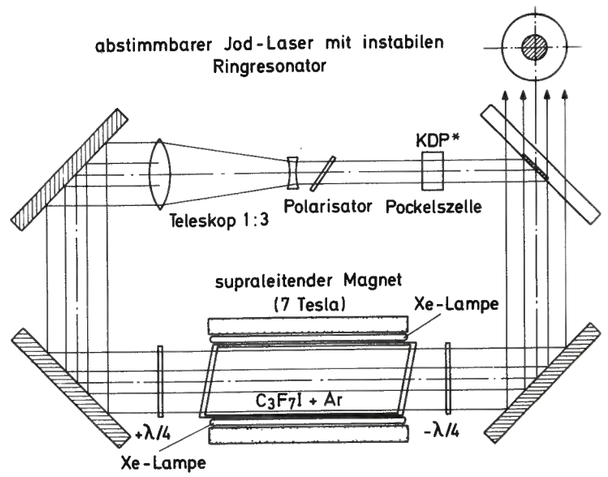

Abb. 1: Abstimmbarer Jod-Laser mit instabilem Ringresonator

Vorwärts- und Rückwärtsrichtung emittierten Energien beträgt 10 : 1. Somit ist gewährleistet, daß je nach Anordnung der λ/4 Platten innerhalb des Magnetfeldes links- oder rechts- drehendes Licht überwiegt.

Mit dieser Anordnung wurden Pulsenergien von 2,5 J bei τ = 50 ns Dauer erzielt. Dabei wurden im beugungsbegrenzten Teil des Strahls 30 MW - Leistung ermittelt. Die Pulsfolgefrequenz war durch das Netzgerät begrenzt. Mit einem leistungsfähigeren Netzgerät und wassergekühlten Blitzlampen sollte sie sich auf über 10 Hz steigern lassen.

4. Multireflexzelle

Wie bereits in Abschnitt 2 ausgeführt, kann die Ramanverstärkung wesentlich erhöht werden, wenn das Licht in einer wiederholt refokussierenden optischen Anordnung geführt wird. Herriot, Kogelnik und Kampfner [6] realisierten eine solche Anordnung mit Hilfe zweier sphärischer Spiegel.

Das Prinzip der Anordnung ist in Abb. 2 gezeigt. Die beiden sphärischen Spiegel bilden einen stabilen Resonator, der nahezu dem konzentrischen Grenzfall entspricht. Mit Hilfe einer entsprechend angepaßten Optik wird der Pumpstrahl durch eine kleine Öffnung im Spiegel 1 so eingekoppelt, daß er im Zentrum fokussiert wird. Nach dem Durchgang durch den Fokus wird der Strahl vom Spiegel 2 reflektiert und beim 2. Durchgang durch die Anordnung wieder fokussiert. Auf dem Spiegel 1 trifft der Strahl etwas versetzt gegenüber der Eintrittsöffnung auf, so daß sich der Vorgang der Reflexion und Fokussierung mehrfach wiederholt, bis schließlich durch eine geeignet gewählte Öffnung im Spiegel 2 das Licht ausgekoppelt wird.

Durch diese wiederholte Fokussierung erhöht sich die Ramanverstärkung α_n gegenüber der einfachen Fokussierung gemäß der folgenden Beziehung [5].

$$\alpha_n = \alpha \left(\frac{1 - R^n}{1 - R} \right) - n \ln R \qquad (4)$$

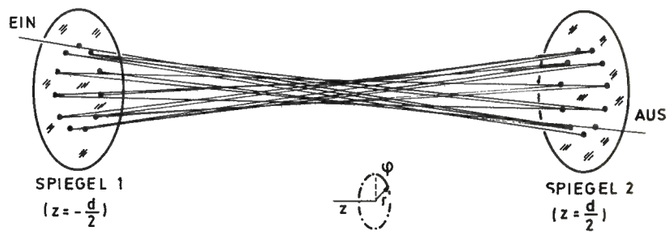

Abb. 2: Prinzip der Multireflexzelle

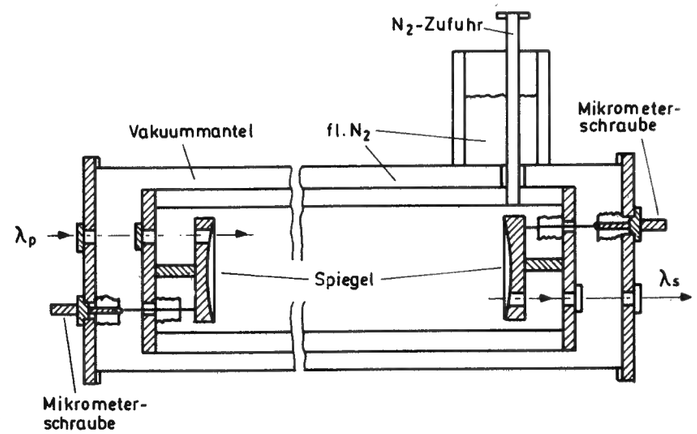

Abb. 3: Aufbau der Multireflexzelle

Hierbei bedeutet n die Zahl der Durchgänge und R das Reflexionsvermögen der Spiegel. Für Spiegel mit dem Reflexionsvermögen R = 98 % erhält man somit für 25, 50 und 100 Durchgänge folgende Gesamtverstärkung:

$$\alpha_{25} \cong 20\ \alpha$$
$$\alpha_{50} \cong 30\ \alpha$$
$$\alpha_{100} \cong 40\ \alpha$$

Bild 3 zeigt schematisch die technische Ausführung der Multireflexzelle. Im wesentlichen besteht die Zelle aus einem doppelwandigen Stickstoffbehälter, der mit einer Vakuumisolierung versehen ist. In den äußeren Bereich des Tanks wird flüssiger Stickstoff unter Normaldruck eingefüllt. In den inneren Bereich wird speziell gereinigter gasförmiger Stickstoff unter erhöhtem Druck einkondensiert. Dadurch erhält man ein sehr homogenes Ramanmedium, das frei von sichtbaren Partikeln und Gasblasen ist. Der Durchmesser der Kupferspiegel beträgt d = 12,5 cm, ihr Krümmungsradius R = 50 cm. Sowohl Abstand als auch Orientierung der Spiegel können über Mikrometerschrauben extern justiert werden. Mit dieser Anordnung lassen sich bis zu 50 Durchgänge realisieren.

5. Experimentelle Untersuchung der stimulierten Ramanstreuung

Mit dem beschriebenen Laser (Abschnitt 3) und der Multireflexzelle (Abschnitt 4) wurde die Ramanstreuung in flüssigem Stickstoff untersucht. In den ersten Experimenten war die Pumpstrahlung nur einfach fokussiert. Nach den Abschätzungen in Abschnitt 2 war demnach mit dem gegebenen Laser keine 16 µm-Strahlung zu erwarten. Allerdings sollten die 1. und 2. Stokeskomponente (λ = 1,9 µm und λ = 3,4 µm) mit hohem Wirkungsgrad erzeugt werden.

Abb. 4 zeigt schematisch die Versuchsanordnung. Mit den Kalorimetern 1, 2 und 3 können die Energien des Pumplichts, des durch die Zelle transmittierten und des rückgestreuten Lichts gemessen werden.

In Germanium wird die 1,3 µm-Strahlung absorbiert. Die längerwelligen Stokeskomponenten werden dagegen nicht geschwächt. Mit Hilfe von Germaniumplatten vor den Detektoren 2 und 3 kann somit die Energie des Stokeslichts in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung bestimmt werden. Die Messungen ergaben einen relativ geringen Quantenwirkungsgrad (maximal 10 % bei 20 MW - Pumpleistung) für die Konversion in Stokeslicht in der Vorwärtsrichtung. Das rückgestreute Licht war überraschend stark. Es erreichte bis zu 25 % der Pumpenergie. Die Messung mit Hilfe der Germaniumplatte zeigte jedoch, daß es sich dabei nicht um Stokeslicht handelt. Vielmehr konnte mit Hilfe eines Fabry-Perot-Interferometers nachgewiesen werden, daß die Frequenz des rückgestreuten Lichts gegenüber der Jodlaserstrahlung um den für die Brillouin-Streuung charakteristischen Betrag verschoben ist.

Versuche durch Mehrfachfokussierung die Energie der Stokeskomponenten zu erhöhen und gegebenenfalls 16 µm-Strahlung zu erzeugen, zeigten nicht den erhofften Erfolg. Vielmehr nahm mit wachsender Zahl der Durchgänge durch die Multireflexzelle das transmittierte Licht sehr stark ab, ohne daß das Stokeslicht entsprechend zunahm. Beispielsweise war bei 25 Durchgängen keine Transmission für die Hochleistungs-Laserstrahlung nachzuweisen, wenn die Zelle mit Stickstoff gefüllt war. Bei leerer Zelle dagegen entsprach die Transmission ihrem theoretischem Wert. Bei reduzierter Laserleistung wurde ebenfalls die erwartete Transmission beobachtet. Nur bei hohen Laserleistungen nahm sie ab, ohne

daß damit jedoch eine wesentliche Zunahme des rückgestreuten Lichts verbunden war. Das Licht wurde somit bei hohen Leistungen innerhalb der Zelle vernichtet.

Aufgrund von spektroskopischen Untersuchungen kann man Mehrphotonenabsorption als Ursache für diese Erscheinung ausschließen. Eine Erklärung stellt jedoch die Selbstfokussierung im flüssigen Stickstoff dar. Bei korrekter Justierung der Multireflexzelle bildet sich ein Modenbild aus, bei dem der einfallende Gaußsche Strahl zunächst fokussiert und dann durch die sphärischen Spiegel jeweils etwas räumlich versetzt reproduziert wird. Hierbei treten praktisch keine Beugungsverluste an den Spiegeln und Ein- und Austrittsöffnungen auf. Bei Selbstfokussierung ändert sich die Lage der Brennpunkte bei den einzelnen Durchgängen in Abhängigkeit von der Laserleistung. Entsprechend ändert sich das Modenbild, wodurch sehr große Beugungsverluste auftreten können. Dabei wird man einen um so größeren Einfluß erwarten, je weiter die Strahlung im flüssigen Stickstoff geführt wird.

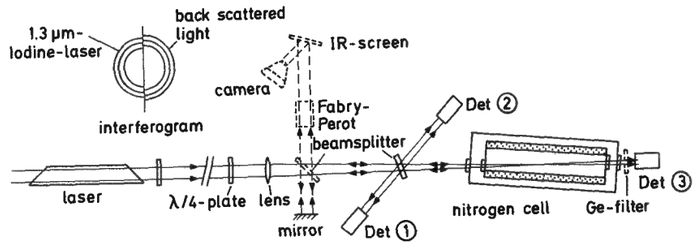

Abb. 4: Versuchsaufbau

Unter Bedingungen, bei denen Ramankonversion nachgewiesen werden konnte, wurde ein weiterer Effekt beobachtet, der bei der Anwendung des Systems als 16 µm-Strahlungsquelle störend ist. Um die optische Qualität des flüssigen Stickstoffs zu überprüfen, wurde ein sichtbarer He-Ne-Laserstrahl kollinear zum Jodlaserstrahl in die Zelle eingespiegelt. Hinter der Zelle wurde der Strahl aufgeweitet und auf einem Schirm beobachtet. Unmittelbar nach dem Jodlaserpuls beginnt der Leuchtfleck sich auf dem Schirm auszudehnen. Dabei entwickelt sich im Zentrum der für "thermal blooming" charakteristische dunkle Fleck [7]. Erst nach einigen Sekunden hat sich das optische Medium soweit homogenisiert, daß wieder ein ungestörter Leuchtfleck auf dem Schirm erscheint.

Offensichtlich wird durch die mit der stimulierten Raman-Streuung verbundene Schwingungsanregung der Moleküle eine lokale Erwärmung des Mediums bewirkt. Diese Temperaturerhöhung führt zu einer Abnahme der Dichte und damit auch des Brechungsindexes im Strahl. Das Medium wirkt dann wie eine Zerstreuungslinse. Die für die Dämpfung der Dichtewelle charakteristische Zeit wird wesentlich durch die Geometrie der Ramanzelle bestimmt. Für ein Ramansystem mit hoher Repetitionsrate (f > 1 Hz) scheint ein Umwälzsystem für flüssigen Stickstoff unvermeidlich zu sein.

Die wesentlichen Ergebnisse der Streuungsexperimente lassen sich wie folgt zusammenfassen:

1. Die mit dem Jodlaser (P = 30 MW, τ = 50 ns) in flüssigem Stickstoff erzielte Ramankonversion ist wesentlich geringer als nach den Abschätzungen zu erwarten wäre.

2. Es wurde stimulierte Brillouin-Streuung in Konkurrenz zur Raman-Streuung beobachtet.

3. Bei den relevanten Laserleistungen tritt Selbstfokussierung auf.

4. Mit der stimulierten Raman-Streuung ist ausgeprägtes "thermal blooming" verbunden.

6. Diskussion der nichtlinearen Effekte in flüssigem Stickstoff

a) Stimulierte Brillouin-Streuung

Bei der Brillouin-Streuung erfolgt die Streuung des Lichts an Schallwellen. Dabei wird die Frequenz des gestreuten Lichts um den Betrag

$$\nu_{Br} = \frac{2vn}{c}\,\nu_p \sin\frac{\Theta}{2} \qquad (6)$$

verschoben. Hierbei bedeuten:

v = Schallgeschwindigkeit
n = Brechungsindex
c = Lichtgeschwindigkeit
ν_p = Frequenz der Pumpwelle
Θ = Streuwinkel

Erfolgt die Streuung stimuliert, so breitet sich das Streulicht in Richtung der höchsten Pumpintensität aus; d.h. die gestreute Welle läuft der Pumpwelle entgegen. In diesem Fall beträgt die Frequenzverschiebung:

$$\nu_{Br} = \frac{2vn}{c}\,\nu_p \qquad (7)$$

Aus den bekannten Werten für die Schallgeschwindigkeit und den Brechungsindex in flüssigem Stickstoff erhält man für die Verschiebung von Jodlaserlicht:

$$\nu_{Br} = 1{,}7 \text{ GHz}.$$

Die aus dem Ringsystem der Fabry-Perot-Aufnahme (Abschnitt 5) ermittelte Frequenzverschiebung für das rückgestreute Licht stimmt sehr gut mit diesem Wert überein.

Für die Verstärkung des stimuliert gestreuten Brillouin-Lichts gilt das zur Raman-Streuung analoge Gesetz (Abschnitt 2).

$$J_{Br}(l) = J_{Br}(0)\, e^{J_p \cdot l \cdot g_{Br}} \qquad (8)$$

Der Verstärkungsfaktor g_{Br} läßt sich aus bekannten Materialkonstanten berechnen.

$$g_{Br} = \frac{2\pi^2 \gamma^2 \tau_{Br}}{c\, n^3\, \rho\, v\, \lambda_p^2} \qquad (9)$$

Hierbei bedeuten:

γ = optoelastische Konstante
τ_{Br} = Phononenlebensdauer
ρ = Dichte

Drückt man die Phononenlebensdauer durch die lineare Dämpfungskonstante α für Schallwellen aus, so gilt:

$$\tau_{Br} = (\alpha \cdot v)^{-1} \qquad (10)$$

Die Dämpfung der Schallwellen in flüssigem Stickstoff wird gut durch das Modell einer klassischen Flüssigkeit beschrieben [8]. Demzufolge ist die Dämpfungskonstante α proportional zum Quadrat der Schallfrequenz.

$$\alpha = K \nu_{Br}^2 \qquad (11)$$

Mit (7), (10) und (11) folgt für (9)

$$g_{Br} = \frac{1}{K} \cdot \frac{\pi^2 \gamma^2}{2 c\, n^3 v^4} \qquad (12)$$

Somit ist, im Gegensatz zur Ramanstreuung, die Verstärkung bei der Brillouin-Streuung unabhängig von der Wellenlänge des Pumplichts. Mit den aus der Literatur bekannten Materialkonstanten erhält man den Wert:

$$g_{Br} = 5{,}3 \times 10^{-2} \ \frac{cm}{MW}$$

Die Beziehungen (2) und (12) gelten für den stationären Zustand; d.h. die Dauer des Pumppulses ist groß gegenüber den relevanten Relaxationszeiten. In Abb. 5 sind die stationären Fälle für Raman- und Brillouinstreuung gestrichelt eingezeichnet.

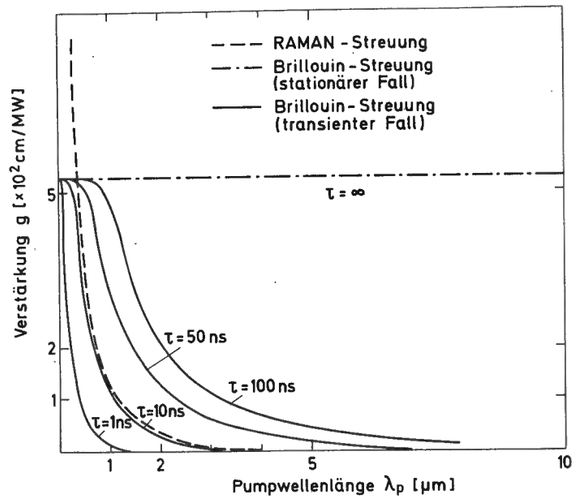

Abb. 5: Verstärkungsfaktor für stimulierte Streuung in Abhängigkeit von der Pumpwellenlänge

Die für die Ramanstreuung relevanten Relaxationszeiten liegen im ps-Bereich. Für die im Experiment benutzten Pumppulse (τ = 50 ns) kann daher die Ramanstreuung stationär behandelt werden. Bei der Brillouin-Streuung ist die relevante Relaxationszeit die Phononenlebensdauer τ_{Br}. Wie bereits ausgeführt, ist sie von der Wellenlänge abhängig und liegt im Bereich der Pulsdauer. Daher muß das transiente Verhalten der Verstärkung berücksichtigt werden.

Kaiser und Pohl (9) haben den transienten Verstärkungsfaktor theoretisch behandelt. Für einen analytisch darstellbaren Pumppuls mit der Dauer τ_p erhielten sie den Verstärkungsfaktor in Abhängigkeit von der Relaxationszeit τ_{Br}. Die Ergebnisse dieser Rechnung sind in Abb. 5 für verschiedene Pulsdauern τ_p wiedergegeben. Dabei ist berücksichtigt, daß die Relaxationszeit durch die Pumpwellenlänge bestimmt ist.

Wie aus der Abb. 5 ersichtlich, sollte im stationären Fall ($\tau_p = \infty$) für Wellenlängen $\lambda > 0{,}5$ µm die Brillouinstreuung überwiegen. Bei kürzeren Pumppulsen wird die Verstärkung für Brillouin-Licht zwar reduziert, jedoch sollte für Pulsdauern $\tau_p > 10$ ns und Wellenlängen $\lambda > 0{,}5$ µm weiterhin die Brillouin-Streuung dominieren. Bei Pulsdauern $\tau_p < 10$ ns erwartet man dagegen Raman - Streuung.

Unsere mit verschiedenen Lasern durchgeführten Messungen bestätigen den in Abb. 5 dargestellten Verlauf. Mit Jodlaserpulsen (λ = 1,3 µm) von 50 ns - Dauer wurde sehr starke Brillouin-Streuung erzielt. Dagegen konnte bei Pulsdauern von τ_p = 1 - 2 ns (Jodlasersystem "Plasterix") keinerlei Brillouin - Streuung nachgewiesen werden. Eine weitere Bestätigung konnte mit Hilfe eines Nd-YAG-Lasers (τ_p = 8 ns) gewonnen werden. Bei der Grundwelle (λ = 1,06 µm) des Lasers wurde sowohl Brillouin als auch Ramanlicht beobachtet, während bei der 1. Harmonischen (λ = 0,53 µm) nur Ramanlicht festgestellt werden konnte.

Die in der Literatur beschriebenen Experimente stehen dagegen vielfach im Gegensatz zu den in Abb. 5 dargestellten Verhältnissen. So wurden beispielsweise mit einem Ho-YLF (λ = 2,05 µm, τ_p = 50 ns) bis zu 70 % Ramankonversion erreicht, ohne daß dabei Brillouinstreuung beobachtet wurde [3]. Nach der Abb. 5 würde man jedoch eine dreifach höhere Verstärkung für Brillouinlicht erwarten.

Möglicherweise ist die Diskrepanz auf die Emissionscharakteristik des Pumplasers zurückzuführen. Festkörperlaser wie der Ho-YLF emittieren im allgemeinen nicht in einem zeitlich glatt verlaufenden Puls, sondern in einer Vielzahl extrem kurzer statistisch schwankender Intensitätsspitzen. Der Berechnung der transienten Brillouin-Verstärkung ist jedoch ein glatter Pumppuls zugrundegelegt.

Ein weiterer Effekt, der bei diesem Experiment die Raman-Streuung begünstigt, ist durch die Bandbreite des Lasers bedingt. Die in Abb. 5 dargestellten Verhältnisse gelten für streng monochromatische Pumpstrahlung. Dabei ist die Verstärkung unabhängig vom Streuwinkel. Berücksichtigt man die Bandbreite des Pumplasers so zeigt sich, daß aufgrund der Dispersion im Medium Streuung in Vorwärtsrichtung gegenüber der Rückwärtsrichtung bevorzugt wird [10] [11].

Da die Brillouin - Streuung nur in Rückwärtsrichtung beobachtet werden kann, wird sie mit wachsender Bandbreite wesentlich stärker reduziert, als die in Vorwärtsrichtung beobachtete Raman - Streuung. Die Bandbreite des Ho-YLF wurde in [3] nicht explizit angegeben. Sie dürfte jedoch $\Delta\nu$ = 0,5 - 1 cm^{-1} betragen und ist somit wesentlich größer als beim Jodlaser ($\Delta\nu$ < 0,03 cm^{-1}).

b) Selbstfokussierung

Der Brechungsindex einer Substanz zeigt bei hohen Intensitäten einen nichtlinearen Anteil n_2, der zu charakteristischen Veränderungen in der Ausbreitung von optischen Strahlen führt. Insbesondere schnüren sich die Strahlenbündel ab einer bestimmten Schwelleistung P_c ein, bis sie schließlich zu einem Punkt fokussiert werden. Für einen konvergenten Gauß'schen Strahl, wie er in der Multireflexzelle auftritt, ergibt sich diese Schwelleistung unabhängig vom Strahldurchmesser und dem Konvergenzwinkel zu [12]

$$P_c = \frac{\pi \varepsilon_0 c^3}{n_2 \omega^2} \qquad (13)$$

Diese kritische Leistung wurde für Rubinlaserstrahlung in flüssigem Stickstoff zu P_c = 0,55 MW berechnet. Gemäß der Beziehung (13) wächst

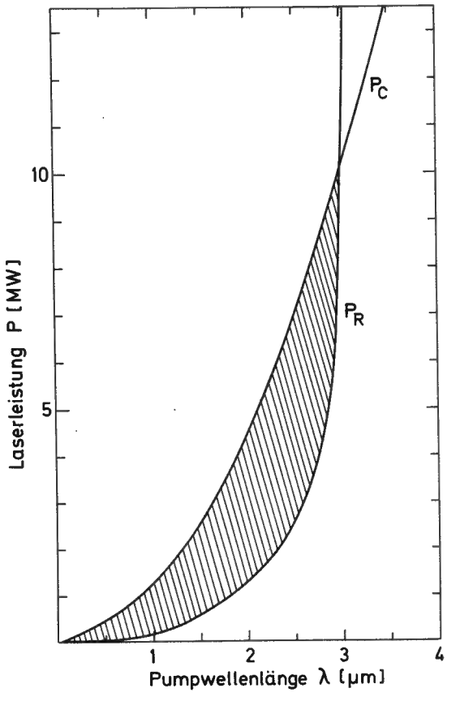

Abb. 6: Kritische Leistung für stimulierte Ramanstreuung P_R und Selbstfokussierung P_c in Abhängigkeit von der Wellenlänge.

die Schwelleistung mit λ^2. In Fig. (6) ist dieser Verlauf dargestellt. Allerdings ist der Kurvenverlauf nur in etwa quantitativ, da der experimentelle Wert für den nichtlinearen Brechungsindex n_2 mit einer relativ großen Unsicherheit behaftet ist. In Experimenten mit Rubinlaserstrahlung konnte bei P = 1 MW keine [4]bei P = 12,5 MW jedoch starke Selbstfokussierung [13] nachgewiesen werden. Eigene Experimente mit dem Jodlasersystem "Plasterix" (τ = 1 - 2 ns) zeigten, daß die kritische Leistung bei λ = 1,3 µm unterhalb 5 MW liegt.

Ebenfalls in Fig. 6 ist die Schwelleistung P_R für die stimulierte Raman-Streuung eingezeichnet. Der Verlauf gibt die Laserleistung wieder, die entsprechend Abschnitt 2 in einem fokussierten Pumpstrahl erforderlich ist, damit die Ramanverstärkung den Wert e^{30} erreicht.

Die in der Darstellung schraffierte Fläche stellt somit den Bereich dar, in dem bei einfacher Fokussierung stimulierte Raman-Streuung erwartet werden kann, ohne daß Selbstfokussierung auftritt.

7. Skalierungsmöglichkeit der Multireflexanordnung

Durch die stimulierte Brillouin-Streuung und Selbstfokussierung sind der Pumpstrahlung Begrenzungen auferlegt, die eine Skalierung zu großen Energien verhindern. Wie aus den Abbildungen 5 und 6 ersichtlich, muß die Pulsdauer τ < 10 ns und die Leistung P < 5 MW sein, damit diese störenden Effekte nicht auftreten. Als obere Grenze für die Pumpenergie ergibt sich hieraus E_{max} = 50 mJ. Entsprechend den Abschätzungen aus Abschnitt 2 kann man dann günstigstenfalls 500 µJ für die 16 µm-Strahlung erwarten.

Für die geplanten Experimente am UF_6-Gas stellen 500 µJ bereits die Mindestforderung dar. Eine Weiterverfolgung der Multireflexanordnung erscheint daher nicht sinnvoll, zumal auch die Verkürzung der Pulsdauer beim Jodlaser noch einen erheblichen zusätzlichen Aufwand erfordern würde.

8. Ramanresonator und dessen Skalierungsmöglichkeit

Die bisher beschriebenen Experimente wurden so durchgeführt, daß die Raman-Strahlung superstrahlend erzeugt wird; d.h. daß keine Rückkopplung durch eine Resonatorstruktur vorhanden ist. Benutzt man jedoch einen Resonator, so kann durch geeignete Wahl der Dimensionen erreicht werden, daß starke Rückkopplung für das Ramanlicht und hohe Verluste für das Brillouinlicht auftreten. Somit kann auch bei langen Pumppulsen, trotz des geringeren Verstärkungsfaktors, die Ramanstreuung gegenüber der Brillouinstreuung begünstigt werden.

Betrachtet man die transversale Grundmode, so kann diese in einem Resonator nur anschwingen, wenn der Frequenzabstand der longitudinalen Moden $\Delta\nu_M = \frac{c}{2nL}$ kleiner als die Breite des Verstärkungsprofils $\Delta\nu_g$ ist. Daraus folgt für die Resonatorlänge L:

$$L \geq \frac{c}{2n\,\Delta\nu_g}$$

Die Linienbreite des Ramanübergangs beträgt in flüssigem Stickstoff [4]

$$\Delta\nu_{Ra} = 0{,}067\ cm^{-1}$$

Die Breite der Brillouinlinie läßt sich aus der Phononenlebensdauer zu

$$\Delta\nu_{Br} = 3 \times 10^{-4}\ cm^{-1}$$

ermitteln. Daraus folgt für die Länge eines Raman- bzw. Brillouin-Resonators:

$$L_{Ra} > 6{,}22\ cm$$

$$L_{Br} > 1388\ cm$$

Wählt man die Resonatorlänge L entsprechend

$$L_{Ra} < L < L_{Br}$$

so wird in dem Resonator nur Ramanlicht anschwingen.

Die Verstärkung ist nur während der Dauer des Pumppulses möglich. Daher sollte der Resonator innerhalb dieser Grenzen möglichst kurz sein, damit die für die stimulierte Emission erforderliche Verstärkung schnell erreicht wird.

Abb. 7 zeigt schematisch den Aufbau eines Ramanresonators. Der flüssige Stickstoff ist unter Überdruck in einem vakuumisolierten Kryostaten

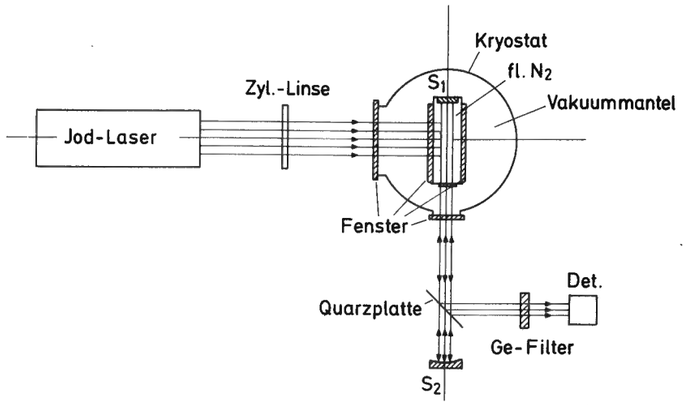

Abb. 7: Ramanresonator: Schema des Aufbaus

enthalten. Die Goldspiegel S_1 und S_2 bilden den Resonator, wobei sich S_1 im flüssigen Stickstoff und S_2 außerhalb des Kryostaten befinden. Die Strahlung wird über eine Quarzplatte ausgekoppelt, die nahezu unter dem Brewsterwinkel angeordnet ist. Die optische Anregung erfolgt quer zur Resonatorachse. Hierzu wird die Strahlung des Jodlasers über eine Zylinderlinse zu einer Brennlinie im flüssigen Stickstoff fokussiert. Die so erzielte Anregungszone von ca. 3 cm Länge umfaßt damit ein Zehntel der Resonatorlänge.

Bei 3 J-Pumpenergie (τ = 50 ns) konnte Stokeslicht mit dem pyroelektrischen Detektor nachgewiesen werden. Aufgrund der Transmission durch die Germaniumplatte war eine eindeutige Identifizierung als Ramanlicht möglich. Allerdings betrug die Energie nur etwa 100 µJ, wobei wahrscheinlich nur die 1. Stokeskomponente erzeugt wurde.

Zweifellos läßt sich durch Optimierung der Anordnung (kürzerer Resonator, geringere Verluste) die Konversion in Ramanlicht verbessern. Die folgende Abschätzung zeigt jedoch, daß wegen der Selbstfokussierung trotzdem keine effiziente 16 µm-Erzeugung erwartet werden kann.

Die Verstärkung in einem Ramanresonator läßt sich auf den Fall der in Abschnitt 4 behandelten Multireflexzelle zurückführen. Nach n Durchgängen ergibt sich die Gesamtverstärkung nach Gleichung (4):

$$\alpha_n = \alpha \left(\frac{1 - R^n}{1 - R} \right) + n \ln R$$

Hierbei ist R der Rückkopplungsgrad. Da ein Teil der erzeugten Strahlung ausgekoppelt werden soll und außerdem immer unerwünschte Verluste auftreten, dürfte der Rückkopplungsgrad in der Praxis maximal 95 % betragen. Gemäß Gl. 4 folgt daraus $\alpha_n < 20\ \alpha$. Wenn man wieder fordert, daß zum Einsetzen der stimulierten Ramanstreuung die Gesamtverstärkung $\alpha_n > 30$ sein muß, so ergibt sich nach Abschnitt 2 für die zur Erzeugung von 16 µm-Strahlung erforderliche Pumpstrahlung (λ = 3,4 µm)

$$P_{S_2} > 2{,}5\ MW$$

Diese Pumpleistung muß ihrerseits bereits durch stimulierte Ramanstreuung erzeugt werden. Hierzu sind jedoch Jodlaser-Leistungen erforderlich, die weit oberhalb der kritischen Schwelle für Selbstfokussierung liegen. Zusammanfassend kann man feststellen, daß mit einem Ramanresonator die stimulierte Brillouin-Streuung in flüssigem Stickstoff auch bei langen Pumppulsen unterdrückt werden kann. Zur Erzeugung von Strahlung im mittleren Infrarot (λ > 3 µm) sind jedoch wegen des kleinen Raman-Verstärkungsfaktors auch im Resonator so hohe Leistungen erforderlich, daß Selbstfokussierung unvermeidlich ist.

Literatur:

1. Fill E.E., Volk R., Jetter H.
   Proc. Int. Quantum Conf. Atlanta 1978 P 6:
   J. Opt. Soc. Am. 68, 1624

2. Fill E.E., Thieme W.H., Volk R.
   J. Phys. D: Appl. Phys. Vol. 12, (1979) L 41

3. Marquardt C.L., Scheider I., Eckardt R.C., Esterowitz L.
   Cleos 1981 Washington Paper WA 3

4. Grun J.P., Mc Quillan A.K., Stoicheff B.P.
   Phys. Rev. Vo. 180 (Apr. 1969) 61

5. Trutna W.R., Byer R.L., Appl. Opt. Vol. 19 (1980) 301

6. Herriott O., Kogelnik H., Kompfner R., Appl. Opt. Vol. 3 (1964) 523

7. Wild E., Maier M., J. Appl. Phys. 51 (1980) 3078

8. Herzfeld K.F., Litovitz T.A.
   Absorption and Dispersion of Ultrasonic Waves,
   Academic Press New York (1959)

9. Pohl O., Kaiser W., Phys. Rev. Lett. 20 (19. Feb. 1968) 368

10. Trutna W.R., Park Y.K., Byer R.L.
    IEEE J. Quant. Electr. 15 (1979) 648

11. Penzkofer A., Lauberau A., Kaiser W., Progr. Quant. Electr. 6 (1979) 55

12 Yariv A., Quantum Electronics, John Wiley & Sons Inc. (1967)

13. Kudryavtseva A.D., Sokolovskaya A.I., Sushchinskij M.M.
    Sov. Phys. JETP 32 (1971) 849