

Stimulierte Stokes- und anti-Stokes-Raman-Streuung mit Bessel-Bündeln in Aceton und Wasserstoff

**Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat)
der
Fakultät Physik
der Universität Regensburg**

**vorgelegt von
Thomas Manz
aus Weiden / Opf.
2005**

Promotionsgesuch eingereicht am: 18.05.2005

Die Arbeit wurde angeleitet von: Prof. Dr. Max Maier

Prüfungsausschuss: Vorsitzender: Prof. Dr. Andreas Schäfer

1. Gutachter: Prof. Dr. Max Maier

2. Gutachter: Prof. Dr. Josef Zweck

weiterer Prüfer: Prof. Dr. Werner Wegscheider

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	3
2 Theorie.....	7
2.1 Bessel-Bündel.....	7
2.1.1 Eigenschaften von Bessel-Bündeln	8
2.1.2 Erzeugung von Bessel-Bündeln.....	13
2.2 Raman-Streuung	18
2.3 Wellenvektoranpassung und Vier-Photonen-Prozess.....	22
3 Versuchsaufbau	29
4 Stimulierte Raman-Streuung in Aceton	35
4.1 1. Stokes-Streuung.....	36
4.2 1. anti-Stokes-Streuung	37
4.2.1 Erzeugung der 1. anti-Stokes durch die 1. Stokes-M ₀₀ -Mode.....	38
4.2.2 Erzeugung der 1. anti-Stokes durch den 1. Stokes-Fleck	40
4.2.3 Messungen	43
4.3 2. anti-Stokes-Streuung	45
4.3.1 Polarisation proportional zu $E_{A1}E_P E_{SI}^*$	47
4.3.2 Polarisation proportional zu $E_{A1}^2 E_P^*$	50
4.3.3 Polarisation proportional zu $E_P^2 E_{S2}^*$	51
4.3.4 Messungen	51
4.4 2. Stokes-Streuung.....	55
4.4.1 Polarisation proportional zu $E_P E_{SI} E_{A1}^*$	56
4.4.2 Polarisation proportional zu $E_{SI}^2 E_P^*$	57
4.4.3 Messungen	58
4.5 3. Stokes-Streuung.....	60
4.6 Raman-Streuung mit ns-Pulsen	62
4.7 Zusammenfassung Aceton.....	65

5	Stimulierte Raman-Streuung in Wasserstoff.....	69
5.1	Stokes-Streuung	69
5.2	Anti-Stokes-Streuung	76
5.3	Große Pumpkonuswinkel	86
5.4	Zusammenfassung Wasserstoff.....	90
6	Vergleich von Aceton und Wasserstoff	93
7	Zusammenfassung.....	95

Anhang

A	Optische Daten von Aceton	99
B	Optische Daten von Wasserstoff	103

1 Einleitung

Neueste Erkenntnisse zeigen, dass der schon 1928 entdeckte Raman-Effekt in Zukunft die Grundlage für noch schnellere Computerchips sein könnte. Da es immer größere Probleme gibt, die Taktraten zu steigern, versucht die Firma Intel einen neuen Weg zu gehen, indem auf dem Chip optische Signale zur Datenübermittlung verwendet werden. Allerdings ist es kaum möglich, das in der Industrie beliebte, weil günstige und gut prozessierbare, monokristalline Silizium zur Emission von Licht anzuregen, da es ein indirekter Halbleiter ist. Hier setzt die stimulierte Raman-Streuung an: durch die Einstrahlung von Pumplicht kann in Silizium-Wellenleitern der Raman-Effekt dazu verwendet werden, vorhandene Signale zu verstärken oder sogar einen Laserstrahl zu erzeugen. Der entscheidende Durchbruch gelang im Frühjahr 2005 [Int05], indem der erste Silizium-Raman-Laser im Dauerstrichbetrieb realisiert werden konnte, während bisher nur ein gepulster Betrieb möglich war.

Die stimulierte Raman-Streuung selbst ist ein nichtlinearer optischer Effekt, bei dem ein Teil des Lichts, das in das nichtlineare Medium eingestrahlt wird, rot- (Stokes-Licht) bzw. blauverschoben (anti-Stokes-Licht) gestreut wird. Als nichtlineare Medien zur Untersuchung der stimulierten Raman-Streuung wurden in der Literatur bisher u. a. Aceton, Methanol und Ethanol [Gol95] und vor allem Wasserstoff [Nig98, Sch03] verwendet, da hier kaum konkurrierende nichtlineare Effekte wie z. B. die stimulierte Brillouin-Streuung und Selbstfokussierung auftreten. Für die stimulierte Raman-Streuung ist es nötig, möglichst hohe Intensitäten des eingestrahlten „Pump“-Lichts zu erreichen.

Während die Fokussierung eines Lichtbündels mit Gauß-förmiger Intensitätsverteilung (Gauß-Bündel) in das nichtlineare Medium nur eine sehr kurze Wechselwirkungslänge erlaubt, haben hier Bessel-Bündel nullter Ordnung einen großen Vorteil. Sie sind theoretisch ausbreitungsvariante Bündel mit einem intensiven und sehr engen zentralen Maximum, deren Feldverteilung proportional zur Bessel-Funktion J_0 ist. In der Praxis bildet dieses Zentrum einen so genannten Linienfokus, dessen Länge von wenigen Zentimetern bis

zu einigen Metern variiert werden kann. Das gestreute Licht wird in einem solchen Pumpstrahl durch die Raman-Verstärkung geführt, so dass verschiedene Moden auftreten [Nig98, Sch03]. Es kann gezeigt werden, dass formal diese Verstärkungsführung zur Führung von Licht in einer Glasfaser äquivalent ist.

Eine weitere Eigenschaft von Bessel-Bündeln lassen sie zu einem hervorragenden Werkzeug zur Untersuchung der stimulierten Raman-Streuung werden. Im Gegensatz zum Fokus eines Gauß-Bündels, wo die Verteilung der Wellenvektoren kontinuierlich ist, befinden sich bei einem Bessel-Bündel alle Vektoren auf einem scharfen Konus, dessen Kegelwinkel beliebig variiert werden kann. Wie aus der Literatur [Sch03] bekannt ist, spielt bei der Generierung der 1. anti-Stokes-Streuung die Geometrie der Wellenvektoren eine entscheidende Rolle, da sowohl die Energie- als auch die Impulserhaltung bei Raman-Streuprozessen erfüllt sein muss. Bei fokussierten Gauß-Bündeln findet ein nichtlinearer Prozess häufig phasenangepasste Bedingungen vor, da die Verteilung der \vec{k} -Vektoren breit ist. Durch Bessel-Bündel besteht nun die Möglichkeit, die Anzahl der möglichen Wellenvektorkombinationen für nichtlineare Prozesse stark einzuschränken und die zugrunde liegenden Erzeugungsprozesse zu klären.

In Wasserstoffgas wurde die stimulierte Raman-Streuung am Lehrstuhl bereits intensiv untersucht. Vor allem die Struktur der verstärkungsgeführten 1. Stokes-Mode wurde unter verschiedensten experimentellen Bedingungen (Konuswinkel des Pumpbündels, Gasdruck) untersucht und mit aufwändigen Simulationsrechnungen verglichen, die eine gute Übereinstimmung lieferten. Auch die 1. anti-Stokes-Streuung wurde schon intensiver beobachtet. Es zeigte sich, dass unter bestimmten Umständen komplizierte Fernfeldmuster entstehen, die durch die Analyse der transversalen und longitudinalen Wellenvektorgeometrie erklärt werden konnten.

Die konusförmige stimulierte anti-Stokes-Streuung in flüssigem Aceton mit einem Bessel-Bündel wurde ursprünglich in [Gol95] entdeckt. Eine ausführliche Untersuchung der Stokes- und anti-Stokes-Streuung erster und zweiter Ordnung wurde in [Gad99, Vai00] durchgeführt. Die Generation wurde jeweils mit einem Vier-Photonen-Prozess erklärt, wobei angenommen wurde, dass alle \vec{k} -Vektoren in einer Ebene liegen.

Das Hauptziel dieser Arbeit war es, die stimulierte Raman-Streuung in flüssigem Aceton genau zu untersuchen. Zum einen gab es aus den Beobachtungen zur Raman-Streuung in Wasserstoffgas den Hinweis darauf, dass auch Wellenvektorgeometrien eine Rolle spielen, bei denen die Vektoren nicht in einer Ebene liegen. Zum anderen sollten die grundlegen-

den Prozesse der Erzeugung der 1. und 2. anti-Stokes-Streuung und der Stokes-Streuung höherer Ordnung mit Bessel-Bündeln geklärt werden.

Um ein übergreifendes Gesamtbild zu erhalten, sollten die in flüssigem Aceton gewonnenen Erkenntnisse mit den Ergebnissen über Wasserstoffgas verglichen werden. Dazu war es außerdem nötig, noch Daten über die stimulierte Raman-Streuung in Wasserstoff zu sammeln. Hier wurde insbesondere die bisher als Mode identifizierte axiale Streukomponente der 1. Stokes-Streuung und die 1. anti-Stokes-Streuung untersucht.

2 Theorie

In diesem Kapitel werden die wichtigsten Grundlagen für das Verständnis der vorliegenden Arbeit erläutert. Im ersten Punkt werden dabei die Bessel-Bündel behandelt, da deren Eigenschaften nicht zum Grundlagenwissen der Physik zählen, aber für die später präsentierten Messungen und Theorie absolut notwendig sind. Anschließend wird etwas genauer auf die Mechanismen der Raman-Streuung eingegangen, wobei sich der Bereich speziell auf die stimulierte Raman-Streuung konzentrieren wird. Abschließend wird noch kurz die Theorie der Wellenvektoranpassung vorgestellt, mit der viele Experimente erklärt werden bzw. auf der die Erklärungen aufbauen.

2.1 Bessel-Bündel

Die Eigenschaften der verwendeten Bessel-Bündeln spielen eine entscheidende Rolle in den Experimenten, weshalb sie hier etwas ausführlicher vorgestellt werden sollen. Da die theoretische Herleitung aber nicht Gegenstand dieser Arbeit sein soll, werden wir uns auf die wesentlichen Grundzüge beschränken. Eine genaue Darstellung ist in [Nig99] zu finden, worauf auch die hier präsentierte Zusammenfassung basiert. Um die Schwierigkeiten und Einschränkungen beim Aufbau der Experimente zu verstehen, wie sie in Kapitel 3 genauer erläutert werden, wird anschließend auch auf die Grundlagen der experimentellen Erzeugung von Bessel-Bündeln eingegangen.

2.1.1 Eigenschaften von Bessel-Bündeln

Die Optik behandelt hauptsächlich die Ausbreitung von elektromagnetischen Wellen in linearen und nichtlinearen Medien. Diese wird durch die aus der Elektrodynamik bekannten Maxwell-Gleichungen beschrieben. Für den Fall, dass man nur Isolatoren in Abwesenheit von freien elektrischen Ladungen betrachtet, lässt sich daraus für linear polarisiertes Licht, d. h. für ein Feld der Form $\tilde{E} = (\tilde{E}, 0, 0)$, die so genannte skalare Wellengleichung ableiten:

$$\nabla^2 \tilde{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \tilde{E} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \tilde{P}. \quad (2.1)$$

Hier bezeichnet $\tilde{E}(\vec{r}, t)$ das elektrische Feld, c die Vakuumlichtgeschwindigkeit, ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante des Vakuums und $\tilde{P}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi \cdot \tilde{E}(\vec{r}, t)$ für lineare Medien die vom elektrischen Feld induzierte elektrische Polarisierung, wobei χ die lineare Suszeptibilität ist. Betrachtet man monochromatisches Licht der Frequenz ω , d. h. mit dem Feld $\tilde{E}(\vec{r}, t) = E(\vec{r}) e^{i(-\omega t + \theta)}$, so kann man die skalare Wellengleichung (2.1) in die Helmholtz-Gleichung umwandeln (siehe auch [Nig99]):

$$\nabla^2 E(\vec{r}) + \frac{n^2 \omega^2}{c^2} E(\vec{r}) = 0. \quad (2.2)$$

Da wir im Folgenden nur räumlich begrenzte Felder betrachten wollen, die sich hauptsächlich parallel zur z-Achse ausbreiten, schreiben wir das elektrische Feld in der Form

$$E(\vec{r}_\perp, z) = A(\vec{r}_\perp, z) e^{ikz}, \quad (2.3)$$

wobei $\vec{r}_\perp = (x, y)$ und $k = \frac{n\omega}{c}$ ist. Da wir uns im Folgenden nur noch mit der Variablen \vec{r}_\perp beschäftigen, soll ab jetzt $\vec{r}_\perp = \vec{r}$ gelten. Setzen wir nun Gleichung (2.3) in die Helmholtz-Gleichung ein, so erhalten wir:

$$\frac{\partial^2 A}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 A}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} + 2ik \frac{\partial A}{\partial z} = 0. \quad (2.4)$$

Damit ist zunächst nichts gewonnen. Da wir aber nur Feldverteilungen betrachten wollten, die sich hauptsächlich entlang der z-Achse ausbreiten, nehmen wir an, dass sich das Feld $A(\vec{r}_\perp, z)$ in z-Richtung nur sehr langsam ändert. Wir können also den Term $\frac{\partial^2 A}{\partial z^2} \ll k \frac{\partial A}{\partial z}$ vernachlässigen und mit der Abkürzung $\nabla_\perp^2 A = \frac{\partial^2 A}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 A}{\partial y^2}$ vereinfacht sich Gleichung (2.4) zur so genannten paraxialen Wellengleichung:

$$\frac{\partial A}{\partial z} = \frac{i}{2k} \nabla_{\perp}^2 A. \quad (2.5)$$

Diese Gleichung beschreibt nun in paraxialer Näherung die Entwicklung der Amplitude $A(\vec{r}_{\perp}, z)$ eines Lichtbündels, das sich in z -Richtung ausbreitet. Das wohl bekannteste Beispiel einer Lösung der paraxialen Wellengleichung ist das Gauß-Bündel, wie es üblicherweise von Lasern emittiert wird. Uns interessieren aber an dieser Stelle die so genannten Bessel-Bündel, die ebenfalls Lösungen von Gleichung (2.5) sind und von J. Durnin [Dur87] 1987 gefunden wurden. Das Besondere an diesen Bündeln ist, dass sie ausbreitungs invariant sind. Unter *ausbreitungs invariant* oder auch *beugungsfrei* versteht man, dass die transversale Intensitätsverteilung $I(r, \varphi) \propto |E(r, \varphi)|^2$ nicht von der Ausbreitungs koordinate z abhängt. Die einfachste ausbreitungs invariante Lösung der paraxialen Wellengleichung wäre eine ebene Welle. Diese ist aber praktisch unbrauchbar, da sie den gesamten Raum mit gleicher Intensität ausfüllt. Hier bietet z. B. ein J_0 -Bessel-Bündel ein stark lokalisiertes zentrales Maximum.

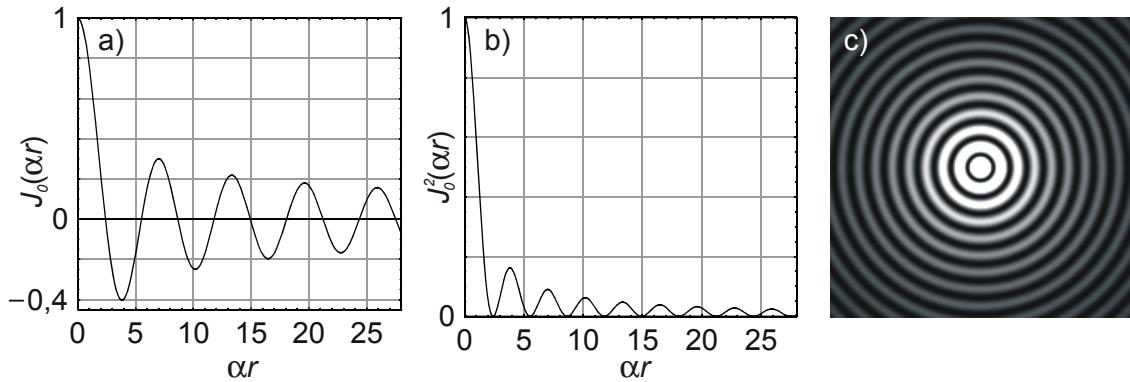


Abbildung 2.1: Bessel-Funktion J_0 (a), Quadrat der Bessel-Funktion nullter Ordnung (b) und deren zweidimensionale Darstellung (c) als Funktion der normierten Radialkoordinate αr .

Wie der Name schon vermuten lässt, ist die radiale Feldverteilung eines Bessel-Bündels proportional zu den bekannten Bessel-Funktionen $J_l(\alpha r)$, wobei l die Ordnung der Bessel-Funktion bezeichnet und α ein radialer Parameter ist. Bessel-Bündel 0. Ordnung haben bei $r = 0$, also im Zentrum, ein Maximum, wogegen Bündel höherer Ordnung l im Zentrum einen optischen Wirbel mit der topologischen Ladung l besitzen, der für eine Nullstelle in der Intensität bei $r = 0$ sorgt. Abbildung 2.1a zeigt eine Bessel-Funktion 0. Ordnung und daneben das Quadrat dieser Funktion (b), da die Intensität eines Bessel-Bündels proportional zum Quadrat der Bessel-Funktion ist. Zur Veranschaulichung ist in Abbildung 2.1c zusätzlich eine zweidimensionale, graustufenkodierte Auftragung der transversalen Intensitätsverteilung dargestellt. Hier sieht man schön das intensive Zentrum, das von im-

mer dunkler werdenden konzentrischen Ringen umgeben ist. Man kann zeigen, dass dabei in jedem Ring die gleiche Leistung steckt.

Um die genaue Feldverteilung für eine beugungsfreie Lösung aus der paraxialen Wellengleichung (2.5) zu erhalten, schreiben wir diese in Zylinderkoordinaten r , φ und z um und separieren sie dann mit Hilfe des Produktansatzes $E(r, \varphi, z) = f(r, \varphi) \cdot h(z)$ in einen transversalen und einen longitudinalen Term. Daraus ergibt sich als eine spezielle Lösung

$$A(r, \varphi, z) = \hat{A} e^{i\beta^P z} e^{il\varphi} J_l(\alpha r), \quad (2.6)$$

wobei für die Konstante β^P die Bedingung

$$\beta^P = -\frac{\alpha^2}{2k} \quad (2.7)$$

erfüllt sein muss. Nach Gleichung (2.3) erhalten wir daraus die Feldverteilung durch eine Multiplikation mit e^{ikz} :

$$E(r, \varphi, z) = \hat{A} e^{i(k - \frac{\alpha^2}{2k})z} e^{il\varphi} J_l(\alpha r). \quad (2.8)$$

Mit der Näherung

$$k - \frac{\alpha^2}{2k} \approx \sqrt{k^2 - \alpha^2} = \beta, \quad (2.9)$$

die für $\alpha \ll k$ gilt, bekommen wir als Lösung die Feldverteilung eines Bessel-Bündels:

$$E(r, \varphi, z) = \hat{A} e^{i\beta z} e^{il\varphi} J_l(\alpha r). \quad (2.10)$$

Schließlich berechnet sich die Intensitätsverteilung eines Bessel-Bündels in einer Ebene $z = z_0$ senkrecht zur Ausbreitungsrichtung z zu:

$$I(r, z_0) = \frac{1}{2} c n \epsilon_0 |A(r, z_0)|^2 = \frac{1}{2} c n \epsilon_0 |\hat{A}|^2 J_l^2(\alpha r). \quad (2.11)$$

Wie man an Gleichung (2.11) sofort sieht, ist die radiale Intensitätsverteilung unabhängig von z , d. h. dieses Lichtbündel ist ausbreitungs invariant. Um eine genauere Vorstellung vom Aussehen des J_0 -Bessel-Bündels zu bekommen, ist es noch interessant, den Durchmesser d_0 zu betrachten, der als Durchmesser des 1. dunklen Ringes in Abbildung 2.1c definiert ist. Er berechnet sich zu

$$d_0 = \frac{4,81}{\alpha}. \quad (2.12)$$

Da wir in den Experimenten hauptsächlich am Winkelspektrum interessiert sind, wollen wir uns dem etwas näher widmen. Wie bekannt sein sollte, berechnet sich das Winkel-Spektrum aus einer bekannten Feldverteilung $E(r, \varphi)$ in einer beliebigen Ebene bei $z = z_0$ senkrecht zur Ausbreitungsrichtung durch eine Fourier-Transformation [Pap68]:

$$\tilde{E}(k_{\perp}, \varphi_k) \propto \text{FT} \left[e^{il\varphi} J_l(\alpha r) \right] = \frac{1}{\alpha} e^{il\varphi_k} \delta(\alpha - k_{\perp}), \quad (2.13)$$

wobei k_{\perp} die transversale Komponente vom Wellenvektor \vec{k} ist, φ_k dessen azimuthaler Winkel und δ die Diracsche Delta-Funktion. Man kann erkennen, dass ein Bessel-Bündel also nichts anderes ist, als eine Überlagerung von ebenen Wellen, deren \vec{k} -Vektoren alle die transversale Komponente $k_{\perp} = \alpha$ haben. Betrachtet man jetzt Gleichung (2.9), so sieht man sofort, dass die \vec{k} -Vektoren die longitudinale Komponente

$$k_z = \sqrt{k^2 - \alpha^2} = \beta \quad (2.14)$$

besitzen, womit die Bedeutung der Parameter α und β geklärt wäre.

Wir können also zusammenfassen, dass alle \vec{k} -Vektoren eines Bessel-Bündels die longitudinale Komponente β und die transversale Komponente α haben, sie somit auf einem Kegelmantel liegen, der den halben Öffnungswinkel

$$\vartheta = \arcsin \left(\frac{\alpha}{k} \right) \approx \frac{\alpha}{k} \quad (2.15)$$

aufweist. Zur Veranschaulichung ist dies in Abbildung 2.2 noch mal skizziert. Da wir später nur sehr kleine Öffnungswinkel ϑ im Bereich von mrad betrachten werden, wird jetzt auch klar, warum die Kleinwinkel Näherung in Gleichung (2.9) und (2.15) zulässig ist.

Für die Messung des Winkelspektrums im Experiment verwendet man eine Sammellinse. Wie bekannt sein sollte, fokussiert diese eine ebene Welle im Abstand der Brennweite f in einem Punkt. Fällt die ebene Welle unter dem Winkel ϑ ein, so liegt der Fokuspunkt weiterhin in der Brennebene, aber im Abstand $f\vartheta = f\frac{\alpha}{k}$ von der optischen Achse entfernt (siehe Abbildung 2.3).

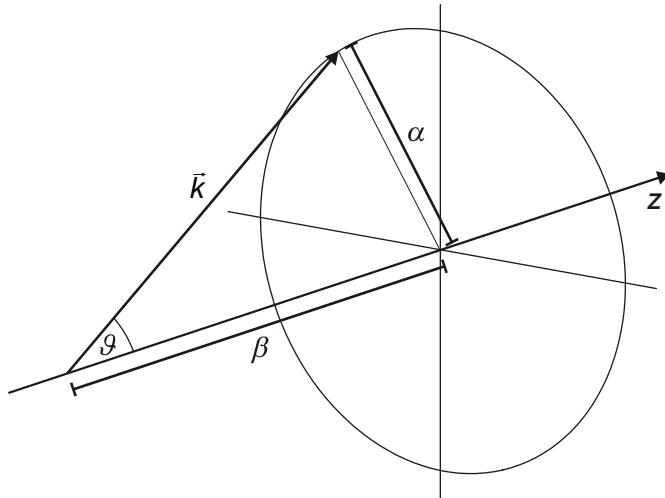


Abbildung 2.2: Alle \vec{k} -Vektoren eines Bessel-Bündels liegen auf einem Kegelmantel, dessen halber Öffnungswinkel ϑ beträgt. Die transversale Komponente von \vec{k} ist α und die longitudinale β .

Erinnern wir uns, dass ein Bessel-Bündel eine Überlagerung ebener Wellen ist, deren \vec{k} -Vektoren auf einem Kegelmantel liegen, so wird schnell klar, dass in der Brennebene einer Sammellinse ein scharfer Ring mit einem Radius

$$r_R = f \frac{\alpha}{k} = f \vartheta \quad (2.16)$$

entstehen muss.

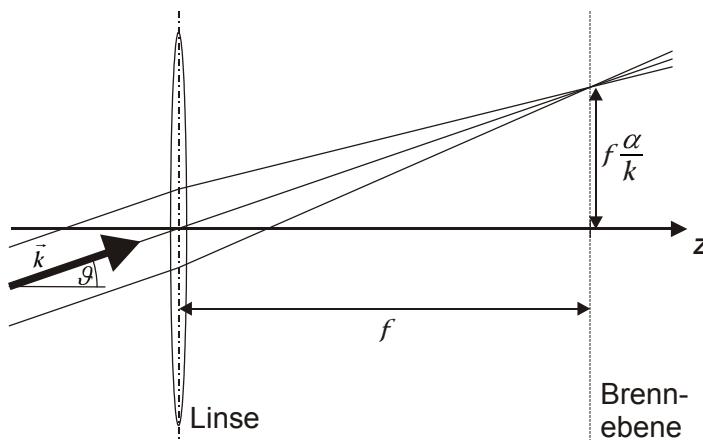


Abbildung 2.3: Eine ebene Welle, die unter dem Winkel ϑ zur z -Achse einfällt, wird in der Brennebene einer Sammellinse auf einen Punkt fokussiert, der den Abstand $f \frac{\alpha}{k} = f \vartheta$ von der z -Achse hat. Der Aufbau dient zur experimentellen Bestimmung des Bessel-Bündel-Konuswinkels ϑ .

2.1.2 Erzeugung von Bessel-Bündeln

Betrachtet man die Transformation eines Bessel-Bündels durch eine Sammellinse, so ergibt sich sofort die scheinbar einfachste und naheliegendste Lösung zur Erzeugung eines Bessel-Bündels, indem man die Anordnung rückwärts betrachtet: leuchtet man einen feinen Ringspalt aus und setzt diesen in die Brennebene einer Linse, so entsteht auf der anderen Seite der Linse ein Bessel-Bündel. In der Praxis wird jedoch schnell klar, dass es wegen der geringen Spaltbreite mit dieser Methode nicht möglich ist, Bessel-Bündel mit hohen, ja sogar nennenswerten, Intensitäten zu erzeugen, wie sie für die stimulierte Raman-Streuung vonnöten wäre. Deshalb sind andere experimentelle Methoden erforderlich, Bessel-Bündel zu erzeugen. Im Folgenden sollen hier das Aicon und das Phasengitter vorgestellt werden, die für unsere Anforderungen wesentlich besser geeignet sind und auch beide in den Experimenten Verwendung fanden.

Bei einem Aicon handelt es sich um einen Glaskegel, der von der Basis her beleuchtet wird. Das damit erzeugte Lichtbündel ist über eine bestimmte Strecke z_{max} in guter Näherung ein J_0 -Bessel-Bündel, zeigt also keinerlei Beugungsscheinungen. Lediglich die Intensität des zentralen Maximums ist nicht konstant, sie oszilliert um einen mit zunehmender Entfernung vom Aicon linear ansteigenden Mittelwert (siehe Abbildung 2.6).

Um die optischen Eigenschaften eines Aicons genauer zu verstehen, betrachten wir Abbildung 2.4.

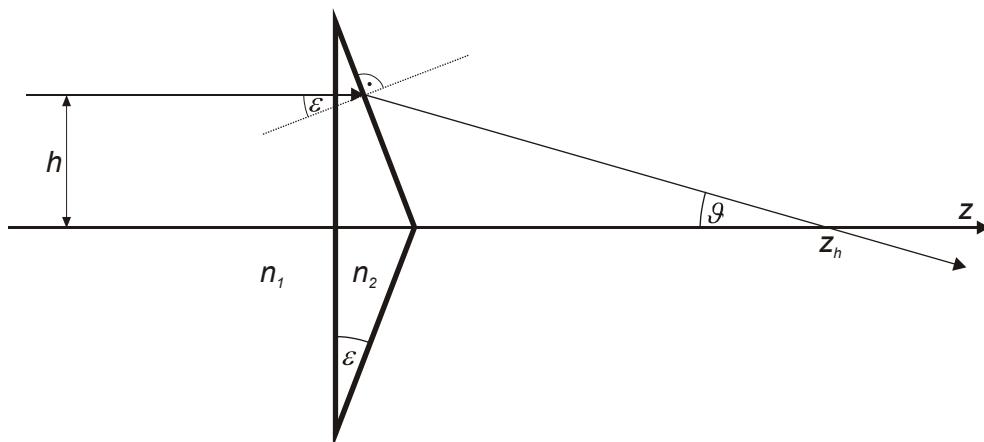


Abbildung 2.4: Ein Lichtstrahl, der im Abstand h auf die Basis eines Aicons (Brechungsindex n_2) fällt, wird an der Austrittsoberfläche zur Umgebungsluft (Brechungsindex n_1) zur optischen Achse hin gebrochen und schneidet diese im Abstand z_h .

Ein Lichtstrahl, der im Abstand h von der optischen Achse auf das Axicon mit dem Brechungsindex n_2 fällt, wird an der Austrittsfläche zur z -Achse hin gebrochen. Dieser Strahl kreuzt dann in einem Abstand z_h die optische Achse unter dem Winkel ϑ . Nimmt man an, dass der bekannte Basiswinkel ε des Axicons und damit auch der resultierende Brechungswinkel ϑ sehr klein sind, so kann man ϑ mit dem Brechungsgesetz berechnen:

$$\vartheta = \varepsilon \left(\frac{n_2}{n_1} - 1 \right). \quad (2.17)$$

Man erkennt, dass der Winkel ϑ nur vom Brechungsindex n_1 der umgebenden Luft und von Parametern des Axicons (Brechungsindex n_2 , Kegelwinkel ε) abhängt und nicht vom Abstand h des einfallenden Lichtstrahls. Das Axicon sorgt also dafür, dass ein parallel einfallendes Lichtbündel in ein Bündel umgewandelt wird, in dem alle Lichtstrahlen mit der Ausbreitungsrichtung z den Winkel ϑ einschließen.

Stellen wir hinter dieses Bündel wie in Abbildung 2.3 eine Sammellinse, so kann man schnell sehen, dass auch das vom Axicon generierte Lichtbündel in der Brennebene der Linse einen scharfen Kreisring mit Radius

$$r_R \approx f \vartheta \quad (2.18)$$

erzeugt. Der Kreisring in der Brennebene entspricht wiederum dem Winkelspektrum, woraus man schließen kann, dass ein Axicon, das mit einem parallelen Lichtbündel beleuchtet wird, ein J_0 -Bessel-Bündel erzeugt.

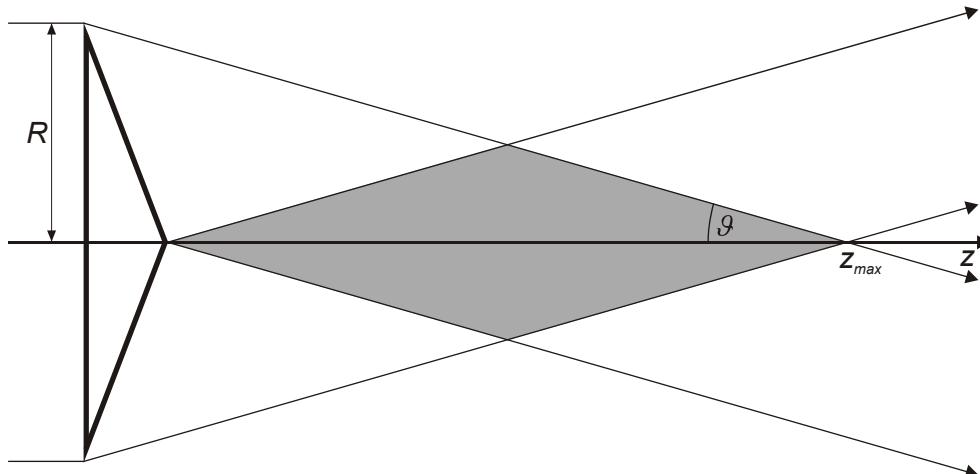


Abbildung 2.5: Ein mit einem Axicon erzeugtes J_0 -Bessel-Bündel zeigt nur im Bereich bis z_{max} (grau hinterlegter Bereich) die typische Bessel-Verteilung.

Allerdings ist offensichtlich, dass in der Praxis kein Bündel erzeugt werden kann, das unendlich viele Ringe über eine unendlich lange Strecke besitzt, wie es bei einem theoretischen Bessel-Bündel der Fall sein müsste. Im Experiment erzeugte Bündel besitzen also nur eine begrenzte Reichweite z_{max} . Wie diese zustande kommt, kann man sehr einfach in Abbildung 2.5 sehen. Das durch das Axicon erzeugte Bessel-Bündel existiert nur dort, wo sich die auf die optische Achse zulaufenden Lichtbündel überlagern und interferieren können. Wie in Abbildung 2.5 schnell ersichtlich, ist somit die maximale Reichweite

$$z_{max} \approx \frac{R}{\vartheta} = \frac{R}{\varepsilon \left(\frac{n_2}{n_1} - 1 \right)}. \quad (2.19)$$

Wie bereits erwähnt, ist die Intensität des zentralen Maximums des Bessel-Bündels nicht konstant. Eine geometrische Herleitung, wie sie aus Gleichung (2.19) recht schnell folgt, aber hier zu weit führen würde, zeigt, dass die Intensität I linear mit der Ausbreitungsrichtung z ansteigt. In [Nig95] wurde die Abhängigkeit berechnet und ergab für $z < z_{max}$

$$I(z) = 2\pi I_0 \frac{r}{R} \left(\frac{n_2}{n_1} - 1 \right) z. \quad (2.20)$$

Für eine genauere wellenoptische Betrachtung der Intensitätsverteilung des zentralen Maximums vor allem im Bereich um z_{max} eines realen Bessel-Bündels wird das Axicon als Phasenobjekt betrachtet. Man kann zeigen [Nig95], dass sich die Transmissionsfunktion $T(r)$ des Axicons dann zu

$$T(r) = e^{-i \frac{2\pi}{\rho} r} \quad (2.21)$$

ergibt, wobei ρ durch

$$\rho = \frac{2\pi}{\varepsilon k \left(\frac{n_2}{n_1} - 1 \right)} \quad (2.22)$$

gegeben ist. Ähnlich wie α charakterisiert auch ρ die Abhängigkeit des Bündels von der Radialkoordinate r . Beide sind über die Beziehung

$$\alpha = \frac{2\pi}{\rho} \quad (2.23)$$

miteinander verknüpft. Jetzt kann die Transmissionsfunktion dazu verwendet werden, das sich ausbreitende Lichtbündel numerisch zu simulieren. Auf den genauen Rechenalgorith-

mus soll hier nicht weiter eingegangen werden, er kann bei [Nig95] oder auch bei [Zei01] nachgelesen werden und beruht auf dem Fresnel-Integral. Hier wird nur zur endgültigen Charakterisierung des Bessel-Bündels das Ergebnis in Abbildung 2.6 dargestellt. Wie man dort erkennen kann, oszilliert die Intensität des zentralen Maximums um einen Wert, der linear mit der Ausbreitungsrichtung z ansteigt. Es ist anzunehmen, dass diese Oszillationen durch Beugungseffekte am Rand des Axicons verursacht werden. Zusätzlich ist in Abbildung 2.6 noch die maximale Reichweite z_{max} eingezeichnet, wie sie sich aus geometrischen Überlegungen (Gleichung (2.19)) errechnet.

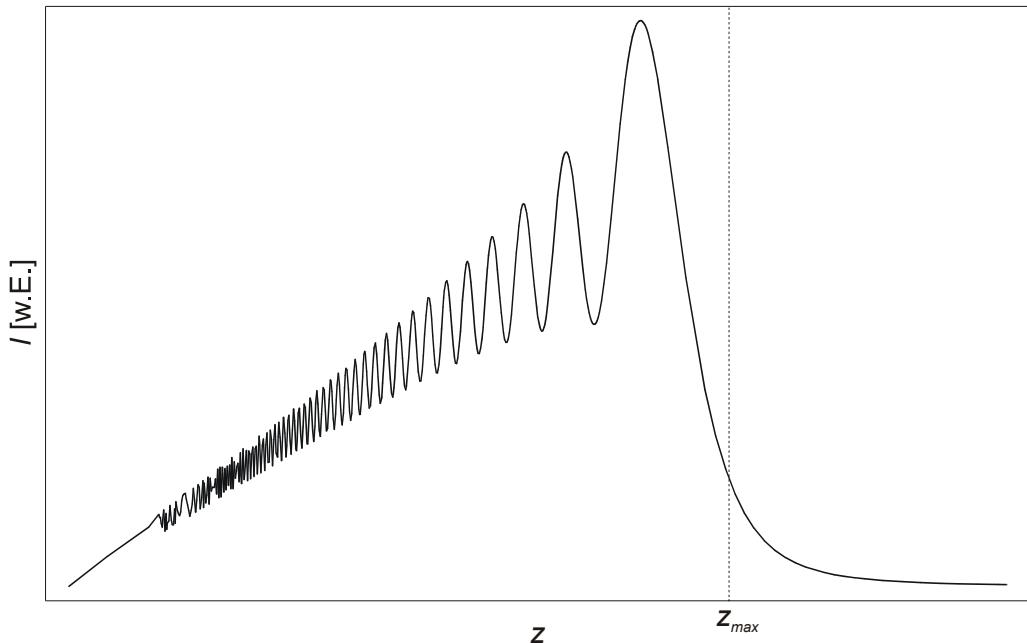


Abbildung 2.6: Numerisch simulierte Intensität des zentralen Maximums eines Bessel-Bündels, das mit einem Axicon erzeugt wurde, in Abhängigkeit von der Ausbreitungsrichtung z (Quelle: [Zei01]).

Die Methode, Bessel-Bündel mit Glas-Axicons zu erzeugen, hat aber auch einen entscheidenden Nachteil: für den Konuswinkelbereich einiger weniger mrad würde man Axicons mit extrem kleinen Basiswinkeln ε benötigen, die technisch nur sehr schwer und entsprechend teuer herzustellen sind. Deshalb beschreitet man hier einen anderen Weg. Wie wir gesehen haben, ist das einzige entscheidende die Transmissionsfunktion $T(r)$ (Gleichung (2.21)), die die Phasenverschiebung $\psi = (2\pi/\rho) \cdot r$ im Axicon beschreibt. Diese Verschiebung ist in Abbildung 2.7a graphisch skizziert. Sie ist direkt proportional zum Weg des Lichtstrahls durch das Axicon, also zur Dicke des Axicons an der Durchtrittsstelle. Da allerdings eine Phasenschiebung um 2π keinen Einfluss auf den weiteren Verlauf des Lichts hat, können beliebige Vielfache von 2π subtrahiert werden. Betreibt man dies kon-

sequent, so ergibt sich die in Abbildung 2.7b dargestellte Sägezahnfunktion, die den gleichen Effekt auf ein Lichtbündel hat, wie ein vollständiges Axicon¹.

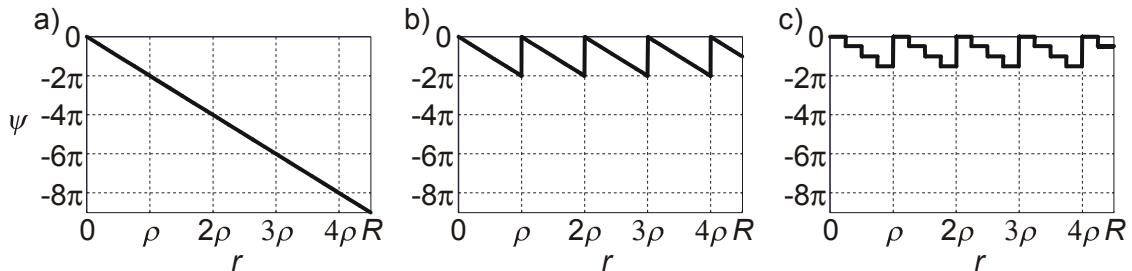


Abbildung 2.7: Transmissionsfunktionen eines Axicons (a), eines Sägezahn-Phasengitters (b) und eines vierstufigen Phasengitters (c).

Allerdings ist die Herstellung einer Glasplatte mit einem Oberflächenprofil wie in Abbildung 2.7b gezeigt immer noch nicht einfach. Deshalb wird die Sägezahnfunktion durch eine Stufenfunktion angenähert, in Abbildung 2.7c sind z. B. vier Stufen zu sehen. Eine entsprechend geätzte Glasplatte ist in Abbildung 2.8 zu sehen, wobei die Stufen natürlich so liegen müssen, dass sie eine Phasenverzögerung von genau $\frac{1}{2}\pi$, π bzw. $\frac{3}{2}\pi$ verursachen. Die Herstellung einer solchen Phasenplatte ist mit den heutigen Kenntnissen in Lithographie und Ätztechnik kein großes Problem.

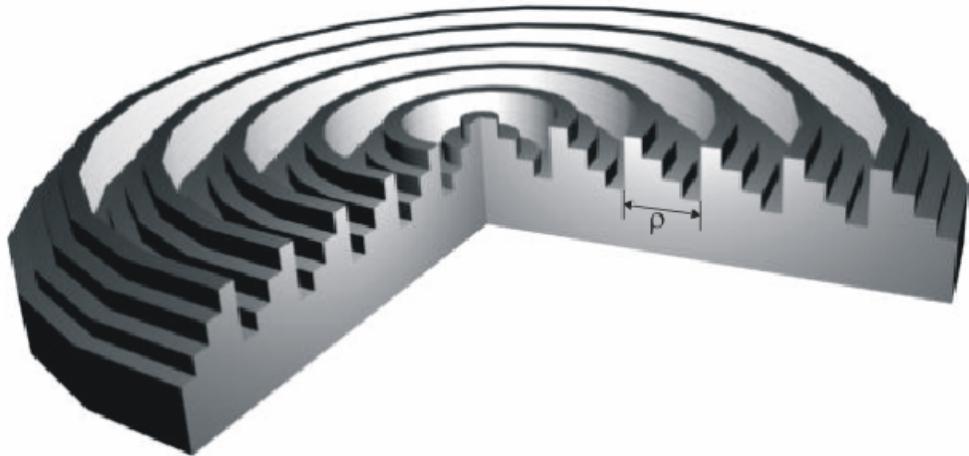


Abbildung 2.8: Skizze eines vierstufigen Rechteck-Phasengitters zur Erzeugung von Bessel-Bündeln. Das Phasengitter ist durchsichtig, die Grauschattierungen dienen lediglich der perspektivischen Darstellung (Quelle: [Zei01]).

¹ Das gleiche Verfahren existiert auch für Linsen, man spricht dann von Fresnel-Linsen, die bei beliebigem Durchmesser extrem dünn gefertigt werden können und somit sehr leicht sind.

Allerdings ist noch nicht offensichtlich, dass ein derartiges mehrstufiges Phasengitter auch ein Bessel-Bündel von ausreichender Qualität erzeugt. Hier ist es wieder nötig, aus der Transmissionsfunktion (siehe Abbildung 2.7c) die radiale Intensitätsverteilung numerisch zu simulieren. Dies wurde in [Zei01] durchgeführt, und es zeigte sich, dass das damit erzeugte Bessel-Bündel eine hervorragende Näherung darstellt.

Man sollte anmerken, dass das Phasengitter zwar eine Überlagerung von Bessel-Bündeln verschiedener Ordnung erzeugt, aber je mehr Stufen das Phasengitter besitzt, desto mehr Intensität fließt in die erste Ordnung. Die in dieser Arbeit verwendeten vierstufigen Phasengitter weisen eine Beugungseffizienz, also das Verhältnis der Leistung in der gewünschten ersten Ordnung zur Gesamtleistung des Bündels, von ca. 81 % auf und erfüllen somit die hohen Leistungsanforderungen, wie sie für die stimulierte Raman-Streuung benötigt werden. Die höheren Ordnungen entstehen normalerweise in der gleichen Richtung wie die erste (on-axis-Phasengitter) und lassen sich im Experiment mit einer Blende im Brennpunkt der ersten Linse im Teleskop 2 (siehe Abbildung 3.1) ausblenden. Alternativ standen auch Phasengitter zur Verfügung, denen zusätzlich ein Strichgitter überlagert war (off-axis-Phasengitter). Bei diesen breiten sich die höheren Ordnungen in andere Richtungen aus, so wie es auch bei einfachen Strichgittern der Fall ist.

2.2 Raman-Streuung

In diesem Abschnitt werden die wichtigsten Voraussetzungen und Grundlagen für die spontane und stimulierte Raman-Streuung vorgestellt. Da es für die theoretischen Erklärungen der in dieser Arbeit durchgeführten Messungen ausreichend ist, ein klassisches Modell zu verwenden, werden wir uns darauf auch beschränken. Die nachfolgenden Ausführungen nehmen das Wasserstoffmolekül in der Gasphase als Beispiel, sie lassen sich aber ohne Einschränkungen auf das ebenfalls untersuchte flüssige Aceton übertragen.

Im klassischen Modell betrachten wir das Wasserstoffgas als ein Ensemble ungekoppelter harmonischer Oszillatoren. Dabei stellt jedes Molekül einen Oszillator mit der Eigenfrequenz ω dar, indem wir uns die beiden Atomkerne mit der Masse m durch eine Feder verbunden vorstellen (Abbildung 2.9). Es gibt nun so genannte *Raman-aktive* Medien, bei denen die Polarisierbarkeit α^P der Elektronenhülle von der Auslenkung $q = 2x - R$ der Atomkerne aus der Ruhelage R abhängt, d. h. $\alpha^P = \alpha^P(q)$. Strahlt nun ein monochromati-

sches, elektromagnetisches Feld mit der Frequenz $\omega_p \gg \omega_\nu$ auf das Ensemble ein, so wird in der Elektronenhülle eine Dipolschwingung mit derselben Frequenz ω_p induziert, deren Amplitude jedoch mit der Eigenfrequenz ω_ν des Oszillators moduliert ist. Dies führt dazu, dass neben der eingestrahlten Frequenz ω_p zusätzliche so genannte Stokes- und anti-Stokes-Seitenbänder mit den Frequenzen ω_s und ω_a auftreten.

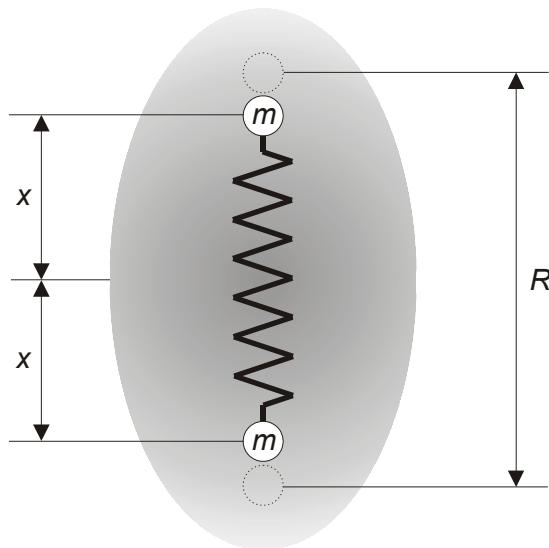


Abbildung 2.9: Anschauliches Oszillatormodell eines Wasserstoffmoleküls. Die Atomkerne m sind durch eine Feder verbunden und um die Länge $q = 2x - R$ gegen ihre Ruhelage (gestrichelt) in der Elektronenhülle verschoben.

In der Praxis zeigt sich natürlich, dass Raman-aktive Stoffe nicht nur eine einzige Eigenfrequenz besitzen, sondern in der Regel ein ganzes Spektrum von Anregungsfrequenzen auftritt, die die Elektronenhülle im Falle eines eingestrahlten elektromagnetischen Feldes entsprechend modulieren. Diese Tatsache wird heute in der Raman-Spektroskopie verwendet, denn wie aus dem Oszillatormodell zu erwarten ist, sind die einzelnen Frequenzen vor allem von den Massen der Atome und der Bindungsstärke in dem untersuchten Molekül abhängig. Die Methode ist natürlich auf Raman-aktive Medien beschränkt ist, da nur hier spontane Raman-Streuung auftritt.

Strahlt man in ein Raman-aktives Medium mit genügend hoher Leistung ein, was man üblicherweise durch Laser erreichen kann, so tritt der Effekt der stimulierten Raman-Streuung auf. Man kann zeigen, dass hier die intensivste spontane Raman-Linie exponentiell verstärkt wird und die Raman-Streuung nicht mehr in alle Raumrichtungen sondern hauptsächlich in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung relativ zum eingestrahlten Laserlicht auftritt. Durch die exponentielle Verstärkung übertrifft die Intensität der stimulierten Raman-

Streuung die der spontanen um viele Größenordnungen und besitzt jetzt auch typische Lasereigenschaften wie Kohärenz und eine Einengung der Linienbreite.

Um etwas genauer zu verstehen, warum und mit welcher Wellenlänge die Raman-Linien entstehen, betrachten wir noch einmal die Polarisierbarkeit α^P und gehen davon aus, dass sie in 1. Ordnung linear von der Auslenkung q der Atomkerne abhängt:

$$\alpha^P(q) \approx \alpha_0^P + \frac{d\alpha^P}{dq} q = \alpha_0^P + \alpha_1^P q. \quad (2.24)$$

Befindet sich das Molekül nun in einem zeitabhängigen elektromagnetischen Feld $E(t)$, so wird das Dipolmoment

$$p(t) = \epsilon_0 \alpha^P(q(t)) E(t) \approx \epsilon_0 \alpha_0^P E(t) + \epsilon_0 \alpha_1^P q(t) E(t) \quad (2.25)$$

induziert. Gehen wir weiter davon aus, dass sowohl das eingestrahlte elektromagnetische Feld harmonisch ist, also $E(t) \sim \sin(\omega_p t)$, als auch die Schwingung der Atomkerne $q(t) \sim \sin(\omega_\nu t)$, dann können wir den rechten Term in Gleichung (2.25) folgendermaßen umschreiben:

$$\epsilon_0 \alpha_1^P \sin(\omega_\nu t) \sin(\omega_p t) = \frac{1}{2} \epsilon_0 \alpha_1^P \left\{ \cos[(\omega_p - \omega_\nu)t] - \cos[(\omega_p + \omega_\nu)t] \right\}. \quad (2.26)$$

Man sieht also an Gleichung (2.25) und (2.26), dass das Molekül drei verschiedene Frequenzen emittiert:

ω_p	Pump-Frequenz
$\omega_s = \omega_p - \omega_\nu$	Stokes-Frequenz
$\omega_a = \omega_p + \omega_\nu$	anti-Stokes-Frequenz

Die Kraft F , mit der die Molekülschwingungen getrieben werden, erhalten wir, indem wir die potentielle Energie $U = -\frac{1}{2} pE$ eines induzierten Dipols betrachten. In unserem Fall lautet sie dann

$$U = -\frac{1}{2} \epsilon_0 \alpha^P(q) E^2. \quad (2.27)$$

Aus der Ableitung der potentiellen Energie U erhalten wir dann die auf den Oszillator ausgeübte Kraft

$$F = -\frac{\partial U}{\partial q} = \frac{1}{2} \epsilon_0 \alpha_1^P E^2. \quad (2.28)$$

Die Molekülschwingung wird folglich von einer Kraft getrieben, die proportional zu α_1^P und E^2 ist. Jetzt wird auch offensichtlich, dass Medien nur dann Raman-aktiv sind, wenn die Polarisierbarkeit α^P von q abhängt, also $\alpha_1^P \neq 0$ ist. Man kann also das Molekül als gedämpften, angetriebenen Oszillatoren betrachten.

Für dieses System kann nun eine Differentialgleichung aufgestellt und gelöst werden. Dies ist relativ langwierig und da die Gleichungen für diese Arbeit nicht weiter benutzt werden, soll hier darauf verzichtet werden und lediglich auf [Zei01] verwiesen werden. Als Ergebnis der dortigen Bemühungen ergibt sich ein gekoppeltes Differentialgleichungssystem, das die Pump-, Stokes- und anti-Stokes-Felder E_P , E_S und E_A beschreibt:

$$\begin{aligned}\nabla^2 E_P + \frac{n_P^2 \omega_P^2}{c^2} E_P &= i \frac{\omega_P^2 \chi''_R}{c^2} \left(|E_S|^2 E_P - |E_A|^2 E_P \right) \\ \nabla^2 E_S + \frac{n_S^2 \omega_S^2}{c^2} E_S &= -i \frac{\omega_S^2 \chi''_R}{c^2} \left(|E_P|^2 E_S - E_P^2 E_A^* \right) \\ \nabla^2 E_A + \frac{n_A^2 \omega_A^2}{c^2} E_A &= i \frac{\omega_A^2 \chi''_R}{c^2} \left(|E_P|^2 E_A - E_P^2 E_S^* \right)\end{aligned}\quad (2.29)$$

Die Konstanten ω_i und n_i ($i = P, S, A$) bezeichnen die jeweilige Frequenz und den dazugehörigen Brechungsindex im Medium, χ''_R ist der Imaginärteil der Raman-Suszeptibilität, in die unter anderem die Raman-Frequenzverschiebung ω_r , die Dämpfung und die Massen der Molekülschwingung und α_1^P eingehen.

In diesen gekoppelten Differentialgleichungen entspricht die linke Seite der üblichen Helmholtz-Gleichung (2.2). Auf der rechten Seite finden sich in der 2. Gleichung für das Stokes-Feld der Verstärkungsterm $|E_P|^2 E_S$ bzw. in der 1. und 3. Gleichung für das Pump- und anti-Stokes-Feld die Schwächungsterme $|E_S|^2 E_P$ und $|E_P|^2 E_A$, wobei diese Terme üblicherweise vernachlässigt werden können. Die Terme $E_P^2 E_A^*$ und $E_P^2 E_S^*$ stellen die Kopplung von Stokes- und anti-Stokes-Licht dar. Dieser jeweils letzte Term ist besonders interessant, da er die Felder angibt, die die treibende Polarisationswelle erzeugen und somit über die beteiligten \vec{k} -Vektoren Aufschluss geben (siehe nächstes Kapitel). Für die analytische und auch numerische Lösung der Differentialgleichungen (2.29) erweisen sich diese Kopplungsterme jedoch als besonders hinderlich ([Bai02]).

2.3 Wellenvektoranpassung und Vier-Photonen-Prozess

In diesem Kapitel soll ein Überblick gegeben werden, welche Kenntnisse über die Raman-Streuung in Wasserstoff mit Bessel-Bündeln aus den Arbeiten von Vorgängern und entsprechenden Veröffentlichungen vorliegen. Diese früheren Untersuchungen betreffen vor allem die stimulierte Stokes-Streuung 1. Ordnung und die anti-Stokes-Streuung 1. Ordnung sowie die Kopplung dieser beiden Raman-Komponenten. Um im Folgenden die Lesbarkeit zu vereinfachen, werden ab sofort nur noch die Begriffe 1. Stokes, 1. anti-Stokes, 2. Stokes, etc. verwendet, um die entsprechenden Komponenten der stimulierten Raman-Streuung zu bezeichnen. Ebenso werden auch andere physikalische Größen benannt, also z. B. k_p , k_{SI} , k_{AI} , etc. für die Beträge der \vec{k} -Vektoren, ω_i für die Frequenzen, λ_i für die Wellenlängen, n_i für die Brechungsindices und ϑ_i für die Konuswinkel der entsprechenden Raman-Komponenten ($i = P, S1, A1, S2, A2, S3$). Auf den Zusatz „stimuliert“ wird ab sofort verzichtet, da in dieser Arbeit nur die stimulierte Raman-Streuung untersucht wurde. Weiterhin werden nur Experimente und Theorien vorgestellt, bei denen mit J_0 -Bessel-Bündeln gepumpt wurde.

Die aktuellsten Ergebnisse über die 1. Stokes in Wasserstoff zeigen, dass sie lediglich in zwei Formen auftritt, die als verstärkungsgeführte Moden identifiziert werden konnten ([Nig99, Zei01, Bai02, Sch03]). Diese beiden Moden zeigen sich zum einen als konusförmige Mode (M_{00} -Mode), die im Fernfeld als scharfer Ring erscheint, zum anderen als fleckförmige oder axiale Mode (M_{0A} -Mode), die hauptsächlich in Ausbreitungsrichtung abgestrahlt wird und somit im Fernfeld als zentraler Fleck erscheint.

Diverse Messungen haben gezeigt, dass die M_{00} -Mode immer mit einem Konuswinkel von

$$\vartheta_{SI} = \arcsin \left[\frac{k_p}{k_{SI}} \sin \vartheta_p \right] \approx \frac{k_p}{k_{SI}} \vartheta_p \quad (2.30)$$

abgestrahlt wird, er hängt also annähernd linear vom Winkel ϑ_p des Pump-Bessel-Bündels ab. Das gleiche Ergebnis wurde auch theoretisch gewonnen, indem die 2. Gleichung in (2.29) sowohl analytisch mit Bessel-ähnlichen als auch numerisch mit echten Bessel-förmigen Pumpbündeln gelöst wurde ([Bai02]). Gleichung (2.30) kann umgeformt werden in

$$\vartheta_{SI} \approx \frac{n_p}{n_{SI}} \frac{\lambda_{SI}}{\lambda_p} \vartheta_p \approx \frac{\lambda_{SI}}{\lambda_p} \vartheta_p \quad \left(k_i = \frac{2\pi n_i}{\lambda_i} \right) \quad (2.31)$$

und da die Dispersion von Wasserstoff in dieser Gleichung vernachlässigt werden kann und außerdem unabhängig vom Gasdruck wäre (Anhang B), ist der Konuswinkel der 1. Stokes ebenfalls druckunabhängig.

Etwas schwieriger gestaltet sich die Situation bei der 1. Stokes M_{0A} -Mode. Wie schon erwähnt, erscheint sie im Fernfeld als zentraler Fleck, der jedoch im Zentrum eine „Delle“ besitzt, also eine geringere Intensität. Somit lässt sich die M_{0A} -Mode auch als Mode mit sehr kleinem Konuswinkel interpretieren, der bei kleinen Pumpwinkeln ($\vartheta_p = 1 - 5$ mrad) ca. $1,0 \pm 0,4$ mrad beträgt. Dieser Fernfeldring ist jedoch sehr unscharf, so dass er eher „Donut“-förmig aussieht (siehe z. B. Abbildung 5.1). Eine einfache Gleichung für diesen Konuswinkel wie bei der M_{00} -Mode existiert hier leider nicht. Die Simulationen ([Bai02]) bestätigen aber weitestgehend diese Messungen, allerdings zeigen sich auch Abweichungen. Die leichte Druckabhängigkeit in den Experimenten und eine eventuelle zusätzliche, noch kleinere Mode konnte in den numerischen Rechnungen nicht reproduziert werden.

Weiterhin hat sich bis jetzt gezeigt, dass die M_{00} - und die M_{0A} -Mode nur selten, d. h. nur bei relativ engen Pumpwinkel- und Druckbereichen gemeinsam auftreten. Nach [Zei01] entspricht dies auch den Ergebnissen der Simulationen, wobei ein theoretischer Grenzdruck

$$p_G = \vartheta_p^2 \cdot 3,1 \cdot 10^6 \text{ bar} \quad (2.32)$$

berechnet werden kann, bei dem die Moden verschwinden bzw. auftauchen. Unterhalb des Grenzdrucks p_G tritt nur die M_{0A} -Mode auf, oberhalb nur die konusförmige M_{00} -Mode. Dabei ist zu bemerken, dass der Übergangsbereich nicht exakt scharf ist, d. h. in einem Gebiet von $p_G \pm 5$ bar sind beide Moden gleichzeitig sichtbar. Einige Messungen bei einem Pumpwinkel von $\vartheta_p = 3,55$ mrad ([Zei01]) zeigten aber auch, dass dort die M_{0A} -Mode oberhalb des Grenzdrucks nicht verschwindet. Eine genaue Erklärung dafür existiert leider nicht.

Was die 1. Stokes bei flüssigem Aceton als Raman-aktivem Medium angeht, sind in [Gad99] ähnliche Ergebnisse veröffentlicht worden. Auch dort wurde ein scharfer 1. Stokes-Ring mit einem Konuswinkel nach Gleichung (2.30) und ein zentraler 1. Stokes-Fleck beobachtet. Letzterer zeigt allerdings nicht die vom Wasserstoff bekannte Donut-Form, sondern besitzt ein gewöhnliches Gauß-Profil.

Während sich die 1. Stokes-Raman-Streuung auf zwei Moden beschränkt, erscheint die 1. anti-Stokes als eine Vielzahl von Moden, die im Fernfeld alle als mehr oder weniger scharfe Ringe sichtbar sind (siehe z. B. [Bai02], Seite 76). Erklären lassen sich diese Moden,

wenn man davon ausgeht, dass die 1. anti-Stokes durch einen Vier-Photonen-Prozess erzeugt wird. Dabei wechselwirken zwei Pump-Photonen mit einem 1. Stokes-Photon und einem 1. anti-Stokes-Photon. Für einen solchen Prozess wird verlangt, dass die Energie erhalten bleibt:

$$2\hbar\omega_p = \hbar\omega_{S1} + \hbar\omega_{A1}. \quad (2.33)$$

Dass in unserem Fall Gleichung (2.33) erfüllt ist, erkennt man sofort, wenn man die Definition von $\omega_{S1} = \omega_p - \omega_v$ und $\omega_{A1} = \omega_p + \omega_v$ (siehe Gleichung (2.26)) einsetzt. Wie wir sehen werden, schränkt die Forderung nach der Energieerhaltung die Anzahl der möglichen Prozesse stark ein, besonders wenn später Vier-Photonen-Prozesse zur Erzeugung von Raman-Komponenten höherer Ordnung betrachtet werden.

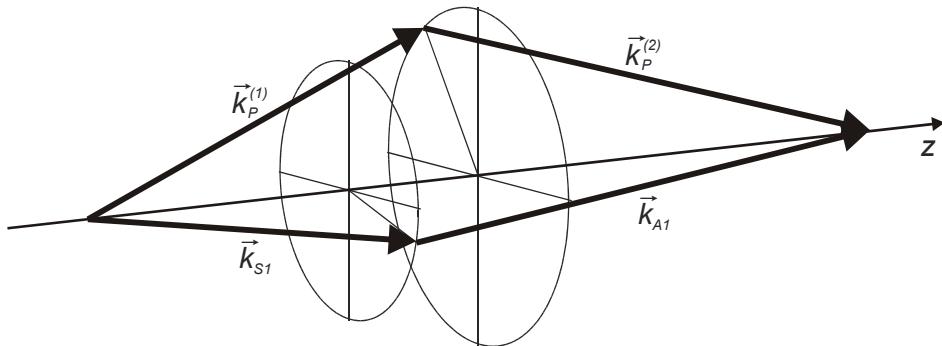


Abbildung 2.10: Die Erzeugung der 1. anti-Stokes-Streuung als aplanarer Vier-Photonen-Prozess. Die vier beteiligten \vec{k} -Vektoren liegen nicht in einer Ebene.

Zusätzlich spielt die Impulserhaltung eine entscheidende Rolle. Zunächst könnte man vermuten, dass der Impuls vollständig erhalten werden muss, d. h.

$$\hbar\vec{k}_p^{(1)} + \hbar\vec{k}_p^{(2)} = \hbar\vec{k}_{S1} + \hbar\vec{k}_{A1} \quad (2.34)$$

muss erfüllt sein. Dies ist in Abbildung 2.10 skizziert, wobei zu beachten ist, dass im Allgemeinen der Vier-Photonen-Prozess natürlich aplanar ist, d. h. weder der 1. Stokes- noch der 1. anti-Stokes-Vektor liegen in der Ebene, die von den beiden Pump-Vektoren aufgespannt wird. In den Experimenten hat sich allerdings gezeigt, dass keineswegs eine exakte Wellenvektoranpassung erforderlich ist, um eine 1. anti-Stokes-Streuung zu beobachten. Es genügt völlig, wenn entweder nur die transversalen oder nur die longitudinalen Komponenten der beteiligten \vec{k} -Vektoren angepasst sind.

Betrachten wir zunächst die transversale Wellenvektoranpassung, d. h. die Komponenten $k_{i\perp}$ der \vec{k} -Vektoren, die senkrecht zur Ausbreitungsrichtung stehen. Der Einfachheit hal-

ber beschränken wir uns hier auf planare Prozesse. Aus Gleichung (2.34) erhalten wir dann z. B.

$$k_{S1\perp} + k_{A1\perp} = 2k_{P\perp}. \quad (2.35)$$

Verwenden wir die Kleinwinkelnäherung für die verschiedenen Konuswinkel, können wir mit $k_{i\perp} = k_i \sin(\vartheta_i) \approx k_i \vartheta_i$ die Gleichung (2.35) schreiben als

$$k_{S1}\vartheta_{S1} + k_{A1}\vartheta_{A1} = 2k_P\vartheta_P. \quad (2.36)$$

Jetzt führen wir noch die normierten Winkel ψ_{S1} und ψ_{A1} als dimensionslose Größen ein:

$$\psi_{S1} = \frac{k_{S1}\vartheta_{S1}}{k_P\vartheta_P} = \frac{\lambda_P\vartheta_{S1}}{\lambda_{S1}\vartheta_P} \text{ und } \psi_{A1} = \frac{k_{A1}\vartheta_{A1}}{k_P\vartheta_P} = \frac{\lambda_P\vartheta_{A1}}{\lambda_{A1}\vartheta_P}, \quad (2.37)$$

womit sich Gleichung (2.36) zur Geradengleichung

$$\psi_{S1} + \psi_{A1} = 2 \quad (2.38)$$

vereinfachen lässt.

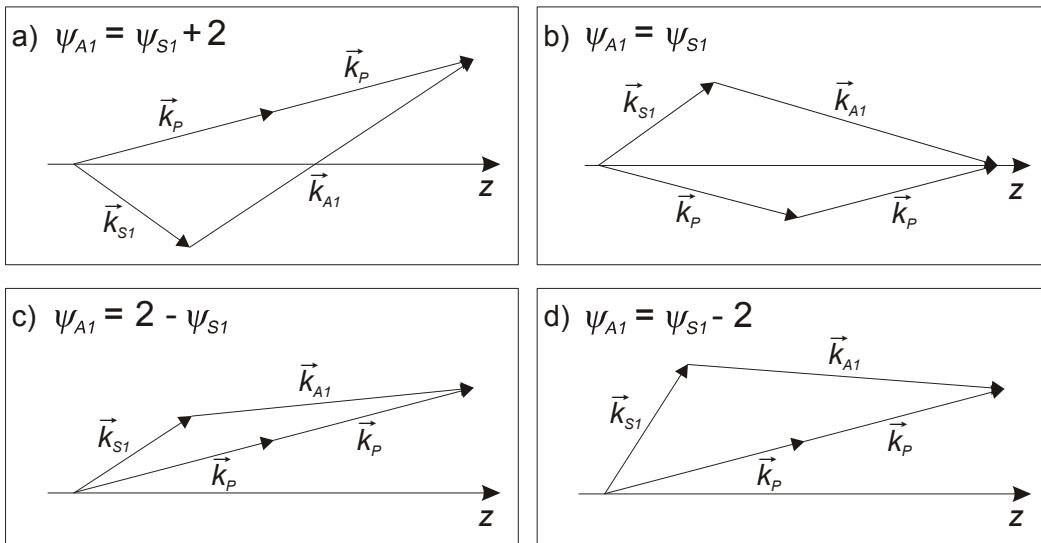


Abbildung 2.11: Vier-Photonen-Prozesse mit planarer transversaler Wellenvektoranpassung der normierten Winkel ψ_{S1} und ψ_{A1} .

In diesem Fall (Abbildung 2.11c) haben wir allerdings nur eine spezielle Möglichkeit der planaren Anordnung der beteiligten \vec{k} -Vektoren betrachtet. In Abbildung 2.11 sind zusätzlich die restlichen drei Möglichkeiten skizziert, mit denen eine transversale Wellenvektor-anpassung erreicht werden kann. Wie bereits erwähnt, betrachten wir hier nur planare Pro-

zesse und obwohl die Skizzen immer die Wellenvektoren in exakter Anpassung zeigen, ist hier nur die transversale Anpassung von Bedeutung. Entsprechend dem obigen Vorgehen können die in Abbildung 2.11 angegebenen Geradengleichungen gewonnen werden.

Unabhängig von der transversalen Wellenvektoranpassung betrachten wir jetzt nur die longitudinalen Komponenten $k_{i\parallel}$ der Wellenvektoren. Wie in Abbildung 2.11 erkennbar, gibt es hier nur eine einzige Möglichkeit, eine Anpassung zu erreichen:

$$k_{S\parallel} + k_{A\parallel} = 2k_{P\parallel}. \quad (2.39)$$

Verwenden wir die geometrische Beziehung $k_{i\parallel} = k_i \cos \vartheta_i$ und benutzen die Näherung $\cos \vartheta_i = 1 - \frac{1}{2} \vartheta_i^2$, so erhalten wir

$$k_{S\parallel} \vartheta_{S\parallel}^2 + k_{A\parallel} \vartheta_{A\parallel}^2 = 2k_p \vartheta_p^2 + 2(k_{S\parallel} + k_{A\parallel} - 2k_p). \quad (2.40)$$

Führen wir jetzt wieder unsere normierten Winkel $\psi_{S\parallel}$ und $\psi_{A\parallel}$ ein, so wird aus Gleichung (2.40) die folgende Beziehung:

$$\frac{1}{k_{S\parallel}} \psi_{S\parallel}^2 + \frac{1}{k_{A\parallel}} \psi_{A\parallel}^2 = \frac{2}{k_p} + \frac{2(k_{S\parallel} + k_{A\parallel} - 2k_p)}{k_p^2 \vartheta_p^2}. \quad (2.41)$$

Was uns die Einführung der normierten Winkel bringt, sehen wir in Abbildung 2.12. Trägt man $\psi_{A\parallel}$ gegen $\psi_{S\parallel}$ auf, so erscheint Gleichung (2.41) als Ellipsengleichung, deren Halbachsen von der rechten Seite abhängen, also konkret vom Pumpwinkel ϑ_p und dem Gasdruck p , da $k_{S\parallel} + k_{A\parallel} - 2k_p$ aufgrund der Dispersion von Wasserstoff (Anhang B) sehr stark von p abhängt. Weiterhin kann man nun die vier Gleichungen für die transversale Wellenvektoranpassung (z. B. Gleichung (2.38)) als Geraden einzeichnen.

Diese Auftragung ist jetzt ein einfaches Hilfsmittel, um von einem bekannten 1. Stokes-Winkel auf die 1. anti-Stokes-Streuung zu schließen. Dazu muss einfach eine senkrechte Linie bei dem normierten 1. Stokes-Winkel eingezeichnet werden und überall, wo diese Linie (in Abbildung 2.12 gestrichelt) auf eine Kurve der transversalen oder longitudinalen Wellenvektoranpassung trifft, kann der normierte Winkel abgelesen werden, bei dem eine erhöhte 1. anti-Stokes-Streuung zu erwarten ist. Beobachtet man z. B. bei $\psi_{S\parallel} = 0,5$ (siehe Abbildung 2.12) eine 1. Stokes, so würde man also bei der in Abbildung 2.12 dargestellten Situation eine 1. anti-Stokes-Streuung bei $\psi_{A\parallel} = 0,5$, $\psi_{A\parallel} = 1,5$, $\psi_{A\parallel} = 2,5$ und $\psi_{A\parallel} = 3,6$ erwarten.

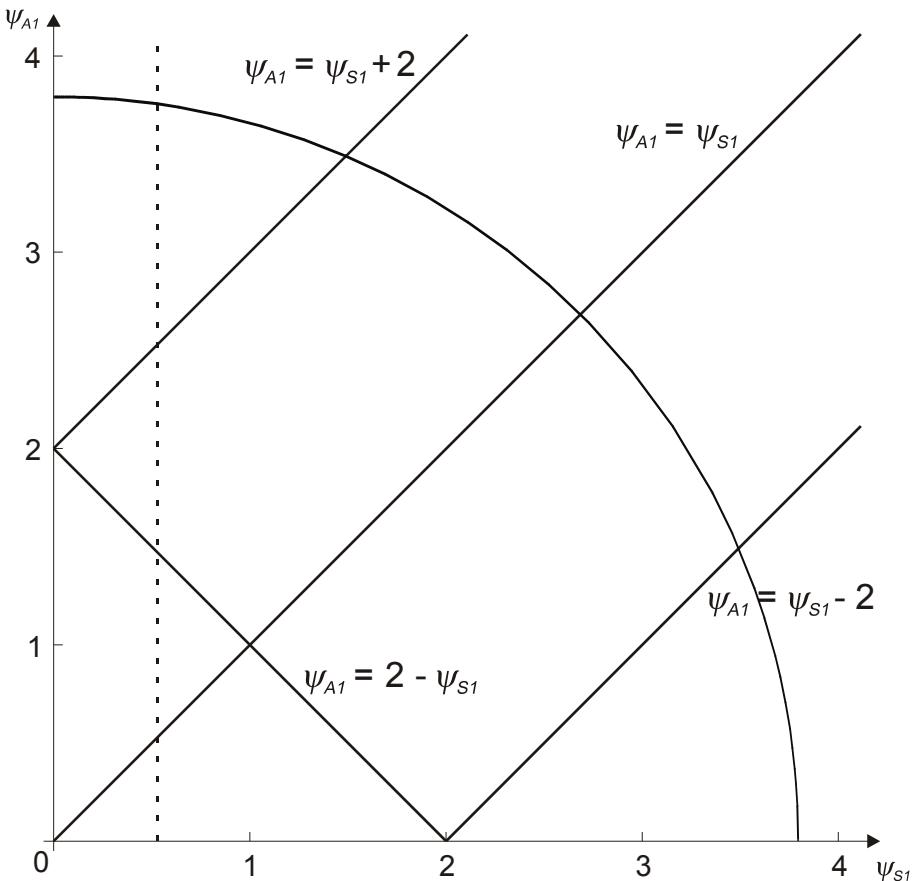


Abbildung 2.12: Die Geraden in der ψ_{A1} - ψ_{S1} -Ebene entsprechen der transversalen (siehe Abbildung 2.11) und die Kurve der longitudinalen Wellenvektoranpassung (Gleichung (2.41)).

Bisher haben wir die exakte Wellenvektoranpassung vernachlässigt, bei der man besonders intensive 1. anti-Stokes-Streuung beobachtet. Sie tritt auf, wenn die longitudinale und transversale Wellenvektoranpassung zugleich erfüllt ist und dort auch eine 1. Stokes-Streuung auftritt. Man spricht hier auch von exakter Phasenanpassung. Dies heißt z. B. für die 1. Stokes M_{00} -Mode, bei der $\psi_{S1} = 1$ (siehe Gleichung (2.30)) ist, dass genauso wie die transversale Gleichung $\psi_{A1} = \psi_{S1} + 2$ auch die longitudinale Ellipsengleichung durch den Punkt $(\psi_{S1} = 1, \psi_{A1} = 3)$ laufen muss. Bei Wasserstoff lässt sich diese Situation meist problemlos über die Variation des Gasdrucks p erreichen, weil die Ellipse über die Wellenvektordifferenz $k_{S1} + k_{A1} - 2k_p$ vom Druck abhängt (Gleichung (2.41)), wogegen die Situation exakter Phasenanpassung für Aceton nur bei einem bestimmten Pumpwinkel erreicht wird, da im Experiment der Druck in flüssigem Aceton nicht variiert werden konnte.

Dieses Modell ist in [Gad99] entwickelt worden, hat aber leider den Nachteil, dass damit die Intensitätsverteilung des 1. anti-Stokes-Winkelspektrums nicht abgeleitet werden kann. Ein weiterer Nachteil ist, dass es uns diese Auftragung nicht erlaubt, Messungen in Abhängigkeit vom Druck p oder Pumpwinkel ϑ_p entsprechend darzustellen, da für jeden

Druck und jeden Pumpwinkel eine eigene Ellipse für die longitudinale Wellenvektoranpassung gezeichnet werden müsste. Deshalb werden wir für die Darstellung von Messungen auf die normierten Winkel verzichten und die verschiedenen Gleichungen transversaler und longitudinaler Anpassung nach ϑ_{SI} , ϑ_{AI} , etc. auflösen.

Da die auftretenden Winkel sowohl bei Wasserstoffgas als auch bei Aceton alle Winkel kleiner als ca. 200 mrad $\approx 11,5^\circ$ sind, wäre es zulässig, die gängigen Kleinwinkelnäherungen zu verwenden, wie es in vielen Vorgängerarbeiten auch üblich war. Da derartige Näherungen die auftretenden Gleichungen aber nicht anschaulicher machen, die Rechnungen mit Mathematica nicht entscheidend beschleunigen und die geometrische Herkunft der Gleichungen nachteilig verschleiern, soll in dieser Arbeit darauf verzichtet werden. Dadurch werden zwar viele Gleichungen etwas länger, aber mit etwas Übung kann an den ungenähernten Formeln sofort die Geometrie des zugrunde liegenden Prozesses abgelesen werden.

3 Versuchsaufbau

In diesem Kapitel soll kurz der Aufbau im Labor vorgestellt werden, wie er bei den Experimenten verwendet wurde. Da der prinzipielle Aufbau bei allen Messungen gleich ist, aber doch immer einige Details verändert wurden, werden hier alle Variationen vorgestellt und in den entsprechenden Kapiteln dann nur kurz erwähnt, welche konkrete Anordnung Verwendung fand.

In Abbildung 3.1 ist der Laboraufbau skizziert. Zum Pumpen der stimulierten Raman-Streuung standen zwei Lasersysteme zur Verfügung. Bei beiden Geräten handelt es sich um frequenzverdoppelte Nd:YAG-Laser, sie emittieren also bei einer Wellenlänge von $\lambda = 532 \text{ nm}$ mit einer Wiederholfrequenz von 10 Hz, jedoch unterscheiden sie sich in den ausgestrahlten Pulsen. Das erste Gerät ist ein so genannter Riesenimpuls-Laser, es erzeugt sehr intensive Pulse von ca. 60 bis 100 mJ Pulsennergie². Die Pulse haben eine Länge von ca. 13 ns, weshalb sie im Rest der Arbeit einfach als ns-Pulse bezeichnet werden. Mit Hilfe eines Seeders läuft der Laser auf einer einzelnen Resonatormode und liefert somit sowohl räumlich als auch zeitlich gute Gauß-förmige Pulse. Bei dem zweiten Gerät dagegen handelt es sich um einen modengekoppelten Laser, der einen Zug von ca. 10 bis 15 Pulsen emittiert, die jeweils eine Länge von ca. 30 ps besitzen und deshalb in der Arbeit als ps-Pulse bezeichnet werden. Zur Auswahl eines einzelnen ps-Pulses ist dem Laser ein so genannter Pulsschneider nachgeschaltet, der alle Pulse bis auf den intensivsten ausblendet. Ein einzelner Puls besitzt eine Energie von max. 3 mJ², wobei das Strahlprofil bei diesem Gerät deutlich schlechter ist. Für die Messung der zeitlichen Pulsform standen keine geeigneten Geräte zur Verfügung. Durch die extrem kurzen Pulse läuft der Laser auch nicht mehr auf einer einzelnen Mode.

² Die Pulsennergie ist stark von Zustand und Alter der Blitzlampen in Resonator und Verstärker abhängig.

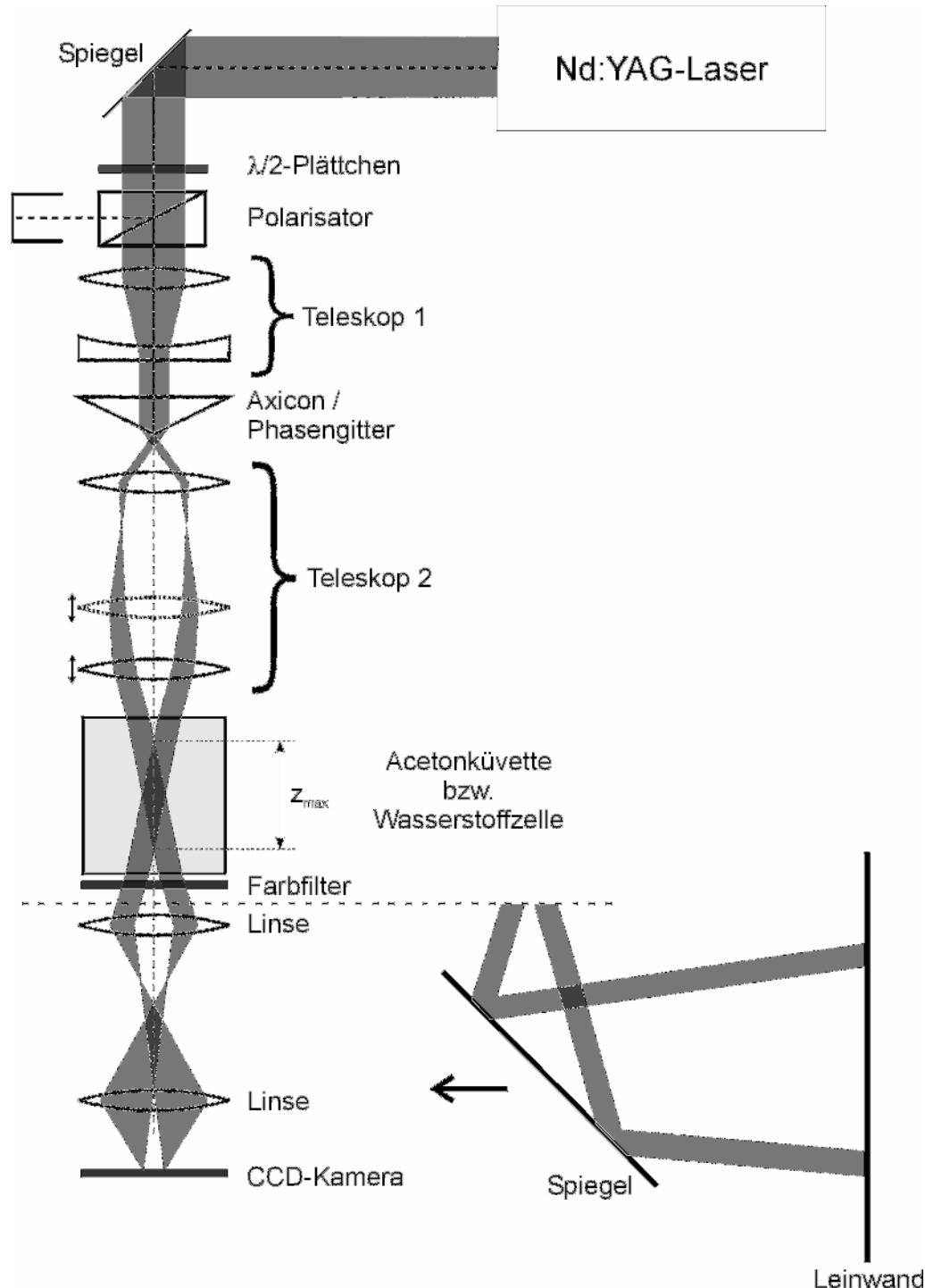


Abbildung 3.1: Versuchsaufbau zur Beobachtung von stimulierter Raman-Streuung in Aceton und Wasserstoff.

Je nach Experiment wurde dann der ps- oder ns-Laserstrahl nach einigen Metern Lauf-
länge, um durch Beugung das Bündel-Profil zu glätten, über einen Spiegel in den restli-
chen Aufbau eingekoppelt. Zunächst durchlief der linear polarisierte Strahl ein drehbares
 $\lambda/2$ -Plättchen, womit durch den anschließenden Glan-Polarisator die Pulsennergie stufenlos

geregelt werden konnte. Je nach den Anforderungen an das Bessel-Bündel (siehe später) wurde anschließend ein Teleskop (Teleskop 1 in Abbildung 3.1) zum Verengen oder Aufweiten des Strahls eingebaut. Zur Erzeugung der Bessel-Bündel folgten ein Phasengitter oder ein Glasaxicon und ein Teleskop (Teleskop 2 in Abbildung 3.1) aus zwei oder drei Linsen. Dieses Teleskop diente dem Vergrößern oder Verkleinern des Bessel-Bündels, wodurch der Konuswinkel und die Länge des Bessel-Bündels verändert werden konnte. Ein Teleskop aus zwei Linsen ist hier zwar relativ einfach zu justieren, eines aus drei Linsen bietet aber den Vorteil, die Vergrößerung/Verkleinerung durch Verschieben der Linsen praktisch stufenlos einstellen zu können. Wie zu vermuten ist, ist die Justierung hier wesentlich schwieriger, da die Stellung der mittleren Linse natürlich auch den Abstand der beiden anderen Linsen beeinflusst. Zusätzlich entsteht im gemeinsamen Brennpunkt dieses Teleskops die Fouriertransformierte bzw. der scharfe Fernfeldring des Pump-Bessel-Bündels. Hier können mit Blenden zum einen störende höhere Ordnungen des Phasengitters ausgeblendet werden, zum anderen kann hier sehr einfach ein azimuthaler Teil des Pumpbündels abgeblockt werden, wie wir es später benötigen werden.

Das fertig präparierte Pump-Bessel-Bündel wird nun entweder durch eine Wasserstoff-Druckzelle oder durch eine einfache mit Aceton gefüllte Glasküvette geleitet. Hier standen Zellen bzw. Küvetten unterschiedlicher Länge zur Verfügung, da beachtet werden muss, dass das Pumpbündel und die entstehende konusförmige Raman-Streuung auch bei großen Winkeln am Ende wieder austreten kann und nicht am Zellen- bzw. Küvettenrand reflektiert wird. Hier wurden dann entsprechende Farbfilter eingesetzt, um im weiteren Verlauf nur die Raman-Komponente durchzulassen, die untersucht werden soll. Es handelte sich hierbei hauptsächlich um Kantenfilter, aber für die kurzweligen anti-Stokes-Komponenten mussten auch andere Farbfilter mit komplizierteren Absorptionskurven verwendet werden, da hier keine Kantenfilter existieren. Dies führte dazu, dass bei der Beobachtung der 2. anti-Stokes auch immer die 1. anti-Stokes und der Fernfeldring des Pumpbündels zu sehen ist, da diese nicht vollständig ausgefiltert werden konnten, was bei der Aufnahme des Fernfelds mit der farbunempfindlichen CCD-Kamera gelegentlich Probleme verursachte.

Zur endgültigen Messung der Konuswinkel der verschiedenen Raman-Komponenten wurde das Fernfeld dann entweder auf einer Leinwand beobachtet, die in einem Abstand von zwei bis drei Metern angebracht war, oder mit einer oder zwei Linsen auf eine 14 Bit-CCD-Kamera³ abgebildet. Die CCD-Kamera stellt hier zwar das weitaus empfindlichere Messgerät dar, das auch im Infraroten (2. und 3. Stokes) reagiert, hat aber den Nachteil, dass es zum einen nicht farbempfindlich ist und zum anderen der CCD-Chip mit 6,3 x

³ Modell WinCamD der Firma DataRay Inc.; Auflösung 1200 x 1024 Pixel bei 14 Bit; 4,65 µm Pixelgröße.

4,8 mm sehr klein ist. Bei sehr großen Konuswinkeln ($> 50 \text{ mrad}$) musste der Fernfeldring also erst entsprechend verkleinert werden, um vollständig auf dem CCD-Chip Platz zu finden. Dies ist aber nicht einfach, da bei den großen Winkeln die Bündel sehr schnell auseinander laufen, also relativ große Linsen benötigt werden, aber wegen Gleichung (2.16) die Linsen eine sehr kurze Brennweite haben sollten, um das Fernfeld auf den CCD-Chip abzubilden. Aber selbst Achromate mit 50 mm Durchmesser und Brennweiten von 80 bis 100 mm zeigen chromatische und sphärische Fehler, die die Messungen verfälschen. Hier ist die Projektion auf eine Leinwand meist die genauere Methode, denn bei ausreichender Intensität sind die Fernfeldringe dort mit einem Durchmesser bis zu 80 cm relativ leicht zu vermessen.

Dieser durchaus überschaubare Aufbau birgt aber doch vielfältige Probleme. Als erstes sollte man hier die Laser genauer betrachten. Da die stimulierte Raman-Streuung auf einer exponentiellen Verstärkung beruht, reagiert das System entsprechend empfindlich auf Schwankungen. Für die verwendeten Laser ist es aber normal, dass vor allem die Intensität um bis zu 20 %, aber auch die Position und die Divergenz des Lasers mehr oder weniger stark schwanken. Es ist also in den Experimenten nicht verwunderlich, dass starke Schwankungen in der Stokes- und anti-Stokes-Streuung auftreten.

Ein großes Problem stellte auch die Erzeugung der Pump-Bessel-Bündel dar. Dafür standen nur ein Glasaxicon und einige Phasengitter zur Verfügung, wobei das Glasaxicon einen Konuswinkel von ca. 92 mrad erzeugt, die verschiedenen Phasengitter Konuswinkel mit 2,66 mrad, 5,32 mrad, 10,64 mrad und 17,7 mrad. Durch ein anschließendes Vergrößern des Bessel-Bündels (d. h. Verkleinern des Konuswinkels) mit einem Teleskop können praktisch alle Winkel bis 92 mrad eingestellt werden, allerdings wird dabei das Bessel-Bündel auch schnell länger als die Küvette, wodurch sich die Wechselwirkungslänge für die Raman-Streuung verkürzt. Die Länge des Bessel-Bündels kann zwar noch über die Ausleuchtung des Axicons gesteuert werden (siehe Abbildung 2.5), will man aber sehr kurze Bessel-Bündel, so muss der Gauß-förmige Laserstrahl sogar verengt werden, wodurch keine sauberen Bessel-Bündel mehr entstehen, sondern ausgeprägte Gauß-Bessel-Bündel. Bei einem solchen Bündel folgt die Intensität (siehe Abbildung 2.1b) nicht mehr dem Quadrat der Bessel-Funktion sondern ist von einer Gauß-förmigen Einhüllenden überlagert. Dies führt zum einen dazu, dass die äußeren Ringe deutlich dunkler sind und sich die Intensität des zentralen Maximums nicht mehr verhält, wie in Abbildung 2.6 skizziert, sondern auch in z -Richtung ungefähr Gauß-förmig aussieht.

Ein weiteres Problem ist bedingt durch den Aufbau. Es ist wegen der entsprechenden Halterungen nicht möglich, Linsen beliebig nahe an die Gaszelle zu bringen. Deshalb müssen

die Phasengitter bzw. das Axicon und das Teleskop so positioniert werden, dass das Bessel-Bündel erst nach einer gewissen Strecke nach dem Teleskop entsteht. Dabei lässt sich aber nicht vermeiden, dass in den Teleskoplinsen oder in den Zellenfenstern ein Bessel-Bündel entsteht und das äußerst intensive zentrale Maximum das Glas zerstört. Deshalb und auf Grund der Tatsache, dass Vergrößerungen und Verkleinerungen mit einem Teleskop um mehr als einen Faktor 6 wegen Linsenfehlern nicht sinnvoll sind, war es bei manchen Pumpwinkeln schwierig bis unmöglich, diese einzustellen.

4 Stimulierte Raman-Streuung in Aceton

Dieses Kapitel stellt den Hauptteil dieser Arbeit dar und beschäftigt sich mit der stimulierten Raman-Streuung in flüssigem Aceton. Dabei wurde nicht nur die Raman-Streuung 1. Ordnung untersucht, sondern auch die Stokes- und anti-Stokes-Streuung 2. Ordnung und auch die 3. Stokes-Streuung konnte beobachtet werden. Die Raman-Streuung 1. Ordnung wurde zwar in [Gad99] schon untersucht, die hier vorgestellten Messungen und Interpretationen zeigen die zugrunde liegenden Prozesse aber wesentlich genauer auf. Auch die Raman-Streuung 2. Ordnung wurde bereits in [Vai00] analysiert, allerdings wird sich zeigen, dass in dieser Veröffentlichung eine fehlerhafte Theorie präsentiert wird, die wohl auf Grund einer ebenfalls fehlerhaften Darstellung der dortigen Messergebnisse nicht aufgefallen ist.

Da es sehr schwierig und umständlich wäre, zuerst die vollständige Theorie mit allen Formeln und erst im Anschluss die Messergebnisse zu präsentieren, werden wir jeden Raman-Streuprozess getrennt betrachten. Dabei werden für jede Streuung die theoretisch denkbaren Prozesse vorgestellt, um anschließend durch den Vergleich mit den durchgeföhrten Messungen und durch plausible Argumente die richtige Theorie zu finden.

Um möglichst unverfälschte Messergebnisse zu erhalten, war es notwendig, für die Raman-Streuung in flüssigem Aceton ps-Pulse zum Pumpen zu verwenden. Denn bei der Verwendung von ns-Pulsen würde eine nicht mehr zu vernachlässigende Intensität in die stimulierte Brillouin-Streuung fließen, die zum einen Einfluss auf die Raman-Streuung selbst haben könnte und zum anderen ihrerseits wieder Raman-Streuung verursachen könnte.

Wie in Kapitel 2.3 bereits erwähnt, werden hier vor allem Messungen von Konuswinkeln präsentiert. Da Aceton im Gegensatz zu Wasserstoffgas jedoch einen Brechungsindex besitzt, der mit ca. 1,36 (siehe Anhang A) deutlich von 1 abweicht, ist es ab sofort wichtig,

ob wir die Konuswinkel *in* Aceton oder die gemessenen Winkel *außerhalb* der Acetonküvette betrachten. Deshalb werden in diesem Kapitel alle Winkel *in* Aceton normal notiert, d. h. ϑ_i , Konuswinkel *außerhalb* von Aceton werden gestrichen notiert: ϑ'_i . Der Einfachheit halber werden also sämtliche Formeln so aufgestellt, wie sie in Aceton gelten, die gemessenen Winkel werden außerhalb von Aceton präsentiert. Die Umrechnung erfolgt über die entsprechenden Brechungsindices (Anhang A) mit

$$\vartheta'_i = \arcsin[n_i \sin \vartheta_i] \quad (i = P, S1, A1, S2, A2, S3) \quad (4.1)$$

und wird im Folgenden nicht mehr explizit erwähnt. Wichtige Ergebnisse werden aber in beiden Notationen angegeben.

4.1 1. Stokes-Streuung

Für die stimulierte Raman-Stokes-Streuung 1. Ordnung in flüssigem Aceton erwartet man prinzipiell ein ähnliches Verhalten, wie es auch bei Wasserstoffgas auftritt (siehe Kapitel 2.3). Es sollte sich also die M_{00} -Mode mit dem Konuswinkel

$$\vartheta_{S1} = \arcsin\left[\frac{k_p}{k_{S1}} \sin \vartheta_p\right] \quad (4.2)$$

(Gleichung (2.30)) ausbilden, die sich im Fernfeld als scharfer Ring zeigt, und die M_{0A} -Mode auftreten, welche im Fernfeld als zentraler Fleck erscheint. Auch in [Gad99] kommt man mit dem Argument der transversalen Wellenvektoranpassung zu dem Schluss, dass die 1. Stokes mit $k_{S1\perp} = 0$ und $k_{S1\perp} = k_{p\perp}$ auftritt, was sich mit den Ergebnissen der Modentheorie ([Bai02]) deckt.

Da in den genannten Quellen die Theorie bereits gut verstanden ist und die teils umfangreichen Rechnungen hier nicht wiederholt werden sollen, beschränken wir uns bei der 1. Stokes auf diese Ergebnisse. Für die nachfolgenden Streuprozesse ist das Auftreten der 1. Stokes natürlich essentiell, weshalb hier trotzdem die Messergebnisse vorgestellt werden sollen. In Abbildung 4.1 sieht man die gemessenen Konuswinkel ϑ'_{S1} der 1. Stokes- M_{00} -Mode in Abhängigkeit vom Winkel ϑ'_p des Pump-Bessel-Bündels, die durchgezogene Linie gibt Gleichung (4.2) wieder.

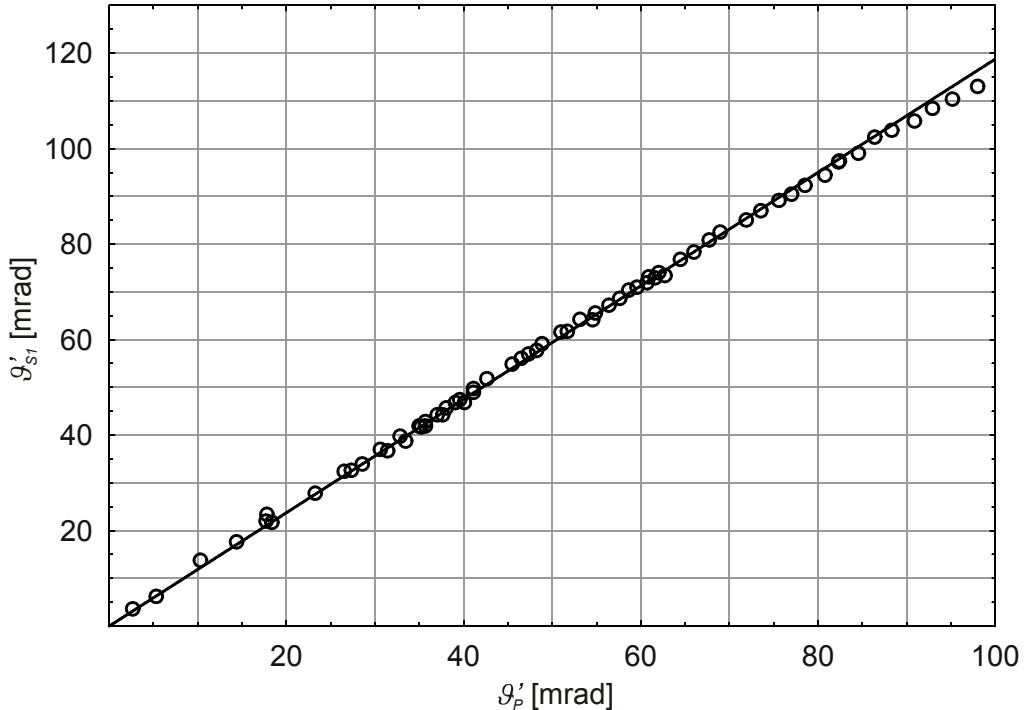


Abbildung 4.1: Konuswinkel ϑ'_{S1} (in Luft) der 1. Stokes- M_{00} -Mode in Abhängigkeit vom Pumpwinkel ϑ'_P . Die Kreise stellen die Messwerte dar, die Gerade zeigt Gleichung (4.2).

Als Unterschied zur Raman-Streuung in Wasserstoff bleibt zu bemerken, dass die 1. Stokes- M_{0A} -Mode in Aceton bei jedem Pumpwinkel eine niedrigere Schwelle von ca. 0,5 mJ hatte als die M_{00} -Mode, d. h. bei langsamem Steigern der Pumpleistung trat immer zuerst der 1. Stokes-Fleck und erst bei höheren Leistungen von über 0,8 mJ trat der 1. Stokes-Ring auf. Außerdem tauchte die M_{0A} -Mode nie Donut-förmig, sondern immer Gauß-förmig auf. Die Divergenz, d. h. der halbe Konuswinkel bei halber Intensität, des 1. Stokes-Flecks betrug ca. 7 mrad, wobei ab $\vartheta'_P = 15$ mrad keine Abhängigkeit der Divergenz vom Pumpwinkel beobachtet werden konnte.

4.2 1. anti-Stokes-Streuung

In Abbildung 4.2 ist das typische Erscheinungsbild des 1. anti-Stokes-Fernfeldes (A1) zu sehen. Zusätzlich ist der sehr scharfe Fernfeldring des Pump-Bessel-Bündels (P) und auch die 2. anti-Stokes zu erkennen, die aber erst später genauer untersucht werden soll. Die 1. anti-Stokes wurde in diesem Beispiel bei einem Pumpwinkel $\vartheta'_P = 52,0$ mrad aufgenommen und zeigt sich als relativ scharfer, aber in der azimuthalen Intensitätsverteilung als

ziemlich inhomogener Ring. Wie in Kapitel 2.3 bereits ausgeführt, entsteht die 1. anti-Stokes aus einem Vier-Photonen-Prozess durch die Wechselwirkung mit zwei Pumpphotonen und einem 1. Stokes-Photon. Obwohl in [Gad99] nur ein einziger 1. anti-Stokes-Fernfeldring beobachtet wurde, müsste man eigentlich zwei Ringe beobachten können, wobei einer durch die Wechselwirkung mit dem intensivem 1. Stokes-Fleck und einer mit der schwächeren 1. Stokes- M_{00} -Mode entsteht.

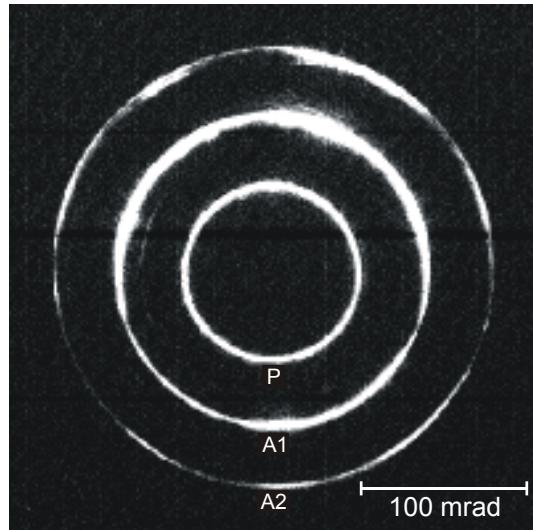


Abbildung 4.2: Gemessene Verteilung des 1. (A1) und 2. (A2) anti-Stokes-Fernfeldes in Aceton für einen Pumpkonuswinkel (P) von $\vartheta'_p = 52,0$ mrad.

4.2.1 Erzeugung der 1. anti-Stokes durch die 1. Stokes- M_{00} -Mode

Betrachten wir zunächst die 1. anti-Stokes-Streuung, die durch eine Polarisation erzeugt wird, die proportional zu $E_p^2 E_{SI}^*$ ist (Gleichung (2.29)), wobei für die 1. Stokes die konusförmige M_{00} -Mode verwendet wird. Daraus folgt, dass die Verhältnisse der beteiligten Wellenvektoren durch

$$\vec{k}_P^{(1)} + \vec{k}_P^{(2)} = \vec{k}_{SI} + \vec{k}_{A1} \quad (4.3)$$

beschrieben werden (siehe Abbildung 4.3a), wobei wir dieses Mal nicht vernachlässigen wollen, dass der dargestellte Prozess auch aplanar ablaufen kann. Dazu berechnen wir aber zuerst die longitudinalen Komponenten von Gleichung (4.3), lösen diese nach ϑ_{A1} auf und erhalten

$$\vartheta_{AI} = \arccos \left[\frac{2k_p \cos \vartheta_p - k_{SI} \cos \vartheta_{SI}}{k_{AI}} \right]. \quad (4.4)$$

Wie wir bereits wissen, muss für eine exakte Phasenanzupassung Gleichung (4.3) auch transversal erfüllt sein, wobei wir zunächst noch mal die planare Konfiguration betrachten wollen. Aus Kapitel 2.3 ist bekannt, dass es dafür vier planare Möglichkeiten gibt. Eine genauere Überprüfung der Konuswinkel zeigt aber, dass im Pumpwinkelbereich von 0 bis 100 mrad nur die transversale Wellenvektoranzupassung nach $\psi_{AI} = \psi_{SI} + 2$ (siehe Abbildung 2.11a) sinnvoll ist. Damit ergibt sich der 1. anti-Stokes-Winkel zu

$$\vartheta_{AI} = \arcsin \left[\frac{2k_p \sin \vartheta_p + k_{SI} \sin \vartheta_{SI}}{k_{AI}} \right]. \quad (4.5)$$

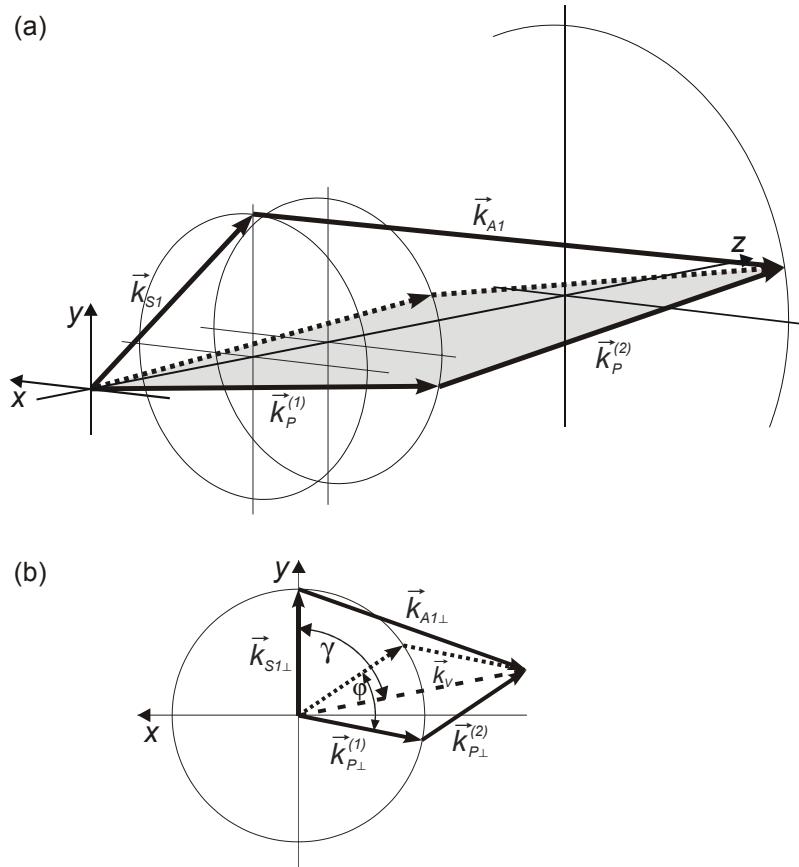


Abbildung 4.3: (a) Räumliche Darstellung der Geometrie der exakten aplanaren Phasenanzupassung für konische Bündel. (b) Transversale Geometrie der Wellenvektoranzupassung für die gleiche Anordnung wie in (a). \vec{k}_v ist der Summenvektor von $\vec{k}_{P_{\perp}^{(1)}}$ und $\vec{k}_{P_{\perp}^{(2)}}$.

Verwendet man für den Konuswinkel der 1. Stokes die M_{00} -Mode nach Gleichung (4.2), so wird aus Gleichung (4.4)

$$\vartheta_{AI} = \arccos \left[\frac{2k_p \cos \vartheta_p - k_{SI} \cos \left(\arcsin \left[\frac{k_p}{k_{SI}} \sin \vartheta_p \right] \right)}{k_{AI}} \right] \quad (4.6)$$

und aus Gleichung (4.5)

$$\vartheta_{AI} = \arcsin \left[\frac{3k_p \sin \vartheta_p}{k_{AI}} \right]. \quad (4.7)$$

Wenden wir uns jetzt der aplanaren Wellenvektoranpassung zu. In Abbildung 4.3b ist die Projektion der Wellenvektoren aus Abbildung 4.3a auf die x - y -Ebene dargestellt, d. h. man betrachtet jetzt die transversalen Komponenten der Wellenvektoren. Wie man sieht, kann man durch die Variation des Zwischenwinkels φ die Länge des Pump-Summenvektors $\vec{k}_V = \vec{k}_{P\perp}^{(1)} + \vec{k}_{P\perp}^{(2)}$ und durch die Variation des Winkels γ die Anpassung der transversalen Wellenvektoren verändern. In [Sch03] ist für diesen allgemeinen Fall folgende Bedingung abgeleitet worden, bei der transversale Wellenvektoranpassung herrscht:

$$k_{AI}^2 \sin^2 \vartheta_{AI} = k_{SI}^2 \sin^2 \vartheta_{SI} - 4k_p k_{SI} \sin \vartheta_p \sin \vartheta_{SI} \cos \left(\frac{\varphi}{2} \right) \cos \gamma + 4k_p^2 \sin^2 \vartheta_p \cos^2 \left(\frac{\varphi}{2} \right). \quad (4.8)$$

Sind die Winkel φ und γ gleich 0° und/oder 180° , so liegen alle Wellenvektoren in einer Ebene und Gleichung (4.8) entspricht dann je nach φ und γ einer der 4 Anordnungen aus Abbildung 2.11.

Wie man sich anhand Abbildung 4.3b auch schnell überlegen kann, ist der Extremfall erreicht, wenn der minimale Betrag des Summenvektors $\vec{k}_{SI\perp} + \vec{k}_{AI\perp}$, d. h. $\gamma = 180^\circ$, und der maximale Betrag von \vec{k}_V , d. h. $\varphi = 0^\circ$, gerade gleich sind. Somit ist eine exakte Phasenanpassung immer dann möglich, wenn $k_{AI\perp} - k_{SI\perp} < 2k_{P\perp}$ ist. Man kann zeigen, dass dies genau dann der Fall ist, wenn der Pumpwinkel ϑ_p größer als der Winkel ist, an dem sich Gleichung (4.6) und (4.7) schneiden, also exakte planare Phasenanpassung vorliegt. Dies ist für flüssiges Aceton bei einem Winkel $\vartheta_p > 20,0$ mrad bzw. $\vartheta'_p > 27,2$ mrad der Fall. Für Pumpwinkel $\vartheta'_p < 27,2$ mrad ist keine exakte Phasenanpassung möglich.

4.2.2 Erzeugung der 1. anti-Stokes durch den 1. Stokes-Fleck

Will man den Konuswinkel der 1. anti-Stokes berechnen, der vom 1. Stokes-Fleck erzeugt wird, so kann man prinzipiell genauso wie im vorigen Kapitel 4.2.1 vorgehen. Der einzige Unterschied besteht jetzt darin, dass wir jetzt als Konuswinkel für die 1. Stokes den Fleck, d. h. $\vartheta_{SI} = 0$, verwenden und zunächst die Divergenz des 1. Stokes-Flecks vernachlässigen

wollen. Für die longitudinale Wellenvektoranpassung berechnet sich der Konuswinkel der 1. anti-Stokes dann aus Gleichung (4.4) zu

$$\vartheta_{AI} = \arccos \left[\frac{2k_p \cos \vartheta_p - k_{SI}}{k_{AI}} \right], \quad (4.9)$$

für die planare transversale Wellenvektoranpassung ergibt sich aus Gleichung (4.5)

$$\vartheta_{AI} = \arcsin \left[\frac{2k_p \sin \vartheta_p}{k_{AI}} \right]. \quad (4.10)$$

Betrachten wir wieder die exakte aplanare Phasenanpassung, so ist nun der Winkel γ zwischen dem Summenvektor \vec{k}_v (siehe Abbildung 4.3b) und der transversalen 1. Stokes-Komponente nicht mehr definiert, da ja $\vec{k}_{S1\perp} = 0$ ist. Mit $\vartheta_{SI} = 0$ vereinfacht sich folglich Gleichung (4.8) für die aplanare transversale Anpassung zu

$$k_{AI}^2 \sin^2 \vartheta_{AI} = 4k_p^2 \sin^2 \vartheta_p \cos^2 \left(\frac{\varphi}{2} \right). \quad (4.11)$$

Um eine exakte aplanare Phasenanpassung zu erreichen, muss also Gleichung (4.9) und (4.11) erfüllt sein. Dazu berechnet man aus Gleichung (4.9) den Konuswinkel ϑ_{AI} für die longitudinale Wellenvektoranpassung und kann diesen dann in Gleichung (4.11) einsetzen. Man erhält damit den Winkel

$$\varphi_{AI} = 2 \arccos \left(\frac{k_{AI} \sin \left[\arccos \left(\frac{2k_p \cos \vartheta_p - k_{SI}}{k_{AI}} \right) \right]}{2k_p \sin \vartheta_p} \right) \quad (4.12)$$

zwischen den beiden transversalen Komponenten $\vec{k}_{P\perp}^{(1)}$ und $\vec{k}_{P\perp}^{(2)}$ der beteiligten Pumpwellenvektoren. Mit den gleichen Argumenten wie oben kann man auch hier zeigen, dass bei Aceton für einen Konuswinkel $\vartheta_p > 43,7$ mrad ($\vartheta'_p > 59,5$ mrad) eine exakte aplanare Phasenanpassung möglich ist. Der jeweils zugehörige Zwischenwinkel φ_{AI} zwischen den beteiligten Pumpwellenvektoren kann mit Gleichung (4.12) berechnet werden. Eine exakte planare Phasenanpassung herrscht vor, wenn $\vartheta_{AI} = \arcsin(2k_p \sin \vartheta_p / k_{AI})$. In diesem Fall ist der Winkel $\varphi_{AI} = 0$, wie man es für die planare Wellenvektoranpassung erwartet. Wiederum ist für einen Pumpwinkel $\vartheta'_p < 59,5$ mrad keine exakte Phasenanpassung möglich, sofern man die Divergenz des 1. Stokes-Flecks außer Acht lässt.

Für den experimentellen Nachweis, dass die 1. anti-Stokes über eine exakte aplanare Phasenanpassung erzeugt wird, entfernt man einen kleinen azimuthalen Teil des Pump-Bessel-Bündels, indem man einfach im Teleskop 2 (siehe Abbildung 3.1) einen Teil des dort auftretenden Fernfeldrings abblockt. Der 1. anti-Stokes-Fernfeldring reagiert darauf mit zwei Fehlstellen (siehe Abbildung 4.4), die auf beiden Seiten der Fehlstelle im Pumpring mit einem Abstand von $\varphi_{A1}/2$ (Gleichung (4.12)) angeordnet sind, d. h. die beiden Fehlstellen im 1. anti-Stokes-Ring schließen einen Winkel von φ_{A1} ein. In [Sog99] wurde übrigens gezeigt, dass der Winkel zwischen den beiden Fehlstellen im 1. anti-Stokes-Ring tatsächlich dem Winkel φ_{A1} entspricht, der ja eigentlich den Zwischenwinkel der beiden Pumpvektoren bei exakter aplanarer Phasenanpassung angibt.

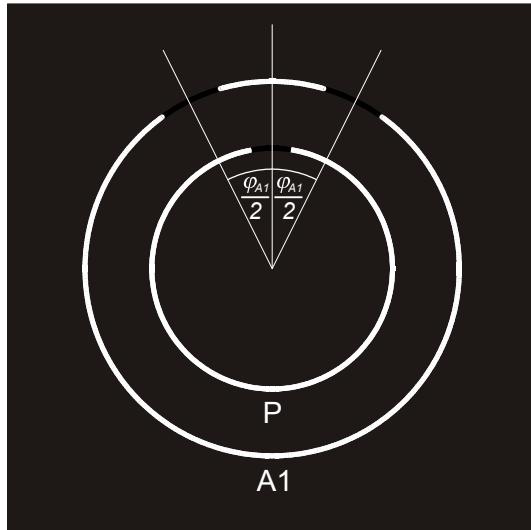


Abbildung 4.4: Skizze zum Abblockverhalten des 1. anti-Stokes-Fernfeldrings. Jeweils links und rechts der Fehlstelle im Pumpring (P) erscheint im 1. anti-Stokes-Ring (A1) ebenfalls eine Fehlstelle im Abstand $\varphi_{A1}/2$.

Berücksichtigt man zusätzlich die Divergenz ε_{SI} des 1. Stokes-Flecks, so können die Fehlstellen in einem Winkelbereich von φ_{A1}^- bis φ_{A1}^+ auftreten, der sich berechnen lässt, wenn man in Gleichung (4.12) die Divergenz ε_{SI} berücksichtigt:

$$\varphi_{A1}^\pm = 2 \arccos \left(\frac{k_{A1} \sin \left[\arccos \left(\frac{2k_p \cos \vartheta_p - k_{SI}}{k_{A1}} \right) \right] \pm k_{SI} \sin \varepsilon_{SI}}{2k_p \sin \vartheta_p} \right). \quad (4.13)$$

4.2.3 Messungen

In den vorangegangenen Kapiteln 4.2.1 und 4.2.2 haben wir den Konuswinkel der 1. anti-Stokes aus der longitudinalen Wellenvektoranpassung berechnet, wobei neben zwei Pump-photonen entweder ein 1. Stokes-Photon der M_{00} -Mode oder des 1. Stokes-Flecks beteiligt ist. Für eine exakte Phasenanpassung muss aber nicht nur die longitudinale (Gleichung (4.6) bzw. (4.9)) sondern auch die transversale Wellenvektoranpassung (Gleichung (4.7) bzw. (4.10)) erfüllt sein. Diese Konstellation ist allerdings planar nur für jeweils einen exakten Pumpkonuswinkel möglich, erst durch die Berücksichtigung von aplanaren Prozessen ergibt sich eine exakte Phasenanpassung auch bei größeren Pumpwinkeln.

Den Vergleich dieser Ergebnisse mit den Messungen des 1. anti-Stokes-Winkels ϑ'_{A1} in Abhängigkeit vom Pumpwinkel ϑ'_p zeigt Abbildung 4.5a, welche mit dem in Kapitel 3 beschriebenen Versuchsaufbau gewonnen wurden. Mit gestrichelten Linien ist die longitudinale (L) bzw. transversale (T) Wellenvektoranpassung mit der 1. Stokes- M_{00} -Mode nach den Gleichungen (4.6) bzw. (4.7) eingezeichnet. Man kann gut erkennen, dass die zugehörigen Messpunkte (Dreiecke) dem Verlauf der longitudinalen Wellenvektoranpassung folgen. Hier ist anzumerken, dass dieser 1. anti-Stokes-Konus sehr schwach ist und nur unter speziellen Bedingungen sichtbar war, weshalb dieser Fernfeldring wohl auch in [Gad99] nicht auftaucht. Die Acetonküvette musste hier nämlich so positioniert werden, dass sich das Eingangsfenster etwa im Intensitätsmaximum der Strahlachse befand und mit einer maximalen Energie von ca. 2,7 mJ gepumpt wurde. Aufgrund der sehr geringen Intensität dieser 1. anti-Stokes war es hier nicht möglich, die beschriebenen Abblock-Versuche durchzuführen, um experimentell die exakte aplanare Phasenanpassung zu überprüfen. Aber unterhalb des oben berechneten Grenzwinkels von $\vartheta'_p = 27,2$ mrad (Schnittpunkt von transversaler und longitudinaler Kurve), wo keine exakte Phasenanpassung mehr möglich ist, konnte dieser sonst sehr schwache 1. anti-Stokes-Ring überhaupt nicht mehr beobachtet werden.

Weiterhin sind in Abbildung 4.5a die Gleichungen (4.9) bzw. (4.10) für die longitudinale (L) bzw. transversale (T) Wellenvektoranpassung mit dem 1. Stokes-Fleck als durchgezogene Linien eingezeichnet. Auch hier ist die Übereinstimmung der Messwerte (Kreise) gut zu erkennen. Wie zu erwarten war, zeigt sich dieser 1. anti-Stokes-Konus auch wesentlich intensiver, da auch der 1. Stokes-Fleck deutlich intensiver als die M_{00} -Mode auftritt. Hier war es auch möglich, bis hinab zu einem Pumpwinkel $\vartheta'_p = 35$ mrad diese 1. anti-Stokes-Mode zu detektieren, obwohl unterhalb von $\vartheta'_p = 59,5$ mrad keine exakte Phasenanpassung auftreten kann.

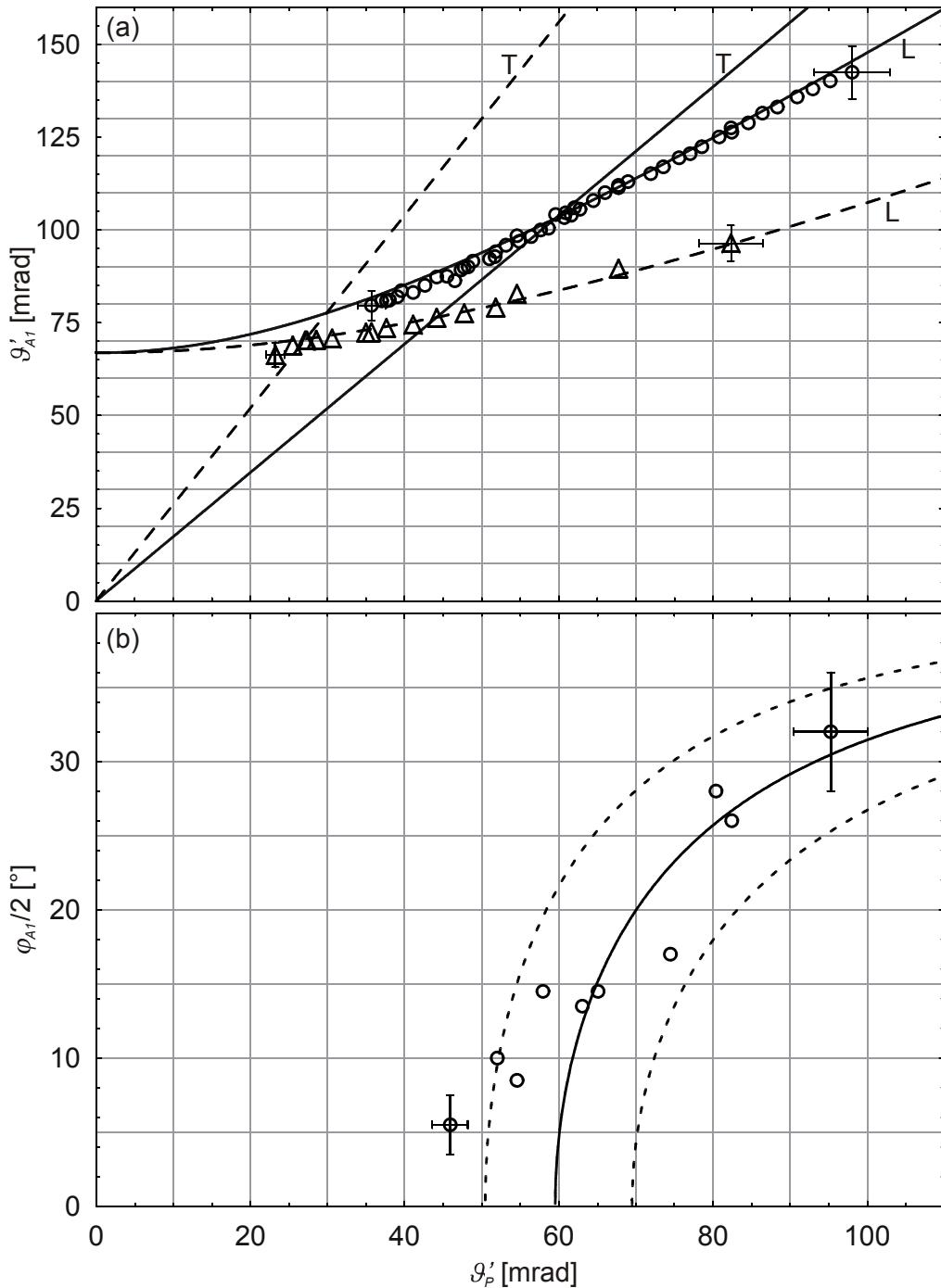


Abbildung 4.5: (a) Konuswinkel ϑ'_{A1} des 1. anti-Stokes-Konus in Abhängigkeit vom Pumpwinkel ϑ'_P . Die Kreise bzw. Dreiecke stellen die Messpunkte dar, die vom 1. Stokes-Fleck bzw. vom der konischen 1. Stokes-Mode generiert werden. Die durchgezogenen Kurven L bzw. T zeigen die Gleichungen (4.9) bzw. (4.10), die gestrichelten Kurven L bzw. T zeigen die Gleichungen (4.6) bzw. (4.7). (b) Azimuthaler Winkel $\varphi_{A1}/2$ des 1. anti-Stokes-Konus in Abhängigkeit vom Pumpwinkel ϑ'_P . Die Kreise repräsentieren die Messpunkte. Die durchgezogene und gestrichelten Kurven zeigen Gleichung (4.12), wobei bei den gestrichelten die Divergenz $\varepsilon_{s1} = 7$ mrad des 1. Stokes-Flecks berücksichtigt wurde.

Um nachzuweisen, dass eine exakte aplanare Phasenanpassung stattfindet, wurden zusätzlich die bereits erwähnten Abblock-Experimente für verschiedene Pumpwinkel ϑ'_p durchgeführt (Abbildung 4.5b). Die gemessenen Zwischenwinkel der Fehlstellen im 1. anti-Stokes-Fernfeldring sind als Kreise, Gleichung (4.12) als durchgezogene Linie eingezeichnet. Die gestrichelten Kurven stellen Gleichung (4.12) unter Berücksichtigung der 1. Stokes-Fleckdivergenz $\varepsilon_{S1} = 7$ mrad dar. Mit Ausnahme des Punktes bei $\vartheta'_p = 45$ mrad liegen alle Zwischenwinkel φ_{A1} in dem geforderten Bereich. Für Pumpwinkel kleiner als 45 mrad konnte keine Reaktion des 1. anti-Stokes-Ringes auf ein teilweises Abblocken des Pumpbündels festgestellt werden. Dass knapp unterhalb der theoretischen Grenze immer noch deutlich erkennbare Fehlstellen mit einem Zwischenwinkel $\varphi_{A1} > 0$ auftreten, wurde auch in Wasserstoffgas beobachtet ([Sog99]) und konnte auch dort nicht ganz zufriedenstellend mit der Divergenz des 1. Stokes-Flecks erklärt werden.

Die Ursache für die relativ großen Fehler bei dieser Messung ist die Inhomogenität in der azimutalen Intensitätsverteilung im 1. anti-Stokes-Ring. Dadurch, dass auch ohne ein Abblocken des Pumpbündels schon Stellen vorhanden sind, die sehr schwach sind (siehe Abbildung 4.2), war es teilweise schwierig, die genaue Position einer oder beider Fehlstellen und damit den Zwischenwinkel φ_{A1} zu bestimmen.

Zusammenfassend kann also gesagt werden, dass die 1. anti-Stokes sowohl durch den 1. Stokes-Fleck als auch durch die 1. Stokes-M₀₀-Mode generiert werden kann, was bisher noch nirgends gezeigt wurde. Der Konuswinkel ϑ_{A1} folgt dabei im untersuchten Winkelbereich immer der longitudinalen Wellenvektoranpassung, egal ob eine exakte Phasenanspannung möglich ist oder nicht. Im Falle der exakten Phasenanspannung wurde eindeutig gezeigt, dass diese aplanar verläuft, ob unterhalb des Grenzpumpwinkels $\vartheta'_p = 59,5$ mrad, bei dem die Wellenvektoren planar liegen, die Generation der 1. anti-Stokes planar oder aplanar verläuft, konnte experimentell leider nicht geklärt werden.

4.3 2. anti-Stokes-Streuung

Die Generation von 2. anti-Stokes-Streuung, wie sie in [Vai00] auch schon untersucht wurde, verläuft nicht ganz so einfach wie die der 1. anti-Stokes. Berücksichtigt man die Energieerhaltung, so existieren drei Terme, die eine Polarisierung bei der Frequenz der 2. anti-Stokes erzeugen:

$$(1) E_{A1} E_P E_{S1}^*$$

$$(2) E_{A1}^2 E_P^*$$

$$(3) E_P^2 E_{S2}^*$$

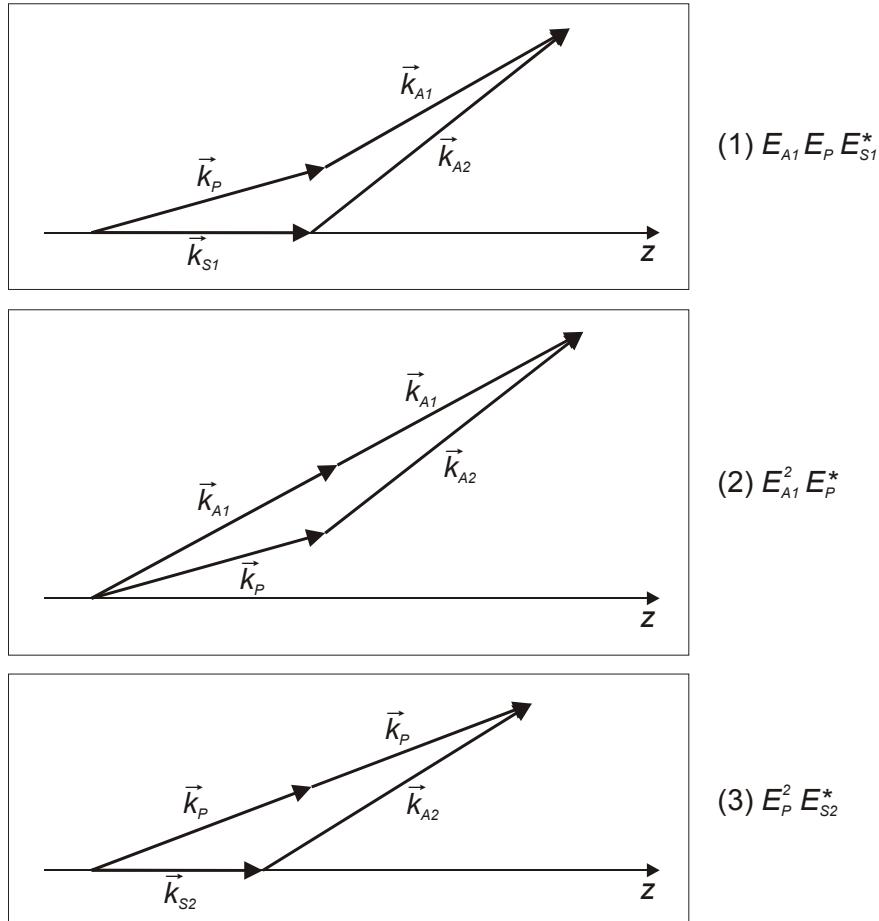


Abbildung 4.6: Mögliche Wellenvektorgeometrien für die Erzeugung der 2. anti-Stokes-Komponente. Rechts ist jeweils der Term angegeben, der die entsprechende Polarisation generiert.

Für alle drei Prozesse sind in Abbildung 4.6 die geometrischen Verhältnisse kurz skizziert.

Im Prinzip könnte in Term 1 sowohl das Feld der 1. Stokes-M₀₀-Mode als auch das des 1. Stokes-Flecks eingehen. Da wir aber bereits in den vorangegangen Abschnitten gesehen haben, dass zum einen der 1. Stokes-Fleck wesentlich intensiver als die konusförmige M₀₀-Mode auftritt und zum anderen auch die aus dem Fleck generierte 1. anti-Stokes deutlich stärker erscheint, wollen wir für E_{S1} nur das Feld des 1. Stokes-Flecks und für E_{A1} nur die durch den Fleck generierte 1. anti-Stokes berücksichtigen, um die 2. anti-Stokes zu berechnen.

Die Generation der 2. anti-Stokes über Term 2 durch den 1. anti-Stokes- und den Pumpkonus verläuft analog zur Generation der 1. anti-Stokes durch zwei Pumpvektoren und einem 1. Stokes-Vektor. Deshalb können hier die Gleichungen aus Abschnitt 4.2.1 verwendet werden, wobei $A1$ durch $A2$, P durch $A1$ und $S1$ durch P ersetzt werden muss. Allerdings kann man bereits im Vorfeld vermuten, dass die 2. anti-Stokes-Erzeugung über den Term $E_{A1}E_P E_{S1}^*$ dominieren wird, da das Feld E_{S1} des 1. Stokes-Flecks wesentlich intensiver ist als das Feld E_{A1} des 1. anti-Stokes-Konus.

Term 3 wurde in der Veröffentlichung von Vaicaitis et al. [Vai00] benutzt, um die Erzeugung der 2. anti-Stokes und der 2. Stokes mit einem Bessel-Pumpbündel in Aceton zu erklären. Obwohl auch hier die Energieerhaltung erfüllt wäre, gibt es diverse Argumente, diesen Prozess auszuschließen, welche wir im Anschluss an die beiden anderen Terme kurz diskutieren wollen.

4.3.1 Polarisation proportional zu $E_{A1}E_P E_{S1}^*$

Die Bedingung für die Wellenvektoranpassung für Term 1 ist gegeben durch die Vektorgleichung

$$\vec{k}_P + \vec{k}_{A1} = \vec{k}_{S1} + \vec{k}_{A2}, \quad (4.14)$$

woraus wie üblich die Gleichungen für die longitudinale und transversale Wellenvektoranpassung gewonnen werden können. Daraus lässt sich der Winkel

$$\vartheta_{A2} = \arccos \left[\frac{k_p \cos \vartheta_p + k_{A1} \cos \vartheta_{A1} - k_{S1}}{k_{A2}} \right] \quad (4.15)$$

berechnen, bei dem die 2. anti-Stokes die longitudinale Anpassung der Wellenvektoren erfüllt. Vernachlässigt man wieder die Divergenz des 1. Stokes-Flecks, so ergibt sich für die transversale Wellenvektoranpassung der Konuswinkel

$$\vartheta_{A2} = \arcsin \left[\frac{k_p \sin \vartheta_p + k_{A1} \sin \vartheta_{A1}}{k_{A2}} \right], \quad (4.16)$$

wobei in Gleichung (4.15) und (4.16) für ϑ_{A1} jeweils der Konuswinkel der 1. anti-Stokes aus Gleichung (4.9) einzusetzen ist, der durch den 1. Stokes-Fleck entsteht.

Aus Gleichung (4.15) und (4.16) berechnet sich jetzt der Pumpwinkel, bei dem eine exakte planare Phasenanpassung auftritt zu $\vartheta_p = 52,4 \text{ mrad}$ ($\vartheta'_p = 71,4 \text{ mrad}$). Für größere Pumpwinkel ist wieder eine exakte aplanare Phasenanpassung möglich. Abbildung 4.7 zeigt, wie die transversalen Wellenvektoren der Pump-, 1. anti-Stokes- und 2. anti-Stokes-Komponenten für den aplanaren Fall aussehen. Wir nehmen wieder an, dass die Divergenz des 1. Stokes-Flecks vernachlässigt werden kann, weshalb die Komponente ($\vec{k}_{S\perp} = 0$) für die transversale Anpassung nicht auftaucht und nur $\vec{k}_{P\perp} + \vec{k}_{A1\perp}$ mit $\vec{k}_{A2\perp}$ angepasst werden müssen. Um die transversalen Verhältnisse besser beschreiben zu können, wollen wir zunächst die Winkel φ_1 bzw. φ_2 berechnen, die als Winkel zwischen dem transversalen Pumpvektor $\vec{k}_{P\perp}$ und dem 1. anti-Stokes-Vektor $\vec{k}_{A1\perp}$ bzw. dem 2. anti-Stokes-Vektor $\vec{k}_{A2\perp}$ definiert sind. Man erhält

$$\varphi_1 = \arcsin \left[\frac{k_{A2} \sin \vartheta_{A2}}{k_{A1} \sin \vartheta_{A1}} \sin \varphi_2 \right] \quad (4.17)$$

mit

$$\varphi_2 = \arccos \left[\frac{k_{A2}^2 \sin^2 \vartheta_{A2} + k_p^2 \sin^2 \vartheta_p - k_{A1}^2 \sin^2 \vartheta_{A1}}{2k_p k_{A2} \sin \vartheta_p \sin \vartheta_{A2}} \right]. \quad (4.18)$$

Mit diesen Winkeln können wir nun das Abblockverhalten der 2. anti-Stokes besser diskutieren, das wir benötigen werden, um die verschiedenen Erzeugungsmechanismen der 2. anti-Stokes unterscheiden zu können. In Abbildung 4.7a sieht man, dass in y -Richtung ein kleiner Teil des Pumpkonus fehlt, wodurch zwangsläufig auch im 2. anti-Stokes-Konus eine Fehlstelle unter dem Winkel φ_2 auftritt. Betrachten wir jedoch die Wellenvektor-konfiguration in Abbildung 4.7b, die bezüglich der $\vec{k}_{A2\perp}$ -Richtung symmetrisch zu Abbildung 4.7a ist, so liefert uns diese Anordnung keine Fehlstelle sondern überall Helligkeit im 2. anti-Stokes-Ring. Überlagert man nun beide Vektorkombinationen, da ja beide an der Erzeugung der 2. anti-Stokes in der Richtung φ_2 beteiligt sind, so führt das Abblocken eines kleinen Bereichs im Pumpkonus in der 2. anti-Stokes nur zu einer Stelle geringerer Intensität und nicht zu einer richtigen Fehlstelle (Abbildung 4.7c). Aus Symmetriegründen tritt eine solche Stelle mit reduzierter Intensität natürlich auch bei dem Winkel $-\varphi_2$ auf, diese ist jedoch aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht in Abbildung 4.7c eingezeichnet. Das Problem ist nun, dass eine solche Stelle geringer Intensität im Experiment kaum zu erkennen ist, da der 2. anti-Stokes-Fernfeldring bereits ohne Abblocken des Pumpbündels starke azimuthale Intensitätsschwankungen aufweist (siehe Abbildung 4.2). Deshalb wurde im Experiment ein wesentlich größerer azimuthaler Win-

kel (ca. 40°) des Pumpkonus geblockt. Dadurch entstehen in der 2. anti-Stokes zwei deutlich größere Winkelbereiche geringer Intensität. Überlappen sich diese Bereiche, so entsteht dort eine echte Fehlstelle, d. h. eine Stelle mit der Intensität null (Abbildung 4.7d). Diese lässt sich im Experiment wesentlich leichter detektieren.

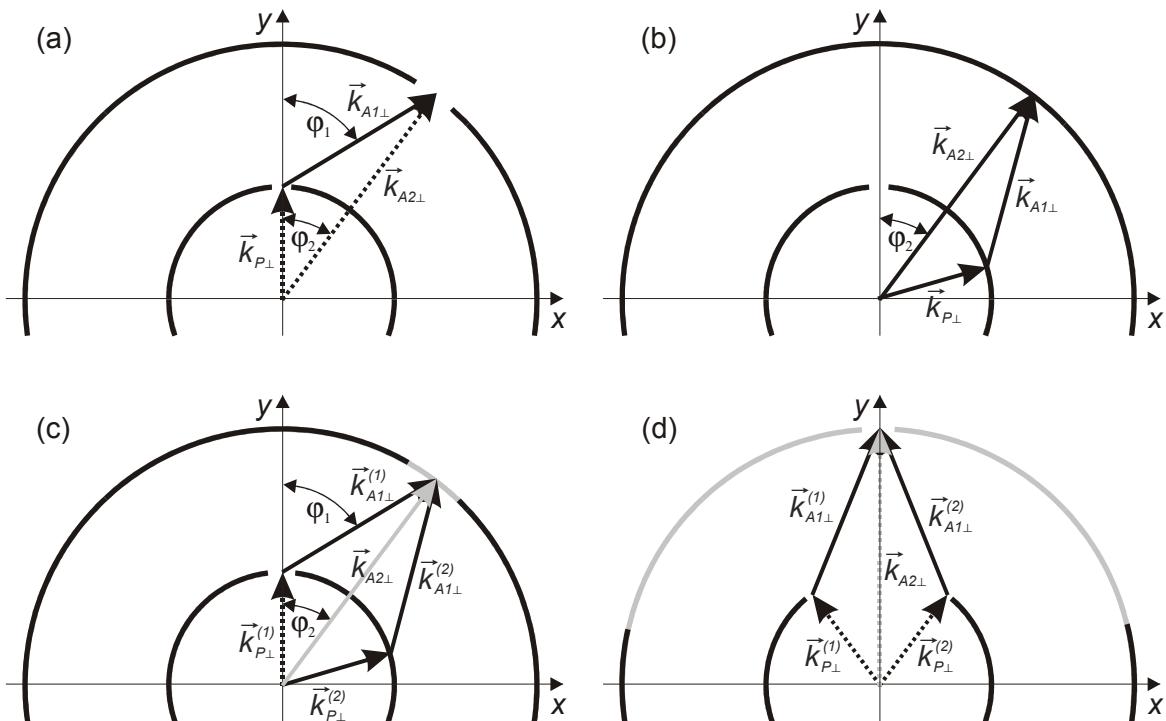


Abbildung 4.7: Transversale Wellenvektorgeometrie zur Erklärung des Abblockverhaltens der 2. anti-Stokes, wie sie vom Pumpkonus, 1. Stokes-Fleck und 1. anti-Stokes-Konus erzeugt wird. (a) Der fehlende Pumpvektor $\vec{k}_{P\perp}$ führt zu einer Fehlstelle im 2. anti-Stokes-Ring bei dem Winkel φ_2 . (b) Bezüglich der $\vec{k}_{A2\perp}$ -Richtung symmetrischer Prozess zu (a), der bei dem Winkel φ_2 Intensität erzeugt. (c) Überlagerung der beiden Prozesse aus (a) und (b) führt zu einer reduzierten Intensität bei φ_2 . (d) Das Abblocken von ca. 40° des Pumpkonus verursacht eine echte Fehlstelle im 2. anti-Stokes-Ring (nähtere Details im Text).

Das eben präsentierte Bild ist jedoch nicht vollständig, da wir vernachlässigt haben, dass das Abblocken des Pumpkonus im Allgemeinen auch zwei Fehlstellen in der 1. anti-Stokes nach sich zieht (siehe Kapitel 4.2.2). Diese erzeugen nun ebenfalls in der 2. anti-Stokes Stellen mit geringerer Intensität, was dazu führt, dass die Anordnung der Fehlstellen im 2. anti-Stokes-Fernfeldring wesentlich komplizierter ist.

Da die Position der Fehlstellen im 2. anti-Stokes-Ring also nicht mehr so einfach wie im 1. anti-Stokes-Ring hergeleitet werden kann, wurde eine numerische Simulation entwickelt, die ein qualitatives Maß für die Intensitätsverteilung des 2. anti-Stokes-Rings liefert. Dazu

wurden alle Winkel in 1° -Schritte unterteilt und nun sämtliche Möglichkeiten, einen transversalen Pump- und 1. anti-Stokes-Vektor zu addieren, durchlaufen. Jedes Mal, wenn dieser Summenvektor die gleiche Länge wie der transversale 2. anti-Stokes-Vektor hat, der sich aus der longitudinalen Wellenvektoranpassung (Gleichung (4.15)) berechnen lässt, wurde die Intensität an der entsprechenden Stelle um eins erhöht. Daraus folgt, dass die Intensität sämtlicher Winkelbereiche im 2. anti-Stokes-Ring, die nicht durch die Summe irgendeines transversalen Pump- und 1. anti-Stokes-Vektors erreicht werden können, bei null bleibt. Als Ergebnis erhält man für jeden der 360 Winkelschritte der 2. anti-Stokes einen zur Intensität proportionalen Wert.

4.3.2 Polarisation proportional zu $E_{A1}^2 E_P^*$

Betrachten wir nun die Polarisation genauer, die proportional zu $E_{A1}^2 E_P^*$ ist. Es handelt sich dabei um den oben erwähnten Term 2, durch den es ebenfalls möglich sein sollte, über einen Vier-Photonen-Prozess Licht bei der Frequenz der 2. anti-Stokes zu erzeugen. Die Bedingung für die Wellenvektoren schreibt sich analog zu Gleichung (4.3)

$$\vec{k}_{A1}^{(1)} + \vec{k}_{A1}^{(2)} = \vec{k}_P + \vec{k}_{A2}, \quad (4.19)$$

d. h., die 1. anti-Stokes fungiert jetzt als Pumplicht. Wir können also sämtliche Gleichungen aus Kapitel 4.2.1 direkt übernehmen, indem wir $A1$ durch $A2$, P durch $A1$ und $S1$ durch P ersetzen. Aus dem bereits erwähnten Grund der wesentlich höheren Intensität wollen wir auch hier nur den 1. anti-Stokes-Konus betrachten, der durch den 1. Stokes-Fleck erzeugt wird (Abschnitt 4.2.2).

Somit lässt sich für die longitudinale Wellenvektoranpassung aus Gleichung (4.19) mit Hilfe von Gleichung (4.9), die den Konuswinkel der 1. anti-Stokes angibt, der Winkel

$$\vartheta_{A2} = \arccos \left[\frac{2k_{A1} \cos \vartheta_{A1} - k_P \cos \vartheta_P}{k_{A2}} \right] \quad (4.20)$$

des 2. anti-Stokes-Konus berechnen. Auch die Möglichkeit der transversalen Wellenvektoranpassung soll nicht außer Acht gelassen werden. Der Konuswinkel der 2. anti-Stokes ergibt sich hier zu

$$\vartheta_{A2} = \arcsin \left[\frac{2k_{A1} \sin \vartheta_{A1} - k_P \sin \vartheta_P}{k_{A2}} \right]. \quad (4.21)$$

Für eine Simulation der Reaktion der 2. anti-Stokes, die durch diesen Prozess entstehen würde, auf ein teilweises Abblocken des Pumpkonus wurde analog verfahren, wie im vorigen Abschnitt 4.3.1 beschrieben.

4.3.3 Polarisation proportional zu $E_P^2 E_{S2}^*$

Vaicaitis et al. [Vai00] nahmen an, dass die 2. anti-Stokes und die 2. Stokes durch einen Vier-Photonen-Prozess der Form

$$\vec{k}_P^{(1)} + \vec{k}_P^{(2)} = \vec{k}_{S2} + \vec{k}_{A2} \quad (4.22)$$

entstehen. Daraus berechneten sie die Konuswinkel der 2. Stokes und 2. anti-Stokes über die longitudinale und transversale Wellenvektoranpassung. Für das Verhalten bezüglich des teilweisen Abblockens des Pumpkonus erwarteten sie, dass der 2. anti-Stokes-Konus an der gleichen Stelle wie der Pumpkonus und der 2. Stokes-Konus an der gegenüberliegenden Seite eine Fehlstelle aufweist.

Aus theoretischer Sicht ergeben sich allerdings Probleme, die von Vaicaitis et al. nicht bedacht wurden. Der treibende Term $E_P^2 E_{S2}^*$ der Molekülschwingung hat die Frequenz $2\omega_0$, wobei ω_0 die Frequenz der Molekülschwingung ist. Deshalb wird auf Grund der Anharmonizität der Schwingung (ca. 114 cm^{-1} , siehe [Nak82]) das 2. Schwingungsniveau ($v = 2$) außer Resonanz angetrieben. Zusätzlich handelt es sich bei diesem Prozess um Raman-Streuung 2. Ordnung, die einen wesentlich kleineren Streuquerschnitt besitzt als Raman-Streuung 1. Ordnung. Somit sollte der von [Vai00] gewählte Vier-Photonen-Prozess deutlich ineffizienter sein als die beiden anderen, die hier diskutiert wurden.

4.3.4 Messungen

Um herauszufinden, welcher der möglichen Prozesse des vorigen Abschnitts im Experiment dominiert, wurde der Konuswinkel ϑ'_{A2} der 2. anti-Stokes für den Pumpwinkelbereich $28 < \vartheta'_p < 100 \text{ mrad}$ gemessen. Die Messpunkte sind in Abbildung 4.8 als Kreise eingezeichnet, um sie mit den Rechnungen für Term 1 und 2 vergleichen zu können.

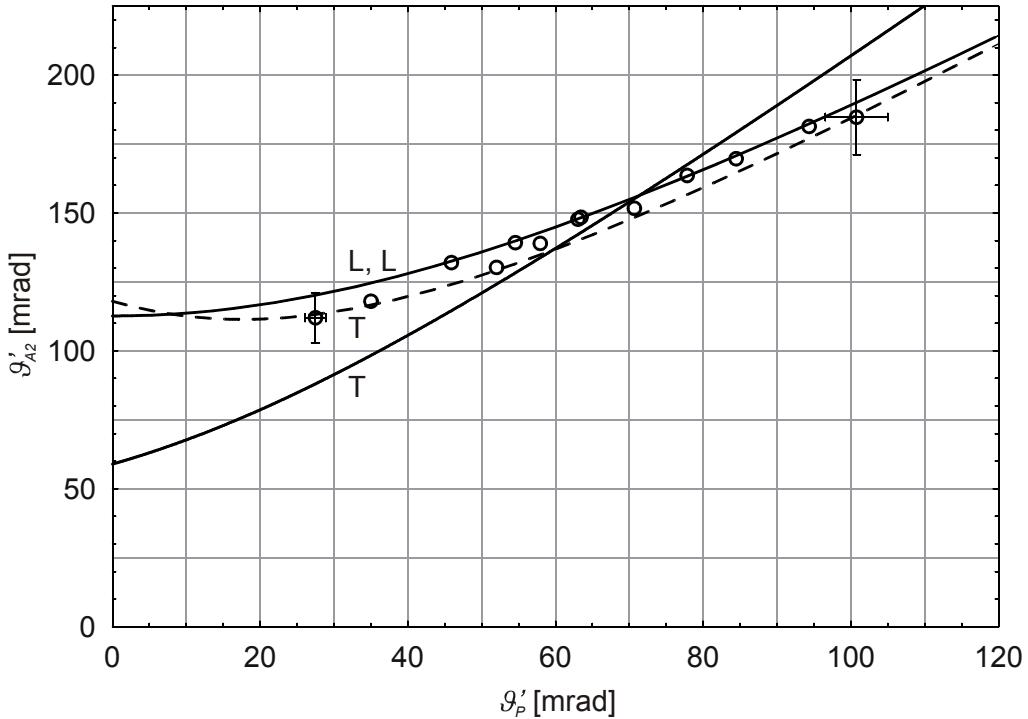


Abbildung 4.8: Konuswinkel ϑ'_{A2} der 2. anti-Stokes in Abhängigkeit vom Pumpwinkel ϑ'_p . Die Kreise stellen die gemessenen Punkte dar. Die durchgezogene bzw. gestrichelte Kurve T zeigt Gleichung (4.16) bzw. (4.21), die identischen Linien L zeigen Gleichung (4.15) und (4.20).

Die Gleichungen (4.15) und (4.20) für den Konuswinkel der 2. anti-Stokes aus der longitudinalen Wellenvektoranpassung sind in Abbildung 4.8 als durchgezogene Kurven L eingezeichnet. Betrachtet man die beiden Gleichungen etwas genauer, sieht man nach dem Einsetzen von Gleichung (4.9) sofort, dass die Gleichungen identisch sind. Die durchgezogene bzw. gestrichelte Kurve T zeigt die Gleichung (4.16) bzw. (4.21) für transversale Wellenvektoranpassung. Man kann erkennen, dass im Rahmen der Fehler die Messpunkte sowohl durch die durchgezogene Kurve L für longitudinale Wellenvektoranpassung als auch durch die gestrichelte Linie T für transversale Anpassung nach Term 2 beschrieben werden. Aus den Erkenntnissen über die 1. anti-Stokes liegt aber die Vermutung nahe, dass der Konuswinkel für die 2. anti-Stokes wiederum durch longitudinale Wellenvektoranpassung beschrieben wird.

Wie wir bereits berechnet haben, tritt exakte planare Phasenanpassung für Term 1 bei dem Schnittpunkt der durchgezogenen Kurven L und T bei einem Pumpwinkel $\vartheta'_p = 71,4$ mrad auf. Exakte aplanare Phasenanpassung ist nur für größere Pumpwinkel möglich. Betrachten wir Term 2 (gestrichelte Kurve T und durchgezogene Kurve L), so sind die zugehörigen Winkel ϑ'_{A2} aus den Gleichungen (4.20) und (4.21) bei den Pumpwinkeln $\vartheta'_p = 8,0$ und

155,5 mrad identisch. Exakte aplanare Phasenanpassung ist hier im Bereich zwischen diesen beiden Winkeln möglich.

Um nun zu entscheiden, welcher der Terme 1 oder 2 dominiert, wurde im Experiment ein azimuthaler Teil des Pumpbündels abgeblockt. Allerdings waren diese Experimente sehr problematisch, da der Fernfeldring der 2. anti-Stokes schon ohne Abblocken des Pumpkonus mehrere dunkle Stellen aufwies. Dies ist auch nicht verwunderlich, da sich Schwankungen in der azimuthalen Intensitätsverteilung des Pumpbündels sowohl direkt als auch verstärkt über die 1. anti-Stokes auf die 2. anti-Stokes auswirken. Um nun brauchbare Ergebnisse zu erhalten, wurde die folgende Prozedur zur Mittelung durchgeführt. Nachdem mit der CCD-Kamera ein Bild der 2. anti-Stokes aufgenommen wurde, wurde die abgeblockte Stelle um ca. 18° weitergedreht, so dass das Pumpbündel nacheinander an insgesamt 20 verschiedenen Stellen um immer den gleichen azimuthalen Teil von ca. 40° abgeblockt wurde. Mit Hilfe des Computers wurden dann diese 20 Bilder addiert, wobei zuvor jedes Bild so gedreht wurde, dass die Fehlstelle im Pumpfernfeldring immer an derselben Position lag. Auf diese Weise konnten die Schwankungen enorm reduziert werden.

Das Ergebnis ist in Abbildung 4.9 zu sehen, wobei die Messung bei einem Pumpkonuswinkel von $\vartheta_p = 80,4$ mrad durchgeführt wurde. Bei entsprechender Wahl der Farbfilter sind wie hier der Pump-, der 1. anti-Stokes- und der 2. anti-Stokes-Ring mit etwa gleicher Intensität sichtbar. Die experimentellen Bilder in Abbildung 4.9a und b sind identisch, wobei in Abbildung 4.9a die Simulation mit Term 1 und in b die Simulation nach Term 2 überlagert ist. Die Berechnung erfolgte wie im vorigen Abschnitt beschrieben, zur klaren Unterscheidung wurde sie etwas verkleinert dargestellt, obwohl mit den richtigen Radien gerechnet wurde.

Die Simulation nach Term 1 (Abbildung 4.9a) zeigt eindeutig drei Fehlstellen des 2. anti-Stokes-Rings, von denen eine an der Stelle der Pumpfehlstelle sitzt und die beiden anderen symmetrisch dazu in einem gewissen Abstand. Wie man gut sehen kann, deckt sie sich in guter Näherung mit der Messung. Lediglich die Größe der Fehlstellen weicht etwas von der Simulation ab. Im Gegensatz dazu ist die Messung in Abbildung 4.9b mit der Simulation nach Term 2 überlagert. Diese zeigt zwei Fehlstellen symmetrisch um die Pumpfehlstelle und zwei ziemlich dunkle Stellen in einem noch größeren Abstand. Diese Merkmale unterscheiden sich eindeutig von der Messung. Vor allem in Richtung der Pumpfehlstelle zeigt die Messung ebenfalls eine Fehlstelle, während die Simulation nach Term 2 hier klar eine intensive 2. anti-Stokes-Streuung erwarten lässt.

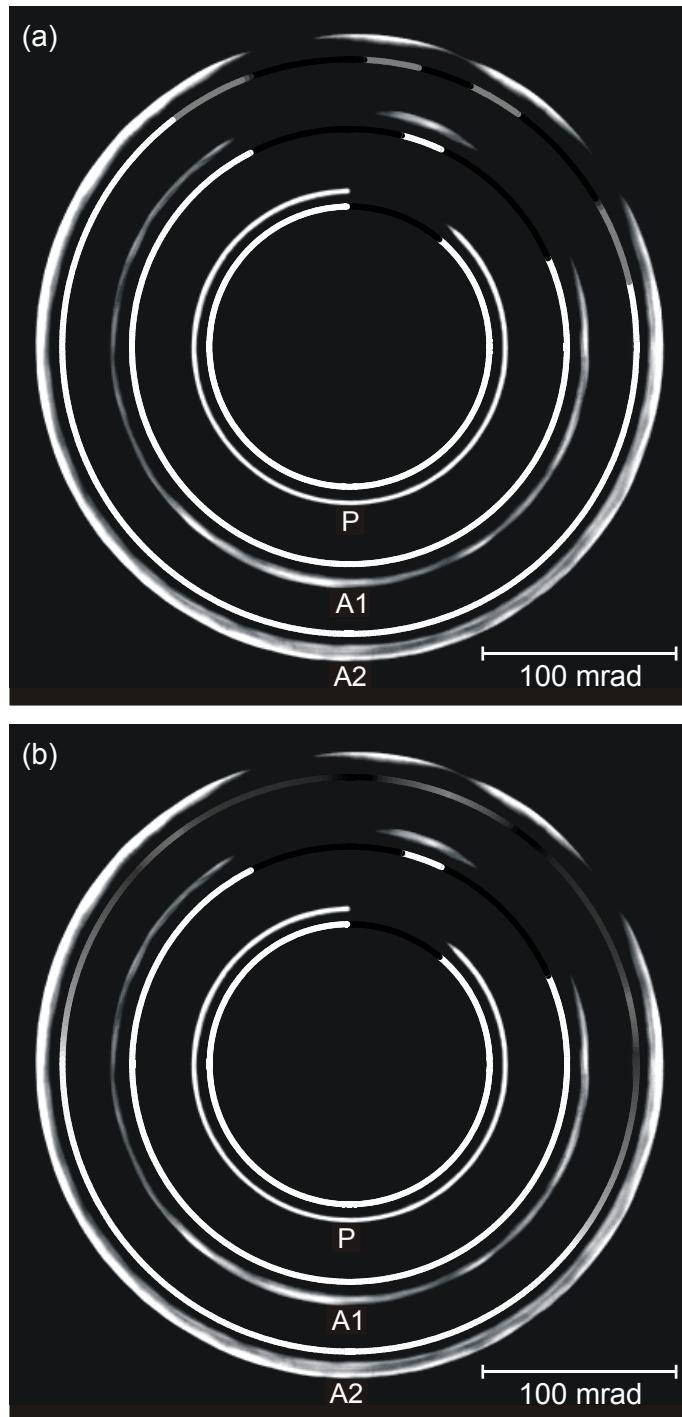


Abbildung 4.9: (a) Gemessene (jeweils außen) und berechnete (jeweils innen) Fernfeldringe für den Pump-, 1. anti-Stokes- und 2. anti-Stokes-Konus, wenn ein azimuthaler Teil des Pumpbündels (Konuswinkel $\vartheta'_p = 80,4 \text{ mrad}$) abgeblockt wird. Als Generationsmechanismus für die 2. anti-Stokes wurde die Polarisation proportional zu (a) $E_{A1} E_p E_{SI}^*$ und (b) $E_{A1}^2 E_p^* E_{SI}^*$ gewählt.

Es wurden noch mehrere dieser Abblockexperimente für die Pumpwinkel ϑ_p' von 65 bis 95 mrad durchgeführt, wobei alle Messungen mit den Berechnungen für Term 1 beschrieben werden konnten. Allerdings zeigt sich hier die gleiche Tendenz wie für die 1. anti-Stokes, nämlich dass auch unterhalb des Pumpwinkels $\vartheta_p' = 71,4$ mrad, bei dem exakte planare Phasenanpassung herrscht, noch exakte aplanare Phasenanpassung auftreten kann. Dies könnte sich wiederum mit der Divergenz des 1. Stokes-Flecks erklären lassen. Trotzdem kann man durch die Abblockexperimente eindeutig den Prozess nach Term 2 ausschließen und damit scheint auch gesichert, dass der Konuswinkel der 2. anti-Stokes durch die longitudinale Phasenanpassung nach Term 1 (durchgezogene Kurve L in Abbildung 4.8) und nicht durch die transversale nach Term 2 (gestrichelte Kurve T in Abbildung 4.8) berechnet werden kann.

Der Vergleich mit der Veröffentlichung von Vaicaitis et al. [Vai00] zeigt, dass in dem Pumpwinkelbereich $52 < \vartheta_p' < 100$ mrad, wo Messdaten zum Konuswinkel der 2. anti-Stokes von [Vai00] und von uns vorliegen, diese im Rahmen der experimentellen Genauigkeit übereinstimmen. Allerdings kann aus den Abblockverhalten der 2. anti-Stokes geschlossen werden, dass im untersuchten Pumpwinkelbereich zwischen 65 und 95 mrad die Theorie von Vaicaitis et al. [Vai00] definitiv falsch ist.

4.4 2. Stokes-Streuung

Die klar dominierende Komponente bei der 2. Stokes-Streuung stellt wie schon bei der 1. Stokes die axiale Streuung in Form eines intensiven 2. Stokes-Flecks dar. Aber auch hier ist eine konusförmige 2. Stokes möglich. Analog zur 2. anti-Stokes-Streuung betrachten wir dazu die nach der Energieerhaltung möglichen Prozesse, die eine Polarisierung bei der Frequenz der 2. Stokes erzeugen:

- (1) $E_p E_{S1} E_{A1}^*$
- (2) $E_{S1}^2 E_p^*$
- (3) $E_p^2 E_{A2}^*$

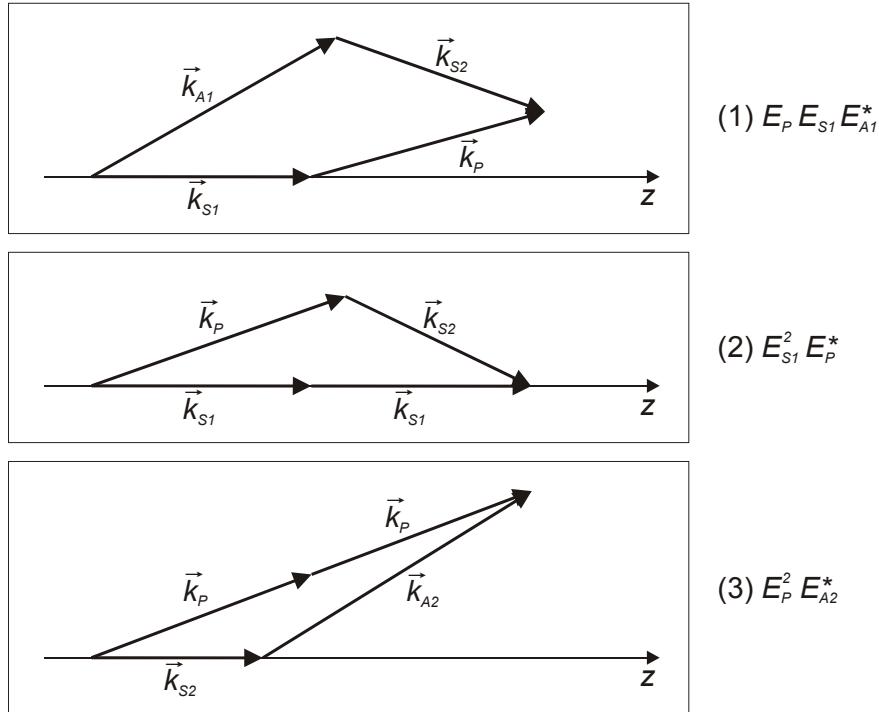


Abbildung 4.10: Mögliche Wellenvektorgeometrien für die Erzeugung der 2. Stokes-Komponente. Rechts ist jeweils der Term angegeben, der die entsprechende Polarisation generiert.

In Abbildung 4.10 sind die geometrischen Verhältnisse der drei Prozesse skizziert. Der Prozess nach Term 3 ist schon aus der Diskussion über die Entstehung der 2. anti-Stokes bekannt. Er wurde von [Vai00] favorisiert, allerdings treffen auch hier die gleichen Argumente wie in Abschnitt 4.3.3 zu, wodurch dieser Prozess theoretisch ausgeschlossen werden kann. Da die wesentlichen Details in Kapitel 4.3.3 bereits aufgeführt wurden, werden wir Term 3 hier nicht näher betrachten. Betrachtet man die Intensitätsverteilung der Felder der 1. Stokes-Streuung, so wollen wir auch hier für Term 1 und 2 als 1. Stokes-Feld nur den 1. Stokes-Fleck und entsprechend für die 1. anti-Stokes den Konus, der durch den 1. Stokes-Fleck erzeugt wird, betrachten. Ähnlich wie zuvor liegt auch hier die Vermutung nahe, dass Term 2 über den ersten dominieren wird, da das Feld E_{S1} des 1. Stokes-Flecks wesentlich intensiver als das Feld E_{A1} des 1. anti-Stokes-Konus ist.

4.4.1 Polarisation proportional zu $E_P E_{S1} E_{A1}^*$

Die Anordnung der Wellenvektoren für diesen Prozess ist gegeben durch

$$\vec{k}_P + \vec{k}_{S1} = \vec{k}_{A1} + \vec{k}_{S2}. \quad (4.23)$$

Damit berechnet sich für die longitudinale Wellenvektoranpassung der Konuswinkel der 2. Stokes-Komponente zu

$$\vartheta_{S2} = \arccos \left[\frac{k_{SI} + k_p \cos \vartheta_p - k_{AI} \cos \vartheta_{AI}}{k_{S2}} \right] \quad (4.24)$$

und für die transversale Phasenanpassung ergibt sich der Konuswinkel

$$\vartheta_{S2} = \arcsin \left[\frac{k_{AI} \sin \vartheta_{AI} - k_p \sin \vartheta_p}{k_{S2}} \right], \quad (4.25)$$

wobei für ϑ_{AI} der 1. anti-Stokes-Winkel aus Gleichung (4.9) verwendet wird. Eine genaue Analyse ergibt, dass für diesen Prozess keine exakte Phasenanpassung möglich ist, egal ob planar oder aplanar. Dies ist ein weiteres Indiz dafür, dass dieser Prozess im Experiment wohl nicht zu sehen ist, da vor allem bei schwachen Prozessen im Bereich der exakten planaren Phasenanpassung immer eine erhöhte bzw. überhaupt eine Streuintensität beobachtet werden konnte (siehe z. B. die 3. Stokes, Kapitel 4.5).

4.4.2 Polarisation proportional zu $E_{SI}^2 E_P^*$

Mit dem Term $E_{SI}^2 E_P^*$ wird die 2. Stokes-Komponente durch einen Vier-Photonen-Prozess mit zwei Photonen des 1. Stokes-Flecks und einem Photon des Pumpbündels generiert. Die beteiligten Komponenten folgen also der Beziehung

$$\vec{k}_{SI}^{(1)} + \vec{k}_{SI}^{(2)} = \vec{k}_P + \vec{k}_{S2}. \quad (4.26)$$

In diesem Prozess fungiert somit der 1. Stokes-Fleck als Pumplicht für die Erzeugung der 2. Stokes-Streuung. Die Geometrie wurde bereits in Abbildung 4.10 gezeigt, womit aus der longitudinalen Wellenvektoranpassung der Konuswinkel

$$\vartheta_{S2} = \arccos \left[\frac{2k_{SI} - k_p \cos \vartheta_p}{k_{S2}} \right] \quad (4.27)$$

und aus der transversalen Anpassung der Winkel

$$\vartheta_{S2} = \arcsin \left[\frac{k_p \sin \vartheta_p}{k_{S2}} \right] \quad (4.28)$$

für die 2. Stokes-Komponente gewonnen werden kann. Setzt man in Gleichung (4.24) aus dem vorigen Abschnitt über Term 1 ϑ_{A1} aus Gleichung (4.9) ein, so kann man auch hier erkennen, dass Gleichung (4.24) und (4.27) identisch sind.

Im Vergleich zu den bis jetzt betrachteten Raman-Komponenten verhält sich die 2. Stokes etwas anders. Der Konuswinkel ϑ_{S2} für die longitudinale Wellenvektoranpassung wird mit steigendem Pumpwinkel ϑ_p kleiner und wird bei dem Pumpwinkel $\vartheta_p = 47,6 \text{ mrad}$ ($\vartheta'_p = 64,8 \text{ mrad}$) null. Exakte planare Phasenanpassung tritt bei der 2. Stokes bei einem Pumpwinkel $\vartheta_p = 30,4 \text{ mrad}$ ($\vartheta'_p = 41,3 \text{ mrad}$) auf, wo die Winkel ϑ_{A2} aus Gleichung (4.27) und (4.28) gleich sind.

Weiterhin ist zu bemerken, dass auf Grund der Geometrie hier keine exakte aplanare Phasenanpassung auftreten kann, solange man die Divergenz des 1. Stokes-Flecks vernachlässigt. Erst wenn man die Divergenz berücksichtigt, ist eine aplanare Konfiguration denkbar. Dementsprechend einfach fällt auch die Reaktion auf ein teilweises Abblocken des Pumpkonus aus. Wie man an der Geometrie (Abbildung 4.10) sieht, sollte die Fehlstelle im 2. Stokes-Konus genau gegenüber der Abblockstelle im Pumpkonus liegen, weil \vec{k}_p und \vec{k}_{S2} in entgegengesetzte Richtungen zeigen.

4.4.3 Messungen

Die Aufnahme der Konuswinkel der 2. Stokes konnte nur mit der CCD-Kamera durchgeführt werden, da die entsprechende Wellenlänge $\lambda_{S2} = 772,62 \text{ nm}$ mit dem Auge nicht mehr sichtbar ist. Die gewonnenen Messdaten sind in Abbildung 4.11 als Kreise dargestellt. Die Kurve L zeigt den Konuswinkel ϑ'_{S2} für die longitudinale Wellenvektoranpassung nach Gleichung (4.27) in Abhängigkeit vom Pumpwinkel ϑ'_p , die Gerade T durch den Ursprung zeigt die transversale Wellenvektoranpassung nach Gleichung (4.28). Zusätzlich zeigt die gestrichelte Kurve T die transversale Wellenvektoranpassung nach Gleichung (4.25) für Term 2. Wie bereits erwähnt, ist die longitudinale Anpassung für Term 1 nach Gleichung (4.24) identisch zu der für Term 2, weshalb es hier auch nicht möglich ist, allein aus der Messung der 2. Stokes-Konuswinkel zwischen den Termen $E_p E_{S1} E_{A1}^*$ und $E_{S1}^2 E_p^*$ zu unterscheiden.

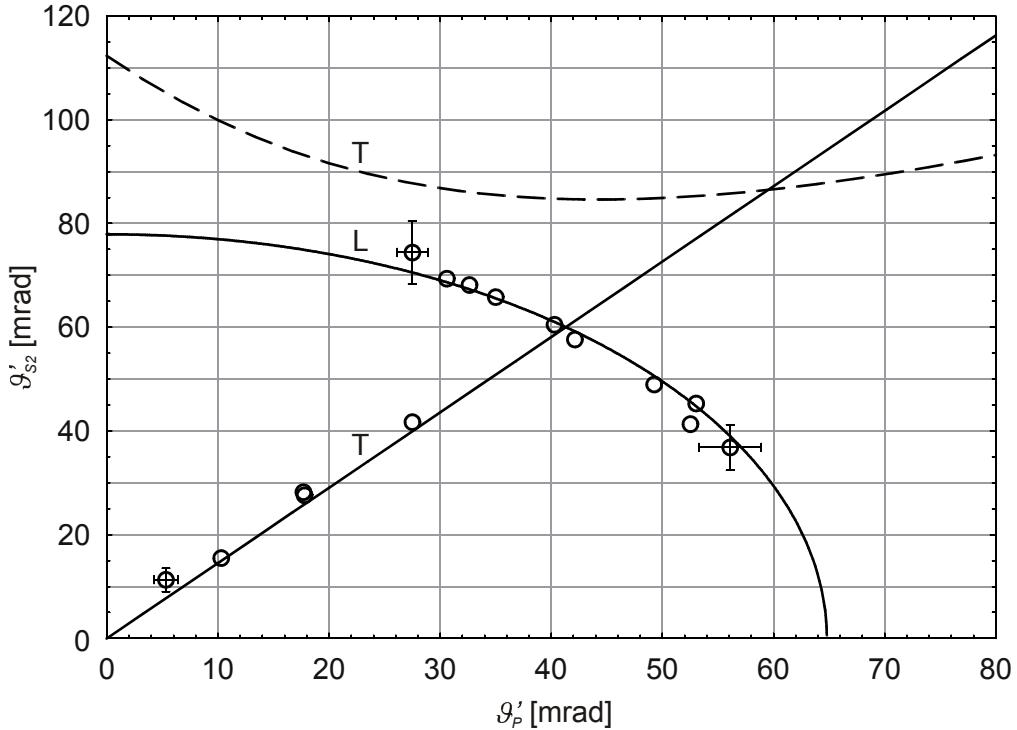


Abbildung 4.11: Konuswinkel ϑ'_{S2} der 2. Stokes in Abhängigkeit vom Pumpwinkel ϑ'_p . Die Kreise stellen die Messpunkte dar, während die durchgezogenen Kurven L bzw. T die Gleichungen (4.27) bzw. (4.28) zeigen. Die gestrichelte Kurve T zeigt Gleichung (4.25).

Allerdings haben wir schon durch die Abwägung der Intensitäten den Term $E_{SI}^2 E_P^*$ bevorzugt. Ein weiterer Hinweis ist jetzt durch die Messpunkte gegeben. Oberhalb von $\vartheta'_p = 27,5$ mrad liegen die Messwerte in Rahmen der Messfehler auf der Kurve für die longitudinale Wellenvektoranpassung, unterhalb folgen sie der transversalen Anpassung nach Term 2, also $E_{SI}^2 E_P^*$. Somit scheint es logisch, dass auch im Bereich oberhalb von $\vartheta'_p = 27,5$ mrad Term 2 der dominierende ist. Bemerkenswert ist hier, dass dies das erste Mal ist, wo sich die Konuswinkel über die transversale Wellenvektoranpassung berechnen lassen. Allerdings konnte bis jetzt nicht geklärt werden, warum ausgerechnet unterhalb eines Pumpwinkel von 27,5 mrad die transversale Wellenvektoranpassung mit der geringeren Pumpleistung auskommt und somit dominierend auftritt.

Auch hier wurde wieder versucht, Abblockexperimente durchzuführen, um die Terme 1 und 2 zu unterscheiden. Allerdings schwankte die azimuthale Intensitätsverteilung bei der 2. Stokes so stark, dass daraus keine gesicherten Daten gewonnen werden konnten. Außerdem konnten bei großen Pumpwinkeln $\vartheta'_p > 55$ mrad auf Grund des intensiven 2. Stokes-Flecks keine 2. Stokes-Konuswinkel beobachtet werden, die kleiner als ca. 40 mrad waren, da es den Anschein hat, als würden diese vom 2. Stokes-Fleck geschluckt werden.

Bezüglich der Veröffentlichung von Vaicaitis et al. [Vai00] kann gesagt werden, dass deren Messwerte zwar mit der Theorie nach Term 3 eine Übereinstimmung zeigen, allerdings konnten wir zeigen, dass die gerechneten Kurven in Abbildung 6(a) aus [Vai00] falsch sind. Dort wurden die in Luft gewonnenen Messwerte mit einer Theoriekurve verglichen, wie sie in Aceton gelten würde. Die Kurve nach Term 3 in Luft, mit der diese Messwerte zu vergleichen wären, liegt um ca. 40 mrad höher und somit deutlich von den Messungen entfernt.

4.5 3. Stokes-Streuung

Auch für die Erzeugung der 3. Stokes sind mehrere Mechanismen denkbar. Wir wollen hier aber nur den Term $E_{S1}E_{S2}E_P^*$ betrachten, da er die intensivste 3. Stokes-Streuung generieren sollte. Bei diesem Prozess wird die 3. Stokes durch den Pumpkonus, den 1. Stokes-Fleck und den 2. Stokes-Fleck erzeugt. Die Bedingung für die Wellenvektoranpassung lautet

$$\vec{k}_{S1} + \vec{k}_{S2} = \vec{k}_P + \vec{k}_{S3}, \quad (4.29)$$

eine Skizze der Wellenvektorgeometrie ist in Abbildung 4.12 zu sehen.

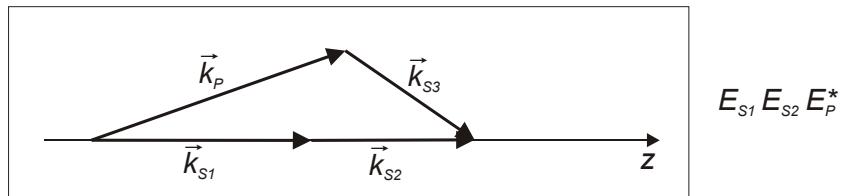


Abbildung 4.12: Wellenvektorgeometrie für die Erzeugung der 3. Stokes-Komponente. Rechts ist der Term angegeben, der die entsprechende Polarisation generiert.

Mit der üblichen Vorgehensweise kann daraus die longitudinale Wellenvektoranpassung abgeleitet werden, was zu folgender Gleichung für den Konuswinkel der 3. Stokes führt:

$$\vartheta_{S3} = \arccos \left[\frac{k_{S1} + k_{S2} - k_P \cos \vartheta_P}{k_{S3}} \right]. \quad (4.30)$$

Ebenso wird daraus der Konuswinkel für die transversale Wellenvektoranpassung berechnet:

$$\vartheta'_{S3} = \arcsin \left[\frac{k_p \sin \vartheta_p}{k_{S3}} \right]. \quad (4.31)$$

Eine aplanare Wellenvektorgeometrie ist bei diesem Prozess nicht möglich, solange man die Divergenz von 1. und 2. Stokes-Fleck vernachlässigt.

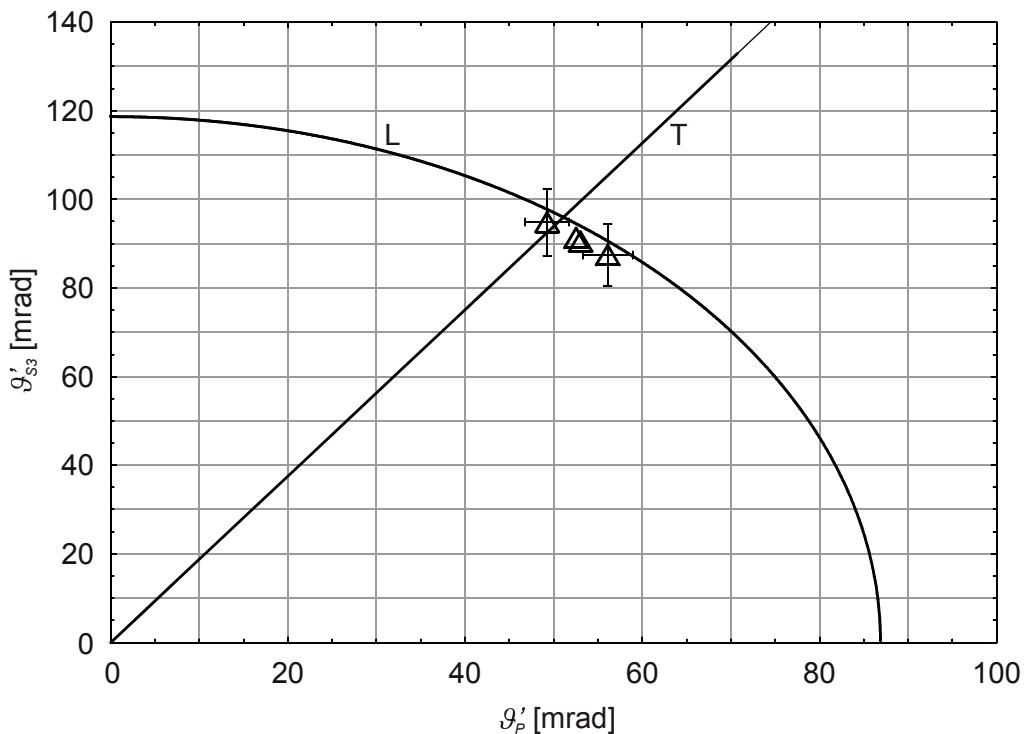


Abbildung 4.13: Konuswinkel ϑ'_{S3} der 3. Stokes in Abhängigkeit vom Pumpwinkel ϑ'_p . Die Dreiecke stellen die Messpunkte dar, die Kurven L bzw. T zeigen die Gleichungen (4.30) bzw. (4.31).

Abbildung 4.13 zeigt die nach Gleichung (4.30) bzw. (4.31) berechneten Kurven L bzw. T, die Messpunkte sind als Dreiecke markiert. Leider konnte im Experiment der 3. Stokes-Konus nur im Pumpwinkelbereich von 49 bis 56 mrad beobachtet werden, für größere und kleinere Winkel wäre eine höhere Pumpleistung vonnöten gewesen. Doch für den beobachteten Bereich werden die Winkel gut durch die Kurve L beschrieben, die die longitudinale Wellenvektoranpassung zeigt. Sie weist übrigens einen ähnlichen Verlauf wie die longitudinale Anpassung bei der 2. Stokes auf, allerdings sind die 3. Stokes-Winkel etwas größer und erst ab $\vartheta_p = 63,8$ mrad ($\vartheta'_p = 86,9$ mrad) ist keine longitudinale Wellenvektoranpassung mehr möglich. Man erkennt hier auch klar, dass der Bereich um den Punkt der exak-

ten planaren Phasenanpassung bei einem Pumpwinkel $\vartheta_p = 37,5 \text{ mrad}$ ($\vartheta'_p = 51,1 \text{ mrad}$) von der 3. Stokes-Streuung bevorzugt wird.

4.6 Raman-Streuung mit ns-Pulsen

Ursprünglich wurde für die stimulierte Raman-Streuung in Aceton das ps-Lasersystem gewählt, da in Aceton beim Pumpen mit dem ns-System stimulierte Brillouin-Streuung auftritt. Da sich aber auf den ersten Blick die stimulierte Raman-Streuung in Aceton und Wasserstoff sehr unterschiedlich zeigte, wurden ergänzende Messungen mit Aceton und ns-Pulsen durchgeführt, da auch sämtliche Messungen zur Raman-Streuung in Wasserstoff mit Pulslängen im ns-Bereich durchgeführt wurden.

Mit Ausnahme des verwendeten Lasers wurde das Experiment identisch zu den Messungen mit ps-Pulsen aufgebaut (Abbildung 3.1). Um die stimulierte Brillouin-Streuung zu minimieren, wurde der Seeder (Kapitel 3) abgeschaltet. Dies führt dazu, dass der ns-Laser nicht mehr auf einer Mode läuft und somit das zeitliche Puluprofil sehr unregelmäßig wird. Dies reduzierte die Intensität der stimulierten Brillouin-Streuung erheblich, sie war aber trotzdem noch deutlich vorhanden.

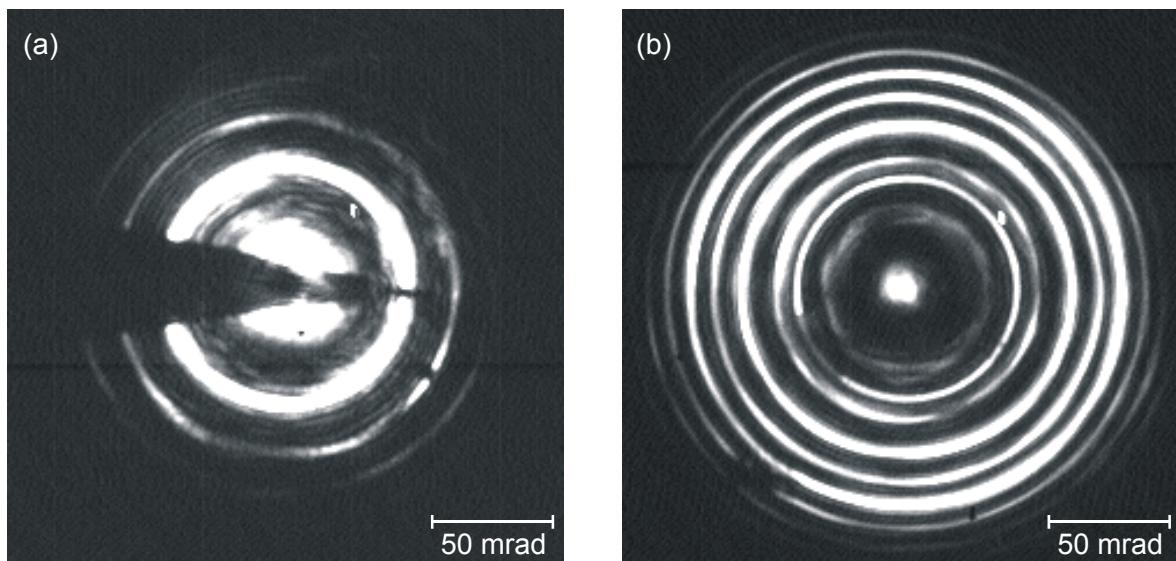


Abbildung 4.14: (a) 1. Stokes und (b) 1. anti-Stokes-Fernfeldbilder in Aceton bei einem Pumpkonuswinkel $\vartheta'_p = 45 \text{ mrad}$. Der schwarze Keil in (a) dient zum Abdecken des zentralen 1. Stokes-Flecks, um die CCD-Kamera zu schützen.

Im Hinblick auf den Vergleich mit Wasserstoff werden hier nur die Raman-Komponenten 1. Ordnung, also die 1. Stokes und 1 anti-Stokes, untersucht, da zu Raman-Komponenten höherer Ordnung in Wasserstoffgas kaum Daten vorliegen. Die Messungen wurden bei verschiedenen Pumpwinkeln ϑ_p' von 30 bis 70 mrad durchgeführt. Abbildung 4.14 zeigt die Fernfelder der 1. Stokes (a) und der 1. anti-Stokes (b), wie sie bei einem Pumpkonuswinkel $\vartheta_p' = 45$ mrad auftreten. Der zentrale 1. Stokes-Fleck wurde größtenteils abgedeckt, um die Empfindlichkeit der CCD-Kamera für die schwachen Fernfeldringe ausnutzen zu können. Wir sehen ansonsten einen intensiven Ring, dessen Konuswinkel $\vartheta_{S1}' = 49$ mrad mit dem der M_{00} -Mode nach Gleichung (4.2) übereinstimmt. Zusätzlich treten noch Ringe bei $\vartheta_{S1}' = 70, 85$ und 141 mrad auf, wobei der letzte in Abbildung 4.14a nicht zu sehen ist, er wurde nur auf der Leinwand beobachtet.

Auch die 1. anti-Stokes (Abbildung 4.14b) zeigt sich mit einer Vielzahl von Fernfeldringen. Es ist ein deutlicher zentraler Fleck und ein unscharfer innerer Ring mit $\vartheta_{A1}' = 34$ mrad erkennbar, die bei den Untersuchungen mit ps-Pulsen nie aufgetaucht sind. Bei dem nächsten scharfen Ring handelt es sich um den Fernfeldring des Pumpbündels, aber alle weiteren Ringe mit den Konuswinkeln $\vartheta_{A1}' = 54, 69, 80, 89, 98, 106$ und 114 mrad haben die Wellenlänge der 1. anti-Stokes.

Eine Auftragung im bisherigen Stil wäre ziemlich unübersichtlich, weshalb wir auf die in Kapitel 2.3 vorgestellte Methode zurückgreifen. Die Auftragung des normierten 1. anti-Stokes-Winkels ψ_{A1} gegen den ebenfalls normierten 1. Stokes-Winkel ψ_{S1} eignet sich hier hervorragend, um die vielen Fernfeldringe der 1. anti-Stokes zuzuordnen. In Abbildung 4.15 sehen wir das ψ_{A1} - ψ_{S1} -Diagramm, die schwarzen Kurven zeigen die vier Möglichkeiten der transversalen Wellenvektoranpassung und der longitudinalen Anpassung. Die grauen senkrechten Linien geben die normierten Winkel an, bei denen experimentell eine 1. Stokes-Streuung auftritt, die waagrechten zeigen das Auftreten der 1. anti-Stokes. Überall dort, wo sich nun eine senkrechte Linie der 1. Stokes und eine schwarze Kurve der transversalen oder longitudinalen Wellenvektoranpassung kreuzen, ist nach der Theorie eine 1. anti-Stokes-Streuung bei dem Winkel des Kreuzungspunktes möglich. Die Punkte, an denen zusätzlich waagrechte graue Linien durchgehen und somit die 1. anti-Stokes auch im Experiment beobachtet wurde, sind mit einem schwarzen Kreis gekennzeichnet.

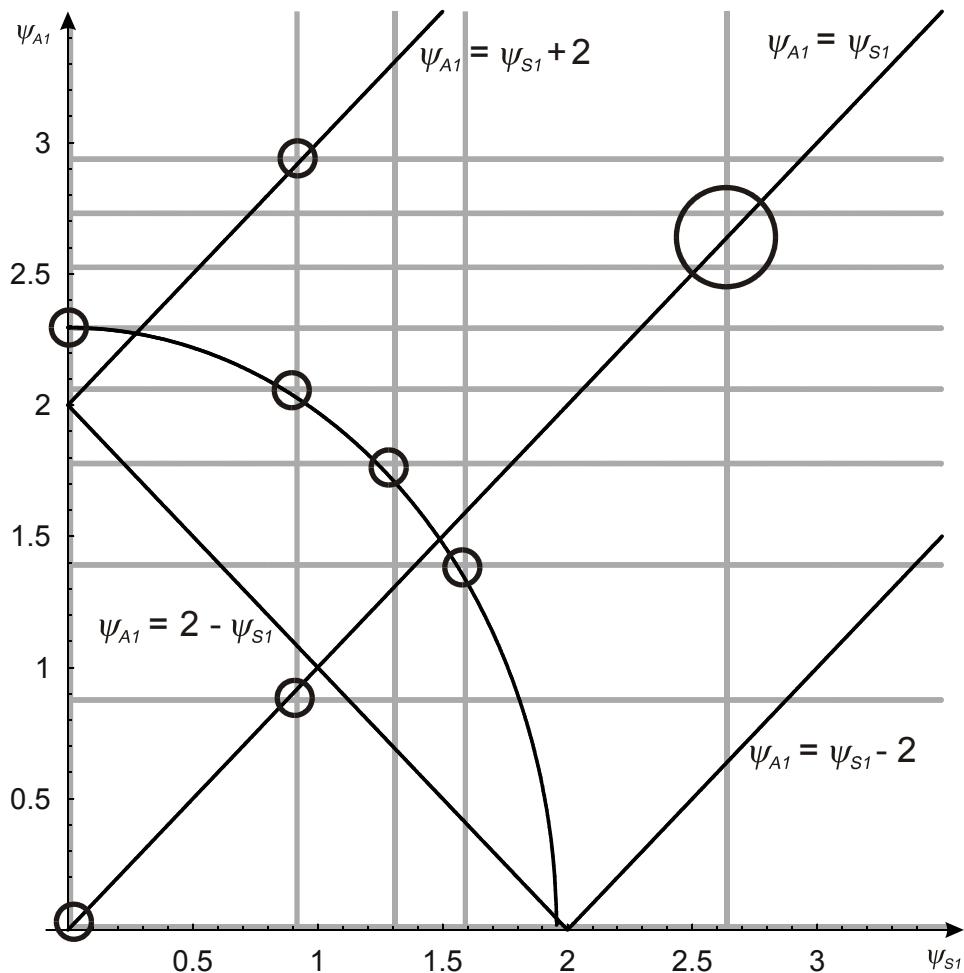


Abbildung 4.15: ψ_{A1} - ψ_{S1} -Diagramm zur Zuordnung der normierten Konuswinkel der 1. anti-Stokes zu den Winkeln der 1. Stokes in Aceton.

Wie man sehen kann, lassen sich der zentrale 1. anti-Stokes-Fleck bzw. der innerste Konus mit der transversalen Wellenvektoranpassung mit dem 1. Stokes-Fleck bzw. der 1. Stokes- M_{00} -Mode ($\psi_{S1} \approx 1$) erklären. Die nächsten vier 1. anti-Stokes-Ringe werden durch die longitudinale Wellenvektoranpassung mit den verschiedenen 1. Stokes-Ringen erzeugt. Schwieriger wird es mit den letzten drei Ringen: während sich der größte noch mit transversaler Phasenanpassung mit der 1. Stokes- M_{00} -Mode erklären lässt, ist bei den anderen beiden unklar, ob überhaupt einer der Ringe und, falls doch, welcher durch den größten 1. Stokes-Ring verursacht wird.

Wie wir sehen, lassen sich fast alle Konuswinkel der 1. anti-Stokes gut mit dem Modell der transversalen und longitudinalen Wellenvektoranpassung nachvollziehen. Auch die Messungen bei den anderen Pumpwinkeln zeigten ein ähnliches Verhalten. Es traten immer deutlich mehr Ringe auf, als beim Pumpen mit ps-Pulsen, allerdings nicht immer so viele, wie hier bei $\vartheta_p = 45$ mrad. Wir können also nachvollziehen, warum und bei welchem Win-

kel ein 1. anti-Stokes-Konus entsteht, allerdings ist noch nicht geklärt, warum beim Pumpen mit ns-Pulsen in flüssigem Aceton auch Mechanismen auftreten, die auf transversaler Wellenvektoranpassung beruhen. Weiterhin ist unklar, warum neben dem zentralen Fleck und der M_{00} -Mode in der 1. Stokes nun zusätzliche Konuswinkel auftauchen, die weder mit ps-Pulsen in Aceton noch mit ns-Pulsen in Wasserstoffgas jemals beobachtet wurden.

Offensichtlich muss die Erklärung in den verwendeten Laserpulsen liegen, da dies der einzige Parameter ist, der verändert wurde. Allerdings war es im Rahmen dieser Arbeit nicht mehr möglich, die genaue Ursache zu verstehen. Das veränderte Verhalten in der Raman-Streuung könnte entweder nur an den längeren Pulsen liegen oder zusätzlich an der damit verbundenen Möglichkeit, dass Rückkopplungseffekte auftreten können. Denn wie in [Lög94] gezeigt wurde, reicht unter bestimmten Umständen allein die diffuse Reflexion am Austrittsfenster der Zelle aus, um die Verstärkung der 1. Stokes enorm zu erhöhen. Eine weitere Unbekannte ist der genaue Einfluss der Leistung bzw. Energie des Pumpstrahls. Bei den 30 ps-Pulsen mit max. 3 mJ pro Puls ist die Leistung pro Puls zwar um eine Größenordnung höher, aber bei den 13 ns-Pulsen ist die Energie pro Puls mit max. 100 mJ deutlich höher. Weiterhin wurde der Einfluss der stimulierten Brillouin-Streuung vernachlässigt. Da diese nur bei Aceton mit ns-Pulsen auftritt und nie in Wasserstoff, könnte dadurch eventuell das veränderte Verhalten in der 1. Stokes erklärt werden.

Nachdem wir uns im nächsten Kapitel 5 etwas genauer mit kritischen Details bei der Raman-Streuung in gasförmigem Wasserstoff auseinander gesetzt haben, werden wir im Anschluss daran in Kapitel 6 nochmals die Messdaten von Aceton mit ns-Pulsen aufgreifen und versuchen, die Unterschiede und Gemeinsamkeiten bei der Raman-Streuung in Aceton und Wasserstoff zusammenzufassen.

4.7 Zusammenfassung Aceton

In diesem Kapitel über die stimulierte Raman-Streuung in flüssigem Aceton wurden die Untersuchungen über die 1., 2. und 3. Stokes-Streuung und die 1. und 2. anti-Stokes-Streuung präsentiert, die durch Pumpen mit einem Gauß-Bessel-Bündel generiert werden. Dazu wurden die theoretisch möglichen Mechanismen diskutiert und mit den Messungen verglichen. Die Experimente wurden bei Pumpkonuswinkeln von 23 bis 100 mrad durchgeführt.

Bei der 1. Stokes zeigte sich, dass sie als intensiver zentraler Fleck und als schwacher Konus generiert wird, wobei letzterer eine verstärkungsgeführte Mode darstellt. Der intensivere Konus der 1. anti-Stokes entsteht durch einen Vier-Photonen-Prozess mit dem Pumpbündel und dem 1. Stokes-Fleck, der schwächere wird mit Hilfe der konusförmigen 1. Stokes-Mode erzeugt (Polarisation $P \propto E_P^2 E_{SI}^*$). Der 2. anti-Stokes-Konus wird durch einen Vier-Photonen-Prozess mit dem 1. anti-Stokes-Konus, dem Pumpkonus und dem 1. Stokes-Fleck erzeugt ($P \propto E_{A1} E_P E_{SI}^*$). Der Vergleich der Messwerte mit der Theorie geschah über einen Pumpwinkelbereich von 5 bis 100 mrad.

Um exakte Phasenanpassung zu erzielen, müssen die Bedingungen für longitudinale und transversale Wellenvektoranpassung gleichzeitig erfüllt sein. Im Bereich der aplanaren Phasenanpassung berechnet sich der Konuswinkel aus der Gleichung für longitudinale Wellenvektoranpassung, während die Gleichung für die transversale Anpassung die azimuthalen Winkel der beteiligten transversalen Komponenten liefert, die in den Prozess involviert sind. Die Konuswinkel der 1. bzw. 2. anti-Stokes-Streuung zeigen in den gemessenen Bereichen von 20 - 100 mrad bzw. 30 - 100 mrad eine gute Übereinstimmung mit den Berechnungen für longitudinale Wellenvektoranpassung und das nicht nur dort, wo exakte aplanare Phasenanpassung möglich ist, sondern auch für kleinere Pumpwinkel. Der Beweis für das Auftreten von aplanarer Phasenanpassung konnte dadurch geführt werden, dass ein kleiner azimuthaler Teil des Pumpkonus abgeblockt wurde und die Reaktion der jeweiligen anti-Stokes-Streuung beobachtet wurde. Im Experiment musste dazu ein aufwändiges Mittelungsverfahren durchgeführt werden, um trotz der starken azimuthalen Inhomogenitäten des 2. anti-Stokes-Ringes ein aussagekräftiges Ergebnis zu erhalten. Mit diesen Abblockexperimenten konnten Generationsprozesse ausgeschlossen werden, die aus Gründen der Energie- und Impulserhaltung ebenso möglich gewesen wären.

Für die Generation der 2. Stokes wurden zwei Prozesse verglichen, wobei bei Betrachtung der Intensitätsverhältnisse der Vier-Photonen-Prozess mit dem Pumpkonus und dem 1. Stokes-Fleck favorisiert wurde ($P \propto E_{SI}^2 E_P^*$). Die Messungen zur Abhängigkeit des 2. Stokes-Konuswinkels zeigen im Pumpwinkelbereich von 27,5 bis 55 mrad eine gute Übereinstimmung mit der longitudinalen Wellenvektoranpassung, während im Bereich kleiner Winkel von 5 bis 27,5 mrad offensichtlich die transversale Anpassung bevorzugt wird. Letztere gibt nochmals einen eindeutigen Hinweis auf den favorisierten Prozess. Zusätzliche Informationen über die transversale Geometrie konnten durch Abblockexperimente nicht gesammelt werden, da der 2. Stokes-Konus im entscheidenden Winkelbereich nur partiell sichtbar war.

Die 3. Stokes wird durch Photonen des Pumpkonus und des 1. und 2. Stokes-Flecks erzeugt ($P \propto E_{S1}E_{S2}E_P^*$). Die Konuswinkel konnten zwar nur in einem sehr engen Bereich von 50 bis 60 mrad beobachtet werden, stimmen dort aber mit der longitudinalen Wellenvektoranpassung für diesen Prozess überein. Da die erhaltenen Daten viel zu schwach und zu wenig waren, konnten auch hier keine Erkenntnisse über die transversalen Verhältnisse gewonnen werden.

Aus der deutlichen Abweichung der Theorie von Vaicaitis et al. [Vai00] mit dem Konuswinkel der 2. Stokes und dem Abblockverhalten der 2. anti-Stokes ist zu folgern, dass dieses Modell weder für die Erzeugung der 2. Stokes noch der 2. anti-Stokes in dem hier untersuchten Bereich gültig ist. Außerhalb dieses Bereiches kann über die Gültigkeit dieser Theorie leider nicht geurteilt werden.

Folglich werden mit Ausnahme der 1. Stokes alle Stokes- und anti-Stokes-Kegel durch Vier-Photonen-Prozesse generiert. Während für die 1. anti-Stokes zwei Prozesse beobachtet werden konnten, wobei an dem einen der 1. Stokes-Fleck, an dem anderen die konusförmige 1. Stokes-Mode beteiligt war, konnte für alle anderen Raman-Komponenten derjenige Prozess die Experimente erklären, der das stärkste Polarisationsfeld erzeugt. Raman-Streuung höherer Ordnungen konnte mit dem zur Verfügung stehenden Aufbau nicht beobachtet werden. In diesem Kapitel wurden sämtliche Theoriekurven direkt aus der entsprechenden Wellenvektoranpassung und den Materialdaten für Aceton (Raman-Frequenzverschiebung, Brechungsindex, siehe Anhang A) berechnet. Im Gegensatz dazu wurden die Theoriekurven in den Veröffentlichungen [Gad99] und [Vai00] lediglich gefittet.

5 Stimulierte Raman-Streuung in Wasserstoff

Die stimulierte Raman-Streuung in gasförmigem Wasserstoff wird in der Arbeitsgruppe schon seit längerem untersucht. In der Promotion von Lutz Niggl [Nig99] wurde bereits die 1. Stokes- M_{00} -Mode berechnet und erste Ansätze für die Erklärung der 1. anti-Stokes-Streuung sind vorhanden, wenn mit einem Bessel-förmigen Lichtbündel gepumpt wird. Allerdings wurde dort nicht weiter auf das Vorhandensein von zwei 1. Stokes-Moden (analog zur 1. Stokes-Emission in Aceton) eingegangen. Erst in den folgenden Arbeiten von Zeitler [Zei01] und Baier [Bai02, Sch03] wurde der „1. Stokes-Fleck“ als M_{0A} -Mode identifiziert (Abschnitt 2.3) und gezeigt, dass beide 1. Stokes-Moden für die Erzeugung von 1. anti-Stokes-Licht verantwortlich sind. Hier wurde auch schon erkannt, dass keine exakte Phasenanpassung nötig ist, um eine effektive 1. anti-Stokes-Emission zu beobachten; es genügt, wenn nur eine transversale oder longitudinale Wellenvektoranpassung vorliegt. Im Folgenden wurden diese Messungen insoweit ergänzt, dass besonderes Augenmerk auf die (in den Vorgängerarbeiten teilweise kaum sichtbaren) longitudinalen Moden gerichtet wurde. Außerdem wurden einige Messungen zusätzlich mit ps-Pulsen durchgeführt, um eventuelle Unterschiede bzw. Gemeinsamkeiten mit der stimulierten Raman-Streuung bei Aceton erkennen zu können.

5.1 Stokes-Streuung

Abgesehen davon, dass das 1. Stokes-Licht (Abbildung 5.1) mit dem erwarteten Konuswinkel der M_{00} -Mode (Gleichung (2.30)) auftritt, gibt es noch einige Details, die in den

vorangegangenen Arbeiten [Zei01, Bai02] zwar untersucht, bei genauerem Hinsehen aber unzureichend geklärt wurden. Diese sollen in dieser Arbeit genauer nachgeprüft werden.

Als erstes ist hier die Tatsache zu nennen, dass der von Zeitler [Zei01] vorhergesagte Übergang von der 1. Stokes- M_{00} zur - M_{0A} -Mode experimentell nur in einem sehr engen Bereich (Pumpwinkel $\vartheta_p = 1,4$ bis 2,2 mrad) bestätigt werden konnte. Die nachfolgenden Messungen zeigen zum Beispiel, dass bei einem Pumpwinkel von 4 mrad bis hinauf zu 70 bar keine M_{00} -Mode auftritt, obwohl sie theoretisch ab ca. 50 bar erscheinen sollte.

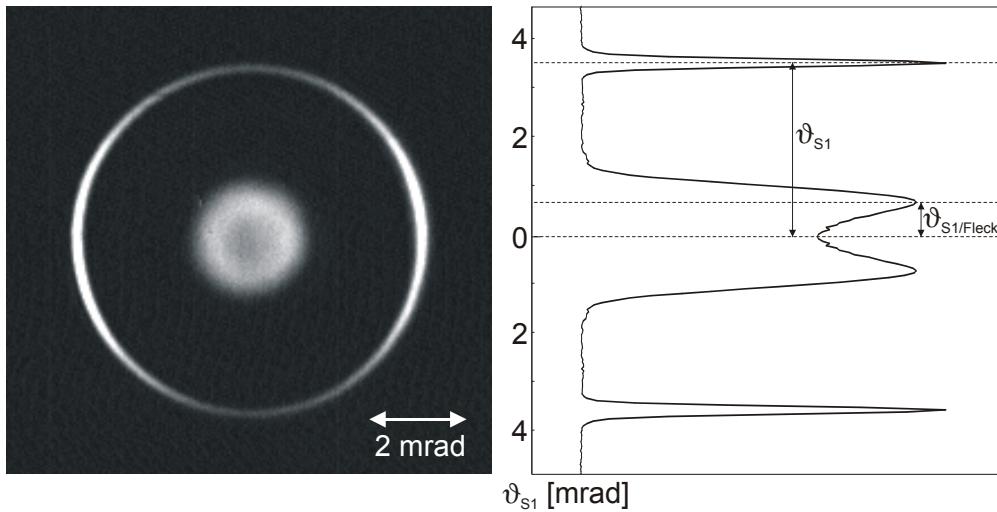


Abbildung 5.1: Typisches Beispiel einer 1. Stokes-Emission in Wasserstoffgas bei einem Pumpwinkel von $\vartheta_p = 2,66$ mrad und 60 bar, bei der sowohl der Fleck als auch die Ringmode auftritt. Die etwas ungleichmäßige azimuthale Intensitätsverteilung entsteht durch ein ebenso ungleichmäßiges Pumpbündel. Rechts davon ist die radiale Mittelung des Bildes mit eingezeichnetem Ring-Konuswinkel ϑ_{S1} und die Definition der Divergenz des 1. Stokes-Flecks $\vartheta_{S1/Fleck}$ zu sehen.

Der Aufbau für die Detektion der 1. Stokes-Streuung ist mit den Aufbauten der Vorgängerarbeiten vergleichbar und in Abbildung 3.1 skizziert. Für Winkel ϑ_p des Pump-Bessel-Bündels, die kleiner als ca. 10 mrad waren, wurde das Fernfeld mit einer Linse auf die CCD-Kamera abgebildet, für größere Pumpwinkel wurde das Fernfeld in einem Abstand von ca. 250 bis 300 cm auf einer Leinwand beobachtet.

Wie sich bei den Messungen zeigte, ist es nicht egal, bei welcher 1. Stokes-Leistung die Messungen durchgeführt werden. Bedingt durch die Anforderung, das 1. Stokes- und 1. anti-Stokes-Licht mit zwei Kameras gleichzeitig zu detektieren, wurden in [Bai02] sämtliche Messungen zur 1. Stokes-Streuung an der 1. anti-Stokes-Schwelle durchgeführt! D. h., das Verhalten an der 1. Stokes-Schwelle, die niedriger liegt, war bisher unbekannt. Des-

halb wurde die Druckabhängigkeit der 1. Stokes-Moden bei verschiedenen Winkeln erneut untersucht, wobei jeweils eine Messung direkt an der Detektionsschwelle der CCD-Kamera durchgeführt wurde, d. h. man untersucht das 1. Stokes-Licht mit maximaler Empfindlichkeit und somit so nah wie möglich an der 1. Stokes-Schwelle. Zusätzlich wurde jeweils eine weitere Messung durchgeführt, wobei vor die CCD-Kamera ein Graufilter gesetzt wurde. Dadurch ist eine wesentlich höhere 1. Stokes-Leistung nötig, um ein Bild zu erhalten, d. h. jetzt misst man deutlich über der 1. Stokes-Schwelle. Die Graufilter wurden so gewählt, dass die Pumpleistung etwas über der 1. anti-Stokes-Schwelle lag und somit dem Aufbau bei [Bai02] entsprechen sollte.

Das Ergebnis zeigt Abbildung 5.2, wo das Auftreten der 1. Stokes-Moden in Abhängigkeit vom Pumpwinkel ϑ_p und Druck p skizziert ist. Dabei ist in Abbildung a) die Messung mit ns-Pulsen und in b) die Messung mit ps-Pulsen aufgetragen. Die senkrechten Linien geben den Pumpwinkel an, links davon ist die Messung ohne Graufilter, d. h. mit maximaler Empfindlichkeit der CCD-Kamera, rechts mit Graufilter vor der CCD-Kamera aufgetragen. In der Auftragung steht ein Kreisring für das Auftreten der ringförmigen 1. Stokes- M_{00} -Mode, ein Punkt für den 1. Stokes-Fleck und die Kombination bedeutet, dass beides gemeinsam sichtbar war. Graue Symbole weisen auf ein sehr schwaches Erscheinen hin und die Pfeile zeigen an, dass in diesem Bereich keine weitere Veränderung aufgetreten ist. Die zusätzlich eingezeichnete quadratische Funktion $p(\vartheta_p)$ stellt den theoretischen Grenzdruck für den Übergang von der 1. Stokes- M_{00} - zur $-M_{0A}$ -Mode dar, wie er in [Zei01] berechnet wurde. Unterhalb dieser Kurve sollte nur der 1. Stokes- M_{0A} -Mode (Fleck) und darüber nur die konusförmige M_{00} -Mode auftreten.

Sowohl beim Pumpen mit ns- als auch mit ps-Pulsen ist bei jedem gemessenen Pumpwinkel klar erkennbar, dass die M_{00} -Mode tatsächlich erst ab dem jeweiligen Druck einsetzt, der von der Theorie vorhergesagt wird. Bei kleinen Winkeln scheint dies noch unabhängig von der Pumpleistung zu sein, erst bei größeren Winkeln (3,84 mrad bei ns-Pulsen und 2,66 mrad bei ps-Pulsen) muss über die 1. Stokes-Schwelle hinaus gepumpt werden, damit die M_{00} -Mode sichtbar auftritt. Ob hier die Theorie versagt oder sich der 1. Stokes-Ring aufgrund des kürzeren Bessel-Bündels (Kapitel 2.1) nicht ausreichend ausbildet, kann hier leider nicht eindeutig geklärt werden. Weiterhin kann man erkennen, dass an der 1. Stokes-Schwelle der zentrale 1. Stokes-Fleck beim Pumpen mit ps-Pulsen überhaupt nicht und mit ns-Pulsen nur bei 1,76 mrad verschwindet. Hier kann man klar feststellen, dass der 1. Stokes-Fleck in diesem Punkt nicht der Modentheorie folgt.

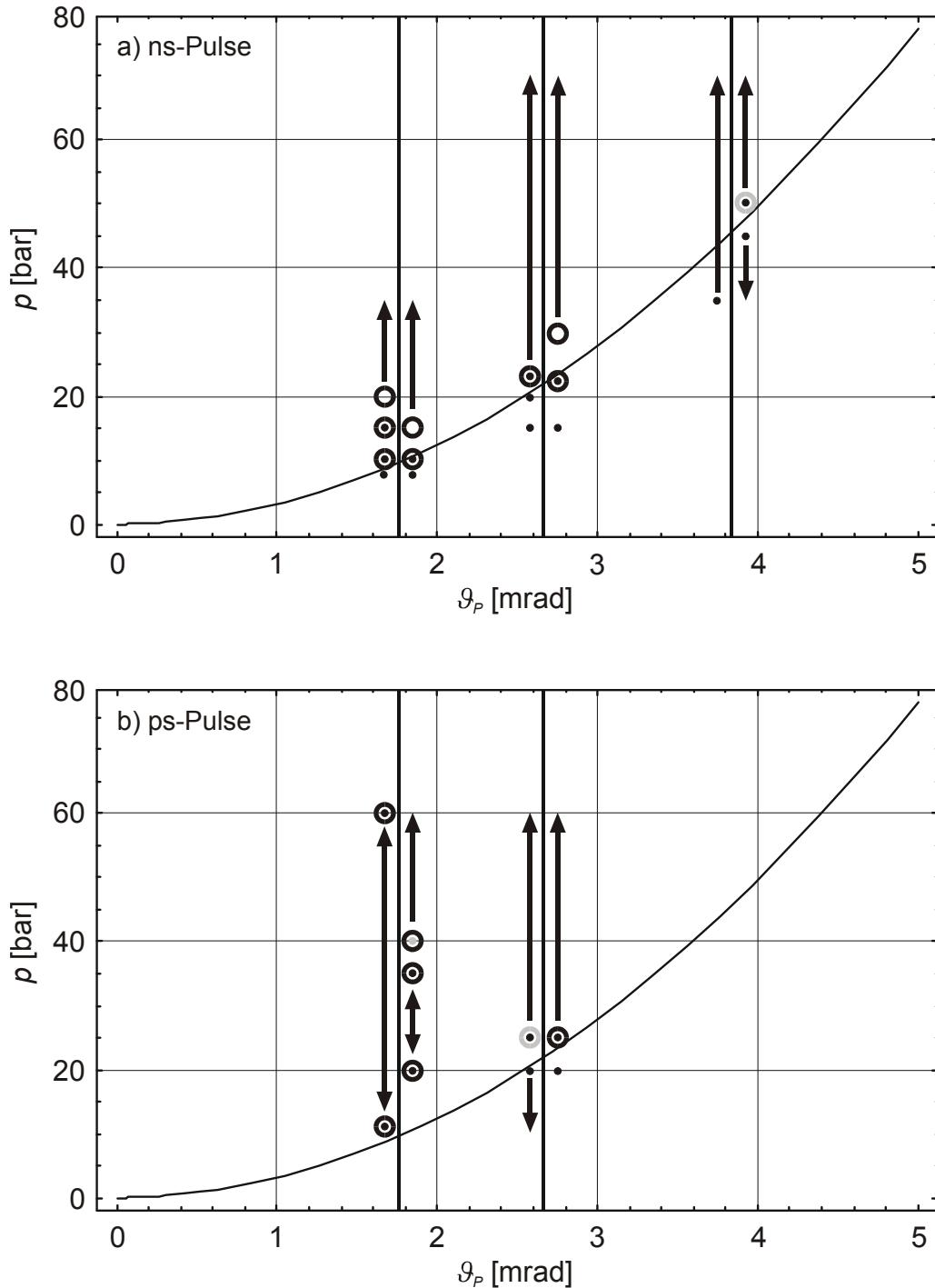


Abbildung 5.2: Auftreten und Verschwinden der beiden 1. Stokes-Moden in Abhangigkeit von Pumpwinkel ϑ_p und Druck p in Wasserstoffgas bei a) ns-Pulsen und b) ps-Pulsen. Links vom Pumpwinkel ϑ_p ist die Messung ohne und rechts mit Graufilter angetragen, Kreise und Punkte markieren jeweils das Auftreten von 1. Stokes-Ring (M_{00} -Mode) und -Fleck (M_{0A} -Mode). (siehe auch Text)

Wie schon angedeutet, unterscheiden sich auch die Messungen, die an der 1. Stokes-Schwelle bzw. mit hoherer Leistung durchgefuhrt wurden. Im Experiment wurde dazu

einmal ohne Filter gemessen und einmal mit einem Graufilter, wodurch die Detektionschwelle der CCD-Kamera deutlich sinkt. Bei den ps-Pulsen verschwand der zentrale 1. Stokes-Fleck weder mit noch ohne Graufilter, aber bei beiden Winkeln war erkennbar, dass mit Graufilter bei hohen Drücken der Fleck schwächer bzw. der Ring intensiver war als ohne Filter.

Beim Pumpen mit ns-Pulsen zeigte sich bei 1,76 mrad kein Unterschied während bei 2,66 mrad mit Graufilter der 1. Stokes-Fleck bei hohen Drücken verschwindet, ohne Graufilter jedoch nicht. Bei 3,84 mrad sieht man, dass mit Graufilter der 1. Stokes-Ring wie erwartet auftritt, aber ohne Filter überhaupt nicht mehr erkennbar ist. Der Grund dafür ist vermutlich, dass hier die Dynamik der CCD-Kamera nicht ausreicht, um bei dem sehr intensiven 1. Stokes-Fleck noch den Ring zu detektieren.

Dies alles deutet darauf hin, dass durch die Modentheorie die M_{00} -Mode zwar gut beschrieben wird, nicht aber der 1. Stokes-Fleck, der als M_{0A} -Mode interpretiert wurde. Außerdem gab es schon bei [Bai02] Probleme, den genauen Durchmesser des 1. Stokes-Flecks mit der Theorie zu beschreiben. Da dieser relativ stark von der Verstärkung abhängt, konnten für die Simulationen immer Werte gefunden werden, die das Experiment beschrieben, aber nicht unbedingt den tatsächlichen Parametern entsprachen. Um dies genauer zu testen, wurde im Folgenden die Divergenz des 1. Stokes-Flecks vermessen. Mit Divergenz wird hier der Winkel $\vartheta_{SI/Fleck}$ bezeichnet, bei dem das Maximum des 1. Stokes-Fleck-Donuts liegt (siehe Abbildung 5.1). Handelt es sich beim 1. Stokes-Fleck tatsächlich um eine echte voll ausgebildete Mode, so würde man erwarten, dass dieser zwar über den Durchmesser des zentralen Maximums vom Konuswinkel des Pump-Bessel-Bündels abhängt, nicht jedoch von der Länge des Bessel-Bündels.

Im Experiment wurde die Abhängigkeit der 1. Stokes-Fleck-Divergenz $\vartheta_{SI/Fleck}$ vom Pumpwinkel ϑ_p aufgenommen, wobei zusätzlich noch die effektive Länge⁴ des jeweiligen Pump-Bessel-Bündels gemessen wurde. Da der zentrale 1. Stokes-Fleck aber nicht immer die schöne Donut-Form wie in Abbildung 5.1 aufwies, sondern auch teilweise oder vollständig gefüllt war, musste dort der Konuswinkel abgeschätzt werden. Deshalb ist den Werten ein Fehler von bis zu $\pm 0,5$ mrad angehaftet.

Da bei den kleinen Pumpwinkeln (kleiner als $\vartheta_p = 5,32$ mrad) die Divergenz des 1. Stokes-Flecks im Rahmen der druckabhängigen Messungen der M_{00} -Mode mitgemessen wurde, standen hier Daten über einen größeren Druckbereich (je nach Pumpwinkel $p = 5$ bis 100 bar) zur Verfügung. Dabei wurde festgestellt, dass bei unterschiedlichen Drücken auch

⁴ Die effektive Länge ist die Länge des Bessel-Bündels oder die Länge der Zelle, je nachdem was kürzer ist.

leicht unterschiedliche Fleckdurchmesser ($\pm 0,2$ mrad, entspricht ca. 20 %) auftraten, jedoch in keinem erkennbaren Zusammenhang mit dem Druck. Damit folgt der Schluss, dass diese Variationen zum einen zufällig sind und somit ungefähr die Messgenauigkeit widerspiegeln. Im Folgenden ist bei diesen Winkeln immer der mittlere Konuswinkel angegeben.

Für die Messungen selbst wurde bis zu dem Pumpwinkel von 15,8 mrad das 2,66 mrad-Phasengitter verwendet, wobei das Bessel-Bündel mit einem Teleskop entsprechend verkleinert wurde. Ab einem Pumpwinkel von 16,2 mrad wurde ein 10,64 mrad-Phasengitter verwendet. Zur Veranschaulichung der Messdaten wurde die Divergenz des 1. Stokes-Flecks zum einen gegen den Pumpwinkel ϑ_p (Abbildung 5.3) zum anderen gegen die effektive Länge des Bessel-Bündels l_{eff} (Abbildung 5.4) aufgetragen. Zur besseren Beschreibung wurden Hilfslinien eingezeichnet, die den Verlauf der Daten optisch veranschaulichen sollen.

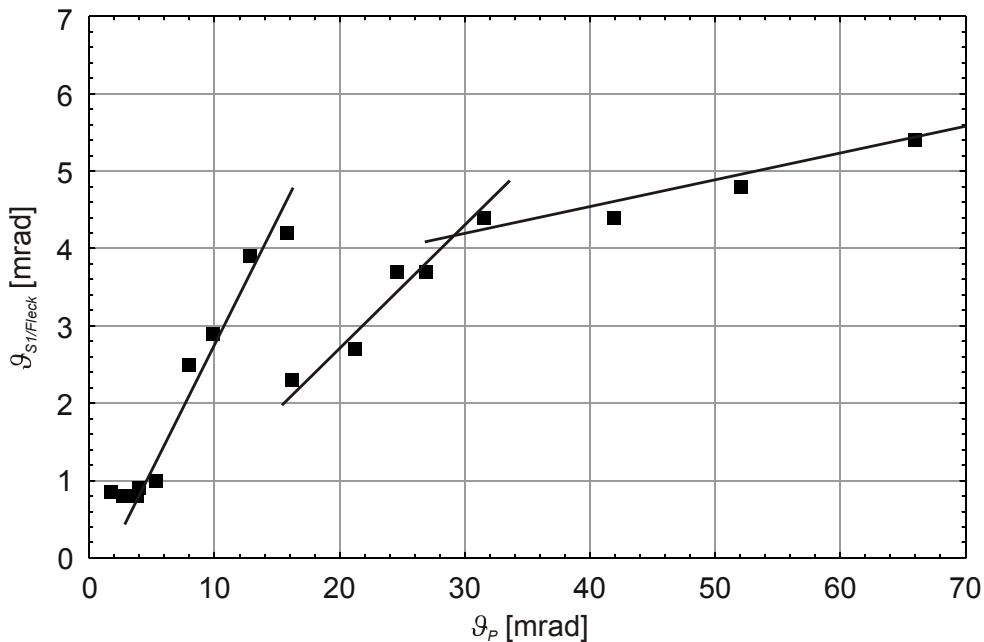


Abbildung 5.3: Abhängigkeit der Divergenz des 1. Stokes-Flecks $\vartheta_{SI/Fleck}$ vom Winkel ϑ_p des Pump-Bessel-Bündels. Die Linien haben keine physikalische Bedeutung, sie sind nur als Hilfslinien zur besseren Übersicht eingezeichnet.

Man erkennt an Abbildung 5.3 eindeutig, dass die Divergenz des 1. Stokes-Flecks nicht nur vom Pumpwinkel ϑ_p abhängen kann, wie es an folgendem Beispiel erkennbar ist. Während sich beim Wechsel des Phasengitters der Konuswinkel kaum verändert hat ($\vartheta_p = 15,8 \rightarrow 16,2$ mrad), macht die Divergenz ($\vartheta_{SI/Fleck} = 4,2 \rightarrow 2,3$ mrad) ebenso wie die

Länge des Pump-Bessel-Bündels ($l_{eff} = 9 \rightarrow 19$ cm , in Abbildung 5.3 nicht erkennbar) einen Sprung.

Besser sieht es aus, wenn man die Veränderungen der 1. Stokes-Fleck-Divergenz $\vartheta_{SI/Fleck}$ in Abhängigkeit von der effektiven Länge des Pump-Bessel-Bündels betrachtet (Abbildung 5.4). Hier scheint eine klare Beziehung vorzuliegen, d. h. die 1. Stokes-Fleck-Divergenz $\vartheta_{SI/Fleck}$ ist fast identisch bei gleicher Länge l_{eff} des Pump-Bessel-Bündels, obwohl der Pumpwinkel ϑ_p deutlich unterschiedlich sein kann (siehe z. B. bei $\vartheta_p = 8,0$ mrad $\rightarrow \vartheta_{SI/Fleck} = 2,5$ mrad und $\vartheta_p = 16,2$ mrad $\rightarrow \vartheta_{SI/Fleck} = 2,3$ mrad , $l_{eff} = 19$ cm). Berücksichtigt man noch die Messwerte bei Pumpwinkeln kleiner 5,32 mrad, die aus Gründen der Übersicht wegen einer effektiven Bündellänge von 150 cm in Abbildung 5.4 nicht eingezeichnet wurden, so existiert vermutlich ein unterer Grenzwert für die Divergenz des 1. Stokes-Flecks von ca. 0,6 bis 0,8 mrad. Bedauerlich ist hier allerdings, dass kein theoretisches Modell gefunden werden konnte, das eine Beziehung dieser Form quantitativ beschreiben kann.

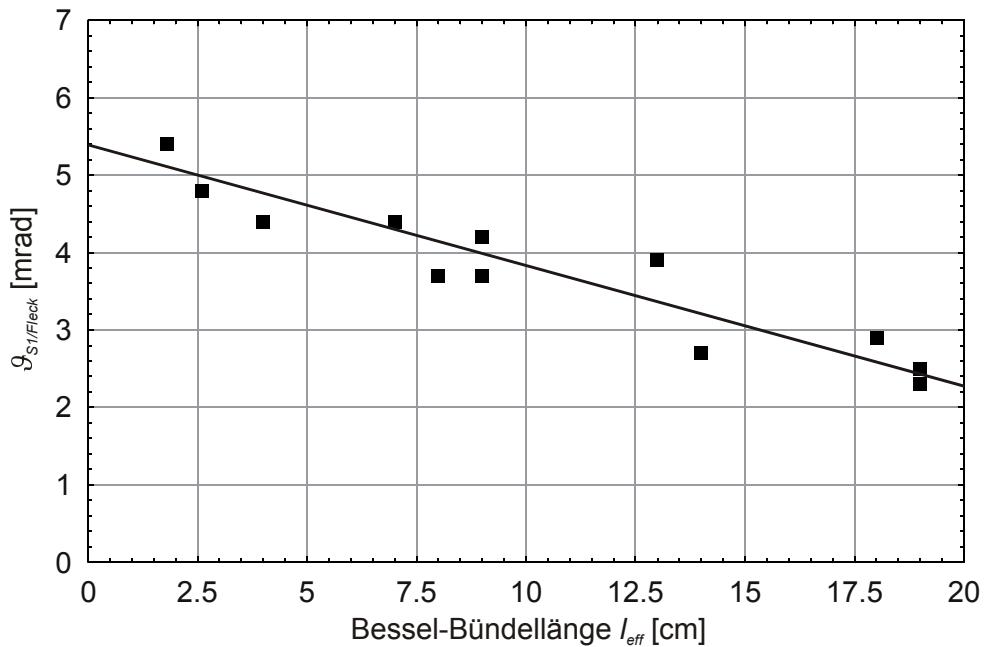


Abbildung 5.4: Divergenz des 1. Stokes-Fleck $\vartheta_{SI/Fleck}$ in Abhängigkeit von der effektiven Länge l_{eff} des Pump-Bessel-Bündels. Die eingezeichnete Hilfslinie hat keine physikalische Bedeutung, sie verdeutlicht nur die Abhängigkeit.

Zusammenfassend kann also geschlossen werden, dass es zwei starke Beweise dafür gibt, dass es sich beim 1. Stokes-Fleck nicht um eine M_{0A} -Mode handeln kann. Dies ist zum einen die Tatsache, dass das die kaum vorhandene Druckabhängigkeit nicht der Moden-

theorie von Wellenleitern folgt und zum anderen die sehr deutliche Abhängigkeit des 1. Stokes-Flecks von der Länge des Pump-Bessel-Bündels. Im Falle einer echten Mode sollte die Divergenz des 1. Stokes-Flecks nämlich nicht von der Länge des Pump-Bessel-Bündels abhängen. Das einzige, relativ schwache, Argument für die Modentheorie ist das Auftreten der schwachen „Delle“ im Zentrum des 1. Stokes-Flecks.

Eine Möglichkeit, um alle Beobachtungen zu erklären, wäre, dass die M_{0A} -Mode wie vorhergesagt auftritt, allerdings zusätzlich noch eine 1. Stokes-Emission in Form eines Flecks existiert, die eine ähnliche Schwelle besitzt und für das „Auffüllen“ der M_{0A} -Mode und für das Vergrößern bei kurzen Pump-Bessel-Bündeln verantwortlich ist. Eine andere Lösung wäre, dass die M_{0A} -Mode auf Grund der kurzen effektiven Länge des Pump-Bessel-Bündels sich nicht voll ausbilden kann. Leider konnte keine experimentelle Methode gefunden werden, diese Vermutungen nachzuprüfen.

5.2 Anti-Stokes-Streuung

In den existierenden früheren Arbeiten lag der Schwerpunkt immer auf der 1. Stokes-Emission [Nig99, Zei01]. Wie bereits erwähnt, erzeugt aber jede 1. Stokes-Mode nach verschiedenen Vier-Photonen-Prozessen (Kapitel 2.3) ihre zugehörigen transversalen 1. anti-Stokes-Moden, wie sie z. B. von Baier [Bai02] schon gezeigt wurden. Ähnliches sollte aber auch für die longitudinale Wellenvektoranpassung auftreten. Die erwarteten 1. anti-Stokes-Winkel ergeben sich aus der Geometrie für den Vier-Photonen-Prozess:

$$k_{SI} \cos \vartheta_{SI} + k_{AI} \cos \vartheta_{AI} = 2k_p \cos \vartheta_p \quad (5.1)$$

woraus folgt:

$$\vartheta_{AI} = \arccos \left(\frac{2k_p \cos \vartheta_p - k_{SI} \cos \vartheta_{SI}}{k_{AI}} \right). \quad (5.2)$$

Je nachdem, ob man jetzt für ϑ_{SI} den 1. Stokes-Winkel der M_{00} -Mode oder die Divergenz des 1. Stokes-Flecks einsetzt, ergeben sich zwei unterschiedliche 1. anti-Stokes-Winkel und somit zwei Ringe im Fernfeld. Wie schon bei Aceton ist bei diesen Formeln entscheidend, den Betrag der k -Vektoren zu kennen, wozu nicht nur die Wellenlänge der jeweiligen Raman-Komponenten sondern auch der jeweilige Brechungsindex nötig ist. Die Quellen dafür und die Probleme, die sich dadurch ergaben, sind in Anhang B erörtert.

Der Gleichung (5.2) lässt sich die Druckabhängigkeit des 1. anti-Stokes-Winkels ϑ_{AI} zwar nicht direkt ansehen, aber eine graphische Auftragung zeigt ein deutliches Ansteigen des Winkels ϑ_{AI} beim Erhöhen des Gasdrucks p . Im Experiment sollte sich also zum einen diese Druckabhängigkeit zeigen und zum anderen, dass die jeweilige longitudinale Mode (gleiches gilt natürlich auch für die transversalen Moden) nur dann auftritt, wenn auch die zugehörige 1. Stokes-Mode erscheint. Ein drittes Kriterium für die Moden ist das Verhalten bei einer teilweisen Abdeckung des Pump-Bessel-Bündels, wie es schon bei Aceton durchgeführt wurde und in Kapitel 4.2.1 und 4.2.2 ausführlich erklärt wurde. Im konkreten Fall für Wasserstoff erwartet man einen Unterschied im Abdeckverhalten der beiden Moden, da der 1. Stokes-Winkel ϑ_{SI} in die Rechnung mit eingeht, wie im Folgenden gezeigt wird.

Die Herleitung für den azimuthalen Zwischenwinkel $\Delta\varphi$ erfolgt analog wie in Kapitel 4.2.1, Abbildung 4.3, indem man die transversalen und longitudinalen Komponenten der Vier-Vektoren-Anpassung betrachtet.

$$\text{transversal: } 2k_p \sin \vartheta_p \cos \left(\frac{\Delta\varphi}{2} \right) = k_{AI} \sin \vartheta_{AI} \pm k_{SI} \sin \vartheta_{SI} \quad (5.3)$$

$$\text{longitudinal: } 2k_p \cos \vartheta_p = k_{AI} \cos \vartheta_{AI} + k_{SI} \cos \vartheta_{SI} \quad (5.4)$$

Zu beachten ist, dass es bei der transversalen Anpassung zwei Möglichkeiten gibt. Zum einen der Fall, dass der 1. Stokes-Vektor auf der anderen Konusseite wie die Pumpvektoren liegt ($\psi_{AI} = \psi_{SI} + 2$, siehe Abbildung 2.11a), zum anderen, dass der 1. Stokes-Vektor auf der gleichen Seite liegt ($\psi_{AI} = 2 - \psi_{SI}$). Der Fall $\psi_{AI} = \psi_{SI} - 2$ wird hier nicht betrachtet, da im Experiment nie 1. Stokes-Winkel $\psi_{SI} > 2$ auftreten und der Fall $\psi_{AI} = \psi_{SI}$ ist nur ein Spezialfall mit $\Delta\varphi = 180^\circ$. Das Auflösen der transversalen und longitudinalen Gleichungen liefert somit für den Zwischenwinkel der Pumpvektoren

$$\Delta\varphi^\pm = 2 \arccos \left[\frac{k_{AI} \sin \left[\arccos \left[\frac{2k_p \cos \vartheta_p - k_{SI} \cos \vartheta_{SI}}{k_{AI}} \right] \right] \pm k_{SI} \sin \vartheta_{SI}}{2k_p \cos \vartheta_p} \right], \quad (5.5)$$

um eine exakte Phasenanpassung zu ermöglichen. Dabei ergibt sich $\Delta\varphi^-$ für die Wellenvektoranordnung $\psi_{AI} = \psi_{SI} + 2$ und $\Delta\varphi^+$ für die Konstellation $\psi_{AI} = 2 - \psi_{SI}$.

Experimente

Um die longitudinalen 1. anti-Stokes-Moden nachzuweisen und zu untersuchen wurde der Aufbau wiederum praktisch identisch zu den Vorgängerarbeiten gewählt, um die Vergleichbarkeit zu gewährleisten. D. h. der Aufbau entspricht der in Abbildung 3.1 skizzierten Anordnung, wobei ns-Pulse verwendet wurden und nach der Wasserstoffzelle das Fernfeld des 1. Stokes- und 1. anti-Stokes-Lichts mit einer 300 mm-Linse auf die CCD-Kamera abgebildet wurde. Der einzige Unterschied im Aufbau zu z. B. [Bai02] lag darin, dass die Wasserstoffzelle nicht am Ende des Bessel-Bündels sondern schon etwas vorher im Strahlengang positioniert war. Warum in diesem Fall die longitudinalen 1. anti-Stokes-Moden intensiver als die transversalen sind, konnte leider nicht geklärt werden, aber die Verteilung der Intensität des zentralen Maximums im Pump-Bessel-Bündel entlang der Gaszelle (siehe Kapitel 2.1, Abbildung 2.6) hat wohl einen Einfluss auf die Verstärkung der Moden.

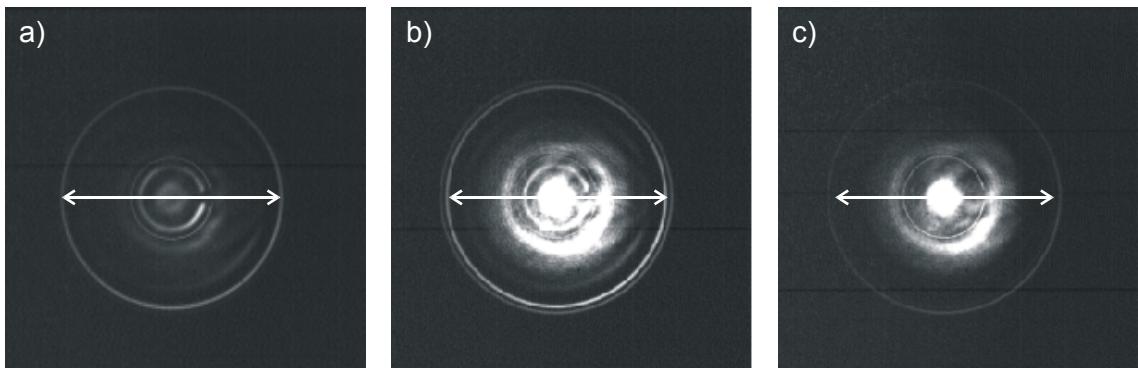


Abbildung 5.5: 1. anti-Stokes-Streuung bei einem Pumpwinkel $\vartheta_p = 2,66$ mrad und $p = 30$ bar Wasserstoffdruck. **a)** – **c)** treten zufällig aufgrund von Schwankungen im Laserpuls auf, der in jedem Bild gleich lange Doppelpfeil verdeutlicht die beiden unterschiedlichen longitudinalen Moden, die als scharfe große Ringe mit fast gleichem Durchmesser erkennbar sind. Bei den teils unscharfen Ringen im Zentrum handelt es sich um transversale Moden.

Bei einem Pumpwinkel von $\vartheta_p = 2,66$ mrad, der ohne weiteres Vergrößern bzw. Verkleinern des Bessel-Bündels direkt durch ein Phasengitter zur Verfügung stand, ist bereits ein deutlicher Hinweis für das Vorhandensein und die Stokes-Abhängigkeit der longitudinalen 1. anti-Stokes-Moden erkennbar. Abbildung 5.5 zeigt drei Bilder, die unter identischen Verhältnissen aufgenommen wurden. Bei einem Gasdruck $p = 30$ bar ist die 1. Stokes-Streuung noch im Übergangsbereich, d. h. es tritt nur die M_{00} -Mode oder nur der zentrale 1. Stokes-Fleck auf oder beides gemeinsam. Ein identisches Verhalten kann jetzt auch bei der 1. anti-Stokes-Streuung beobachtet werden. Abbildung 5.5b zeigt sämtliche transversa-

len Moden, wie sie in den Vorgängerarbeiten zugeordnet wurden, und auch zwei größere, scharfe Ringe, die longitudinalen Moden. Wie bereits erwähnt, wurden die Abbildung 5.5a und c unter denselben Bedingungen aufgenommen. Man kann zeigen, dass hier mal die longitudinale Mode mit dem kleineren Winkel und nur die transversalen Moden (a) erscheinen, die mit der 1. Stokes- M_{00} -Mode verknüpft sind, und mal die entsprechenden 1. anti-Stokes-Moden (c) die mit dem zentralen Stokes-Fleck koppeln. Um die unterschiedlichen Radien in den Bildern a) und c) zu erkennen, wurde in jedes Bild ein Doppelpfeil eingezeichnet, dessen Länge dem Durchmesser der longitudinalen Mode mit dem kleineren Winkel entspricht.

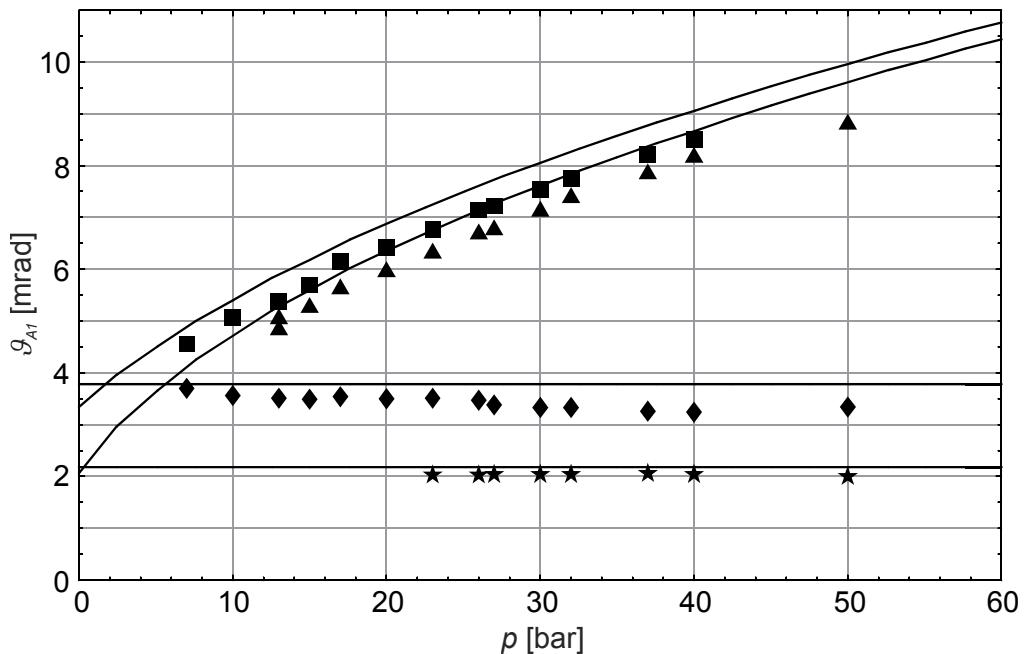


Abbildung 5.6: Konuswinkel ϑ_{A1} der 1. anti-Stokes-Streuung in Abhängigkeit vom Wasserstoffdruck p bei einem Pumpwinkel von $\vartheta_p = 2,66$ mrad. Die verschiedenen Symbole zeigen die beobachteten longitudinalen (■, ▲) und transversalen (◆, ★) 1. anti-Stokes-Moden, die gekrümmten Kurven den theoretischen Konuswinkel der longitudinalen und die waagrechten Linien den Winkel der transversalen 1. anti-Stokes-Moden.

Für eine genauere Untersuchung wurden die Winkel ϑ_{A1} der longitudinalen 1. anti-Stokes-Moden bei einem Pumpwinkel von $\vartheta_p = 2,66$ mrad in einem Druckbereich von 7 bis 50 bar vermessen. Abbildung 5.6 zeigt die gemessenen Werte, die gekrümmten Kurven wurden aus Gleichung (5.2) berechnet, wobei für die untere Kurve der 1. Stokes-Winkel der M_{00} -Mode von $\vartheta_{S1} = 3,4$ mrad verwendet wurde, für die obere ein 1. Stokes-Winkel von 0,9 mrad, was der Divergenz der zentralen 1. Stokes entsprach. Es ist klar erkennbar, dass die Theorie die Druckabhängigkeit gut beschreibt, wobei alle Werte um ca. 0,5 mrad unter-

halb der theoretischen Vorhersage liegen. Der Grund dafür ist wohl in der Ungenauigkeit der Brechungsindexwerte für Wasserstoff zu suchen, die zur Verfügung standen (siehe Anhang B).

Die untere horizontale Linie bei $\vartheta_{AI} = 2,2 \text{ mrad}$ zeigt die transversale Mode für $\psi_{AI} = \psi_{SI}$ bzw. $\psi_{AI} = 2 - \psi_{SI}$ (Abbildung 2.11, beide sind identisch für die 1. Stokes-M₀₀-Mode, d. h. $\psi_{SI} = 1$, siehe Abbildung 2.12) und die obere Linie bei $\vartheta_{AI} = 3,8 \text{ mrad}$ die transversale Mode für $\psi_{AI} = 2 - \psi_{SI}$ (Abbildung 2.11c), wobei hier mit der zentralen 1. Stokes gerechnet wurde. Auch hier liegen die Messpunkte etwas unterhalb der Theorie, was sich wiederum mit der Ungenauigkeit der Brechungsindexwerte erklären lässt. Die nichtvorhandene Druckabhängigkeit der transversalen Moden konnte aber nochmals im Experiment gezeigt werden. (Anmerkung: Genau betrachtet sind natürlich auch die transversalen 1. anti-Stokes-Moden druckabhängig, aber die Abhängigkeit ist auf Grund der kleinen Winkel kleiner als 10^{-5} mrad/bar und somit experimentell nicht nachzuweisen.)

Analog zu Aceton sollte auch bei Wasserstoff eine aplanare, exakte Phasenanpassung möglich sein (siehe Kapitel 4.2). Um dies zu überprüfen, wurde ein kleiner azimuthaler Teil des Pump-Bessel-Bündels abgedeckt und die longitudinalen 1. anti-Stokes-Moden untersucht, die je nach Pumpwinkel ϑ_p und Druck p ebenfalls mit dunklen Stellen im Fernfeldring (im folgenden wieder als Fehlstellen bezeichnet) mit einem bestimmten Zwischenwinkel $\Delta\phi$ reagieren sollten (für eine genaue Beschreibung, Skizze und theoretische Begründung siehe Kapitel 4.2.1). Die Ergebnisse für $\vartheta_p = 2,66 \text{ mrad}$ sind in Abbildung 5.7 dargestellt, wo der azimuthale Winkel $\Delta\phi$ zwischen den Fehlstellen in den longitudinalen 1. anti-Stokes-Moden in Abhängigkeit vom Wasserstoffdruck p aufgetragen ist. Im Experiment war zu beobachten, dass die longitudinale 1. anti-Stokes-Mode mit dem größeren Winkel ϑ_{AI} , die von der zentralen Stokes-Emission erzeugt wird, im gesamten untersuchten Bereich von 7 bis 50 bar keine Fehlstellen aufwies bis auf die Messung bei 7 bar. Dort konnten Fehlstellen beobachtet werden, deren Zwischenwinkel $\Delta\phi$ sich auch hervorragend mit der Theorie deckt, die erst unterhalb von $p = 7,3 \text{ bar}$ Fehlstellen erwarten lässt. Für weitere Messungen bei noch niedrigeren Drücken war leider die Leistung des verwendeten Lasersystems zu gering, um auch bei teilweise abgedecktem Pumpbündel noch eine messbare 1. anti-Stokes-Streuung zu generieren. Die longitudinale 1. anti-Stokes-Mode mit dem kleineren Konuswinkel ϑ_{AI} , die von der 1. Stokes-M₀₀-Mode erzeugt wird, zeigte oberhalb von 20 bar ebenfalls keine Fehlstellen, jedoch in dem leichter zugänglichen Bereich von 13 bis 20 bar. Auch hier bestätigten die Messungen des azimuthalen Zwischenwinkels $\Delta\phi$ der Fehlstellen in der 1. anti-Stokes-Mode die Theorie, die Fehlstellen unterhalb von 21,4 bar vorhersagt. Unterhalb von 13 bar trat diese 1. anti-Stokes-Mode mit dem kleineren Winkel

ϑ_{AI} nicht mehr auf, sodass natürlich keine Fehlstellen mehr beobachtet werden konnte. Die Messgenauigkeit des azimuthalen Zwischenwinkels $\Delta\varphi$ betrug etwa $\pm 10^\circ$.

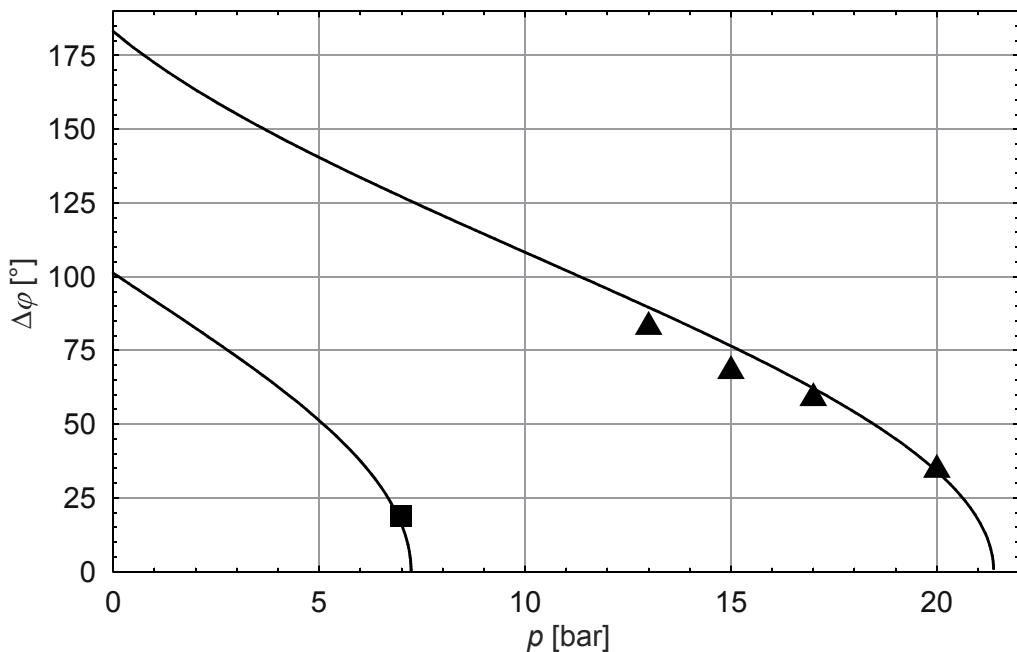


Abbildung 5.7: Azimuthaler Winkel $\Delta\varphi$ zwischen den Fehlstellen in den longitudinalen 1. anti-Stokes-Moden des größeren (■) und kleineren (▲) Fernfeldrings in Abhängigkeit vom Druck p bei einem Pumpwinkel von $\vartheta_p = 2,66$ mrad. Die Kurven zeigen $\Delta\varphi^-$ (Gleichung (5.5)), wobei für die rechte Kurve für ϑ_{SI} der Konuswinkel des 1. Stokes-Rings und für die linke Kurve die Divergenz des 1. Stokes-Flecks verwendet wurde.

Um die Gültigkeit der vorgestellten Theorie weiter zu testen, wurden identische Messungen bei einem Winkel des Pump-Bessel-Bündels von $\vartheta_p = 5,32$ mrad durchgeführt. Wie die Messungen gezeigt haben, trat hier auch bei Drücken bis zu 100 bar keine 1. Stokes- M_{00} -Mode auf, sondern immer nur der zentrale 1. Stokes-Fleck mit einer mittleren Divergenz von ca. 1,0 mrad. Dementsprechend sollte bei diesen Bedingungen auch nur eine longitudinale 1. anti-Stokes-Mode auftreten, was das Experiment bestätigte.

In Abbildung 5.8 sind wiederum die Konuswinkel der beobachteten 1. anti-Stokes-Moden eingezeichnet, die Kurven entsprechen den nach der Theorie erwarteten Werten. Auch hier liegen, wie schon bei $\vartheta_p = 2,66$ mrad, die gemessenen Winkel bei den longitudinalen und transversalen Moden etwa 0,5 mrad unterhalb der Theorie, aber die Übereinstimmung ist gut erkennbar. Bei der eingezeichneten transversalen Mode handelt es sich um die Wellenvektoranpassung in der Konfiguration $\psi_{AI} = 2 - \psi_{SI}$ (Abbildung 2.11), die einen theoretischen Konuswinkel $\vartheta_{AI} = 8,1$ mrad besitzt.

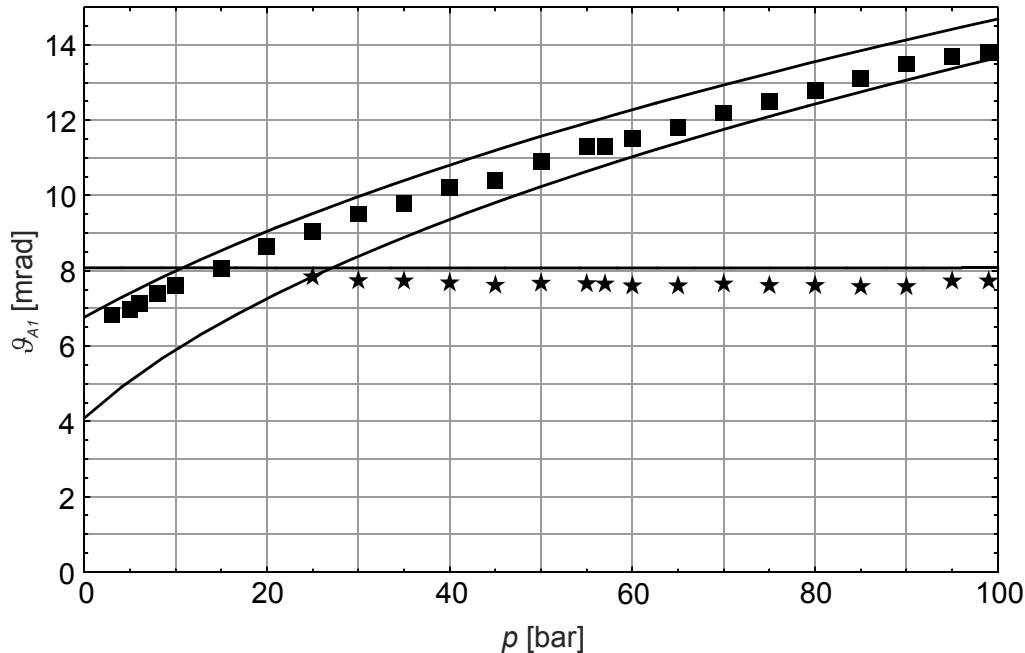


Abbildung 5.8: 1. anti-Stokes-Winkel ϑ_{A1} in Abhängigkeit vom Wasserstoffdruck p bei einem Pumpwinkel von $\vartheta_p = 5,32. Die verschiedenen Symbole zeigen die beobachteten longitudinalen (■) und transversalen (★) Moden, die gekrümmten Kurven den theoretischen Konuswinkel der longitudinalen Moden, die waagrechte Linie den Winkel der transversalen Mode.$

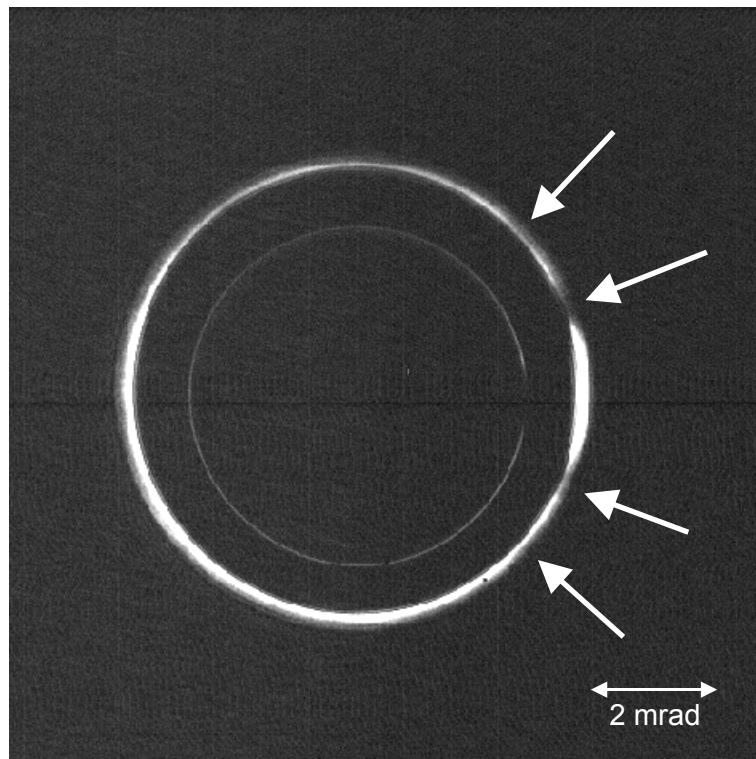


Abbildung 5.9: Abdeckverhalten der longitudinalen 1. anti-Stokes-Mode bei einem Pumpwinkel $\vartheta_p = 5,32\mathrm{mrad}$ und 5 bar Wasserstoffdruck. Das Pump-Bessel-Bündel ist als schwacher, scharfer Ring erkennbar, die Pfeile zeigen die Fehlstellen im Fernfeldring der 1. anti-Stokes-Mode.

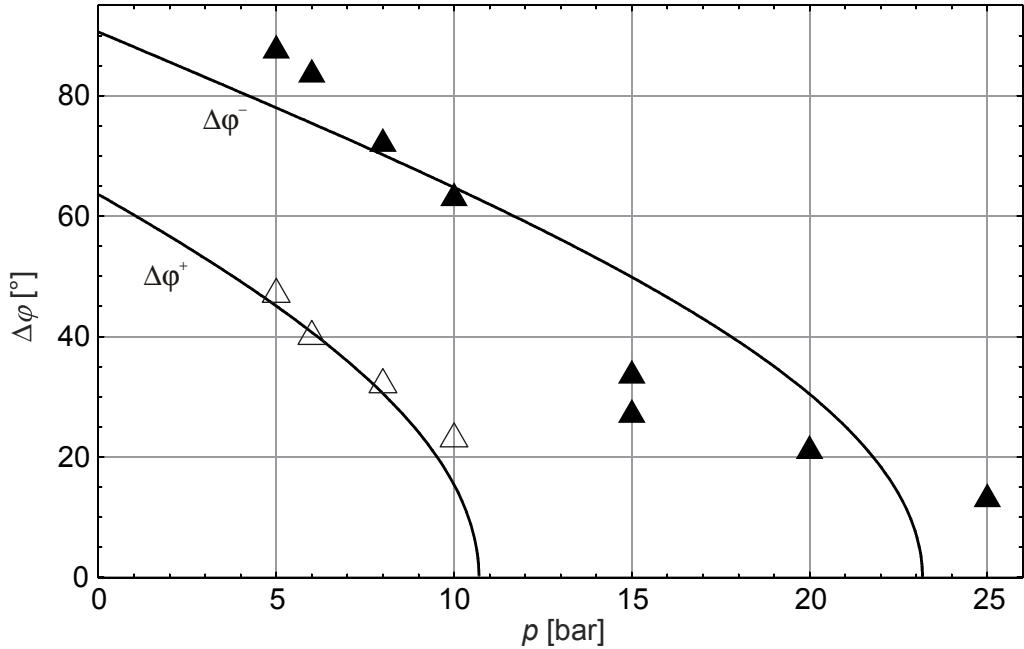


Abbildung 5.10: Azimuthaler Winkel $\Delta\varphi$ zwischen den weiter auseinander liegenden (\blacktriangle) und den enger beisammen liegenden (\triangle) Fehlstellen (siehe auch Abbildung 5.9) in der longitudinalen 1. anti-Stokes-Mode in Abhängigkeit vom Druck p bei einem Pumpwinkel von $\vartheta_p = 5,32$ mrad. Die linke Kurve zeigt $\Delta\varphi^+$, die rechte $\Delta\varphi^-$, wobei jeweils für ϑ_{SI} die Divergenz des 1. Stokes-Flecks verwendet wurde.

Betrachtet man wiederum das Verhalten der longitudinalen 1. anti-Stokes-Mode beim teilweisen Abblocken des Pump-Bessel-Bündels, so ist es hier interessanterweise möglich, bis zu vier Fehlstellen zu erkennen (siehe Abbildung 5.9). Da ein Fehlstellenpaar symmetrisch um die Fehlstelle im Pump-Bessel-Bündel auftreten muss, handelt es sich hierbei also um zwei Fehlstellenpaare, eines mit kleinem und eines mit großem $\Delta\varphi$. Erklären lassen sich die Fehlstellen damit, dass es zwei Möglichkeiten gibt, eine exakte Phasenanpassung zu erreichen: $\psi_{AI} = \psi_{SI} + 2$ (ergibt $\Delta\varphi^-$ aus Gleichung (5.5)) und $\psi_{AI} = 2 - \psi_{SI}$ (ergibt $\Delta\varphi^+$ aus Gleichung (5.5)) (siehe Abbildung 2.11). Obwohl die Divergenz des 1. Stokes-Flecks mit ca. 1,0 mrad sehr klein ist, unterscheiden sich $\Delta\varphi^-$ und $\Delta\varphi^+$ aus Gleichung (5.5) deutlich, wie Abbildung 5.10 zeigt. Dass im Experiment von 5 bis 10 bar beide Varianten gleichzeitig auftreten, zeigen die Messpunkte in Abbildung 5.10, die den azimuthalen Winkel $\Delta\varphi$ zwischen den Fehlstellen in Abhängigkeit vom Wasserstoffdruck p zeigen. Erst oberhalb von 10,8 bar sind nur noch zwei Fehlstellen sichtbar, die theoretisch oberhalb von $p = 23,2$ bar verschwinden sollten. Ab 25 bar konnte auch keine Aufspaltung mehr festgestellt werden. Warum die Messwerte im Bereich von 15 bis 25 bar von den berechneten Kurven mehr abweichen als die restlichen Werte, konnte leider nicht zufriedenstellend geklärt werden.

An dieser Stelle soll auch noch klar darauf hingewiesen werden, dass es offensichtlich kein charakteristisches Intensitätsverhältnis von transversalen und longitudinalen 1. anti-Stokes-Moden gibt. Das relative Verhältnis wird zwar von dem Konuswinkel des Pump-Bessel-Bündels und dem Wasserstoffdruck beeinflusst. Die Experimente haben aber gezeigt, dass die Haupteinflüsse experimentelle Details sind, wie zum einen die exakte Ausleuchtung des Phasengitters mit möglichst ebenen Wellenfronten, was die transversalen Moden bevorzugt und zum anderen die Position der Gaszelle relativ zum Bündel. Bei letzterem werden die transversalen Moden bevorzugt, falls sich die Zelle am Ende des Pump-Bessel-Bündels befindet.

ps-Messungen

Um eventuell weitere Gemeinsamkeiten mit der auftretenden 1. Stokes- und 1. anti-Stokes-Streuung in Aceton zu gewinnen, wurde auch in Wasserstoffgas mit ps-Pulsen gepumpt. Die Ergebnisse zur 1. Stokes-Streuung wurden bereits im vorigen Kapitel präsentiert, hier soll noch kurz auf die auftretenden 1. anti-Stokes-Moden eingegangen werden. Da aufgrund der transienten Streuverhältnisse ([Lög94], Seite 10ff) zu erwarten ist, dass die Effizienz der Raman-Streuung in Wasserstoff mit ps-Pulsen geringer ist und vor allem die Strahlqualität deutlich schlechter ist⁵, wurde als Pumpwinkel des Bessel-Bündels $\vartheta_p = 2,66 \text{ mrad}$ gewählt, da bei diesem Konuswinkel mit ns-Pulsen die saubersten Ergebnisse gewonnen werden konnten. Außerdem treten je nach Druck bei $\vartheta_p = 2,66 \text{ mrad}$ sowohl die konusförmige 1. Stokes- M_{00} -Mode als auch der zentrale 1. Stokes-Fleck auf, wodurch keine 1. anti-Stokes-Mode unentdeckt bleiben sollte.

Das durchaus überraschende Ergebnis für das Fernfeld der 1. anti-Stokes-Streuung zeigt Abbildung 5.11, aufgenommen bei einem Gasdruck von 30 bar. Es treten nicht nur die transversalen Moden (inneren Ringe) auf, die schon mit ns-Pulsen beobachtet werden konnten, die allerdings hier etwas „verwaschener“ auftreten, sondern auch eine Vielzahl von äußeren Ringen, die denen von longitudinalen Moden ähnlich sehen. Diese Moden konnten aber nicht nur bei 30 bar sondern im gesamten Bereich bis 65 bar beobachtet werden. Es traten bis zu fünf derartige Moden gleichzeitig auf.

⁵ Ein optischer Defekt im Pulsschneider führte immer zu einer deutlich erkennbaren asymmetrischen Form des Laserstrahls

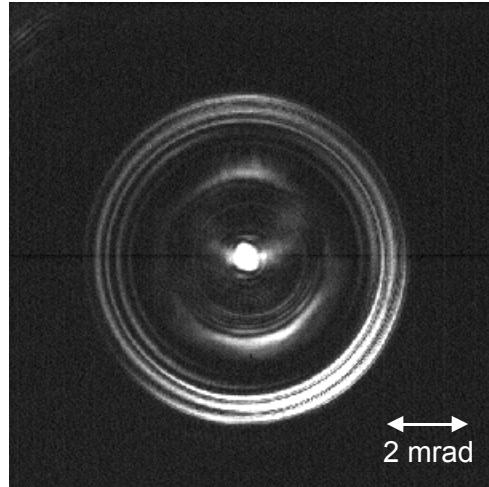


Abbildung 5.11: Typisches Beispiel einer 1. anti-Stokes-Emission bei einem Pumpwinkel von $\vartheta_p = 2,66$ mrad und $p = 30$ bar in Wasserstoffgas mit ps-Pulsen. Die ungleichmäßige azimuthale Intensitätsverteilung entsteht durch ein ebenso ungleichmäßiges Pumpbündel.

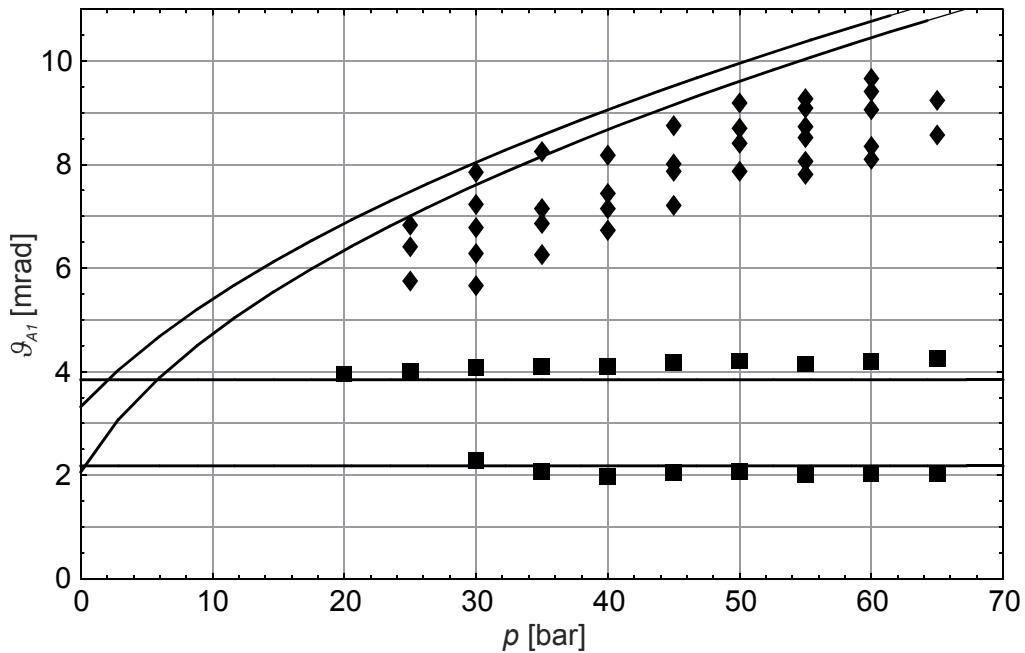


Abbildung 5.12: 1. anti-Stokes-Winkel ϑ_{A1} in Abhängigkeit vom Wasserstoffdruck p bei einem Pumpwinkel von $\vartheta_p = 2,66$ mrad mit ps-Pulsen. Die verschiedenen Symbole zeigen die beobachteten longitudinalen (◆) und transversalen (■) Moden, die gekrümmten Kurven den theoretischen Konuswinkel der longitudinalen Moden, die waagrechten Linien den Winkel der transversalen Moden.

Abbildung 5.12 zeigt die ermittelten Konuswinkel ϑ_{A1} als Funktion des Wasserstoffdrucks p . Neben den Kurven für die transversalen Moden (siehe Abbildung 2.11); analog zu den Kurven in Abbildung 5.6, Messung mit ns-Pulsen) ist wiederum der theoretische Verlauf

(Gleichungen (4.6) und (4.9)) der beiden longitudinalen Moden eingezeichnet, die durch die konusförmige und die axiale 1. Stokes-Streuung auftreten. Berücksichtigt man wieder den möglichen Fehler in den Brechungsindices von Wasserstoff, so handelt es sich wahrscheinlich bei den äußersten Moden um diejenigen, die auch mit ns-Pulsen beobachtet wurden. Die zusätzlichen Fernfeldringe zeigen allerdings die gleiche Druckabhängigkeit wie longitudinale Moden, woraus man zumindest schließen kann, dass es sich nicht um transversale Moden handelt. Da jedoch auch keine Möglichkeit der longitudinalen Wellenvektoranpassung gefunden werden konnte, die quantitativ diese zusätzlichen Moden erklären kann, bleibt fraglich, welcher Art diese Fernfeldringe sind. Ausgeschlossen werden kann jedoch ein Fehler im optischen Aufbau, da die exakt identische Anordnung auch bei den ns-Pulsen zur Anwendung kam. Es kann sich also nicht um eventuelle Mehrfachreflexionen an Linsen, Filtern oder Glasscheiben handeln. Weiterhin haben die Messungen der 1. Stokes-Emission keine zusätzlichen 1. Stokes-Moden gezeigt, mit denen die aufgetretenen 1. anti-Stokes-Moden erklärt werden könnten.

Offensichtlich greift hier das relativ einfache Modell von transversaler und/oder longitudinaler Wellenvektoranpassung nicht mehr, sodass man wohl zur Erklärung dieser Moden die vollständigen *zeitabhängigen* Differentialgleichungen (siehe Baier [Bai02]) lösen muss, worauf in dieser Arbeit aus Zeitgründen verzichtet wurde.

5.3 Große Pumpkonuswinkel

In der bisher bekannten Literatur wurden keine Daten veröffentlicht, die die Raman-Streuung in Wasserstoff bei Pumpwinkeln behandeln, die größer als wenige mrad sind. Lediglich bei Niggl [Nig99] findet sich eine Messung von 6 bis 18 mrad der longitudinalen 1. anti-Stokes-Mode, die vom 1. Stokes-Fleck erzeugt wird. Um bei noch höheren Winkeln messen zu können, wurde eine extrem kurze Wasserstoffzelle von 19 cm gebaut, die dennoch einem Druck bis zu 50 bar standhält. Die hohe Druckfestigkeit ist wichtig, da sich bereits bei kleinen Winkeln gezeigt hat, dass für kurze Zellen (kleiner als 50 cm) bei niedrigen Drücken die Schwellen für die 1. Stokes- und 1. anti-Stokes-Streuung stark ansteigen und mit dem vorhandenen Lasersystem somit keine Raman-Streuung registriert werden konnte.

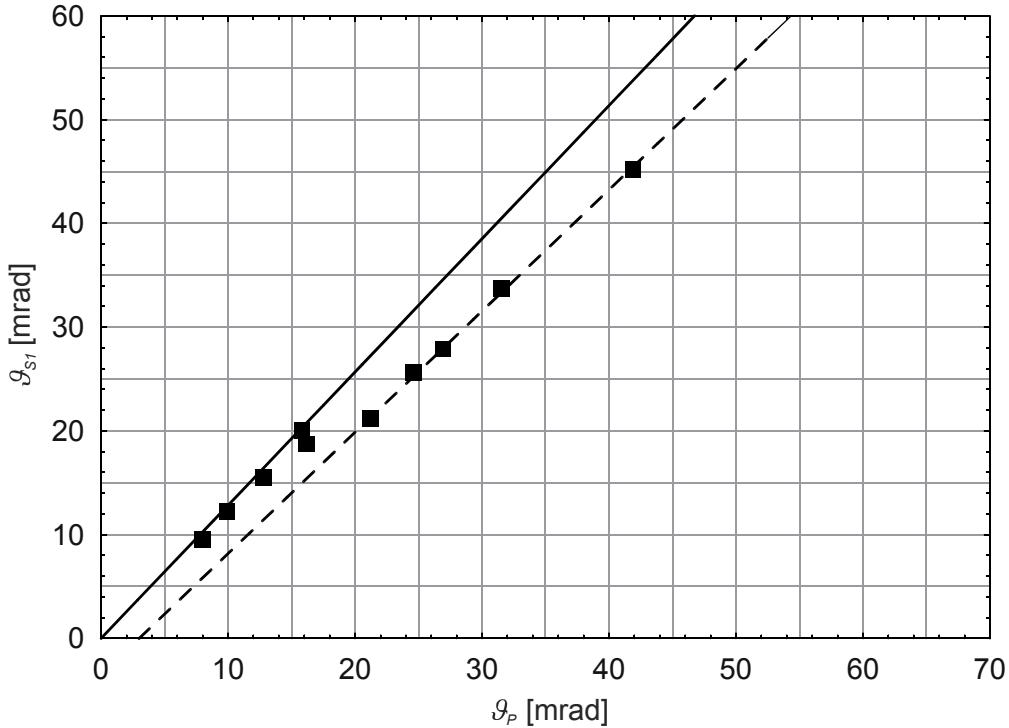


Abbildung 5.13: Konuswinkel ϑ_{SI} der 1. Stokes in Abhängigkeit vom Pumpwinkel ϑ_p . Die Quadrate zeigen die Messwerte, die durchgezogene Linie stellt Gleichung (2.30), die gestrichelte Linie einen linearen Fit durch die Messpunkte von $\vartheta_p = 20$ bis 45 mrad dar.

Durch die Verwendung von Phasengittern mit 2,66 und 10,64 mrad und nachfolgenden Teleskopen konnten die Konuswinkel des Pump-Bessel-Bündels von 8 bis 70 mrad variiert werden. Die Ergebnisse sind in diesem Kapitel dargestellt. In Abbildung 5.13 ist der Konuswinkel ϑ_{SI} der 1. Stokes-M₀₀-Mode gegen den Pumpwinkel ϑ_p aufgetragen und als durchgezogene Linie der theoretische Konuswinkel der M₀₀-Mode (Gleichung (2.30)) eingezeichnet. Neben dem zentralen 1. Stokes-Fleck, der immer deutlich intensiver in Erscheinung trat, zeigte sich auch die M₀₀-Mode in guter Übereinstimmung mit der Theorie bis zu einem Pumpwinkel von $\vartheta_p = 16$ mrad. Bei höheren Pumpwinkeln scheint plötzlich die M₀₀-Mode zu verschwinden und eine andere konusförmige 1. Stokes-Streuung mit einem ca. 20 % kleineren Konuswinkel aufzutreten. Diese Punkte wurden ohne physikalischen Hintergrund durch eine Gerade angefittet wie sie in Abbildung 5.13 als gestrichelte Linie zu sehen ist. Was hier genau passiert, konnte aus Zeitgründen in dieser Arbeit nicht mehr geklärt werden. Allerdings sollte erwähnt werden, dass die fragliche 1. Stokes-Mode nur auftrat, wenn die Wasserstoffzelle exakt parallel zum Pumpbündel justiert wurde, so dass eine maximale Rückkopplung auftreten kann.

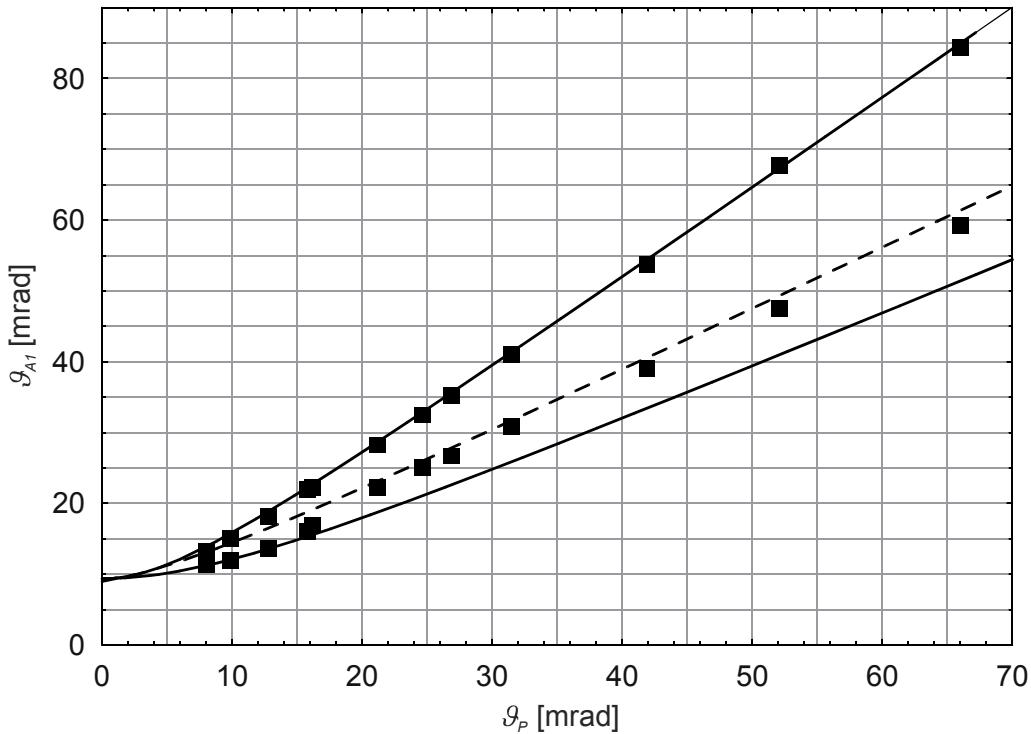


Abbildung 5.14: Konuswinkel ϑ_{A1} der 1. anti-Stokes in Abhängigkeit vom Pumpwinkel ϑ_p . Die Quadrate stellen die Messpunkte dar, die obere bzw. untere durchgezogene Kurve stellt Gleichung (5.2) mit dem 1. Stokes-Fleck bzw. der 1. Stokes- M_{00} -Mode dar. Die gestrichelte Kurve ist ebenfalls die longitudinale Phasenanpassung nach Gleichung (5.2), allerdings mit dem Fit aus Abbildung 5.13 für den Konuswinkel der 1. Stokes.

Abbildung 5.14 zeigt die ermittelten 1. anti-Stokes-Winkel. Die Quadrate stellen die gemessenen Winkel dar, die obere durchgezogene Linie zeigt den Konuswinkel nach der longitudinalen Wellenvektoranpassung mit dem 1. Stokes-Fleck, die untere durchgezogene Linie die entsprechende Anpassung mit der 1. Stokes- M_{00} -Mode (Gleichung (5.2)). Es konnte erwartungsgemäß nicht nur die longitudinale Mode beobachtet werden, die durch den 1. Stokes-Fleck erzeugt wird, sondern auch die durch den 1. Stokes-Ring verursachte Mode. Allerdings zeigt sich auch hier ab dem Pumpwinkel $\vartheta_p = 21$ mrad ein ähnliches Verhalten wie bei der 1. Stokes. Die experimentellen Punkte weichen von der Theoriekurve, die mit dem theoretischen Winkel der M_{00} -Mode (durchgezogene Kurve in Abbildung 5.13) berechnet wurde, ab. Allerdings zeigt sich eine gute Übereinstimmung dieser Messpunkte mit der Theoriekurve, die mit dem Fit der experimentellen Winkel der 1. Stokes- M_{00} -Mode berechnet wurde (gestrichelte Linie in Abbildung 5.14). Man kann also sehen, dass die 1. anti-Stokes vollständig gedeutet werden kann, lediglich für die Konuswinkel der 1. Stokes- M_{00} -Mode fehlt eine Erklärung.

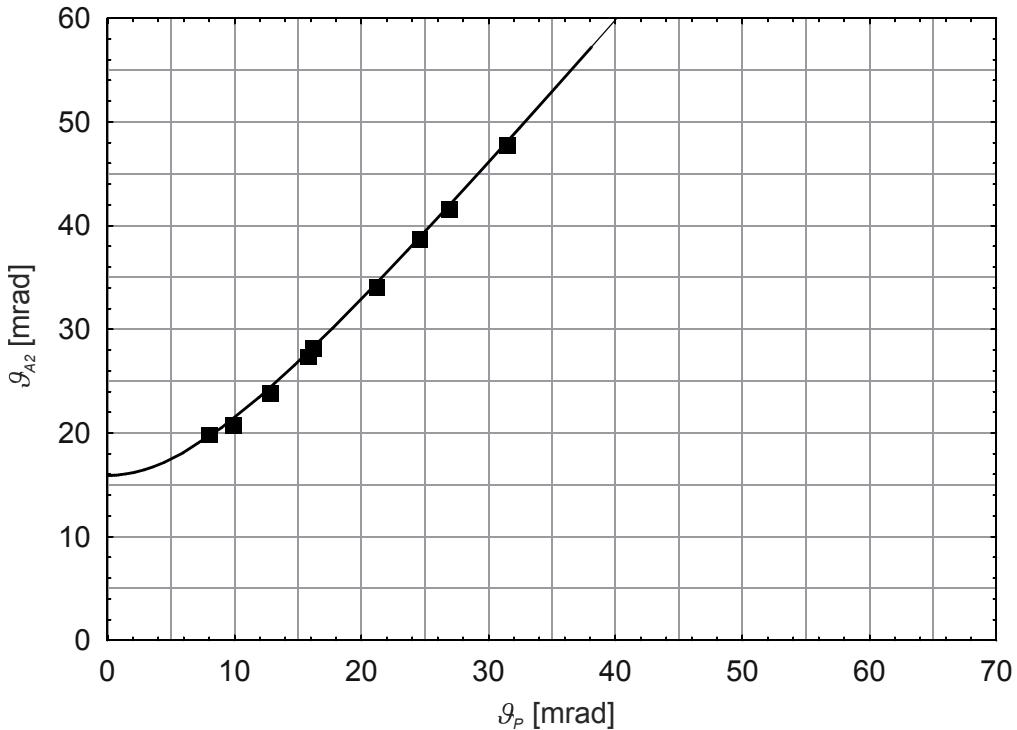


Abbildung 5.15: Konuswinkel ϑ_{A2} der 2. anti-Stokes in Abhängigkeit vom Pumpwinkel ϑ_p . Die Quadrate zeigen die gemessenen Winkel, die Kurve stellt die longitudinale Phasenanpassung mit dem 1. Stokes-Fleck, dem Pump- und dem 1. anti-Stokes-Konus dar (Gleichung (4.15)).

Neben der Stokes- und anti-Stokes-Emission 1. Ordnung konnte auch die 2. anti-Stokes beobachtet werden, deren Konuswinkel in Abbildung 5.15 als Quadrate eingezeichnet sind. Auch hier gibt es analog zu Aceton die gleichen drei Möglichkeiten zur Erzeugung einer 2. anti-Stokes-Mode, wobei auch hier die gleiche Argumentation wie in Kapitel 4.3 angewendet werden kann. Somit würden wieder zwei Prozesse zur Auswahl stehen, die sich nur durch Blockexperimente unterscheiden ließen. Da aber der Fernfeldring der 2. anti-Stokes-Streuung zu schwach war, um die Reaktion auf ein teilweises Abdecken des Pumpkonus zu beobachten, muss hier auf die Erfahrungen bei Aceton zurückgegriffen werden. Mit dem einzigen Argument der höheren Leistung handelt es sich bei der beobachteten 2. anti-Stokes um eine longitudinale Mode, die durch die Wellenvektoranpassung von je einem Pump-, zentralem 1. Stokes-Fleck- und 1. anti-Stokes-Vektor (Abbildung 4.6, Prozess 1) entsteht. Wie in Abbildung 5.15 zu sehen, stimmen die Werte über den gesamten gemessenen Pumpwinkelbereich sehr gut mit der Theorie (Gleichung (4.15), Kurve in Abbildung 5.15) überein.

5.4 Zusammenfassung Wasserstoff

In diesem Kapitel wurden einige Messungen zur stimulierten Raman-Streuung in Wasserstoff vorgestellt, die die Ergebnisse der Vorgängerarbeiten ergänzen sollten. Dort war es unter anderem ein Problem, die 1. Stokes- M_{0A} -Mode zufrieden stellend zu erklären. Durch die Messung bei unterschiedlichen Pump-Leistungen konnte hier gezeigt werden, dass die konusförmige M_{00} -Mode der Modentheorie folgt, d. h. sie taucht je nach Pumpwinkel nur oberhalb eines bestimmten Drucks auf. Allerdings konnten die Probleme mit der 1. Stokes- M_{0A} -Mode bestätigt werden. Sie zeigt eine Moden-untypische Abhängigkeit von der Länge des Pump-Bessel-Bündels und verschwindet nicht unter den oben genannten Bedingungen, bei denen nur die 1. Stokes- M_{00} -Mode erscheinen sollte. Dies weist klar darauf hin, dass es sich beim 1. Stokes-Fleck nicht um eine Mode handeln kann. Im Widerspruch dazu steht lediglich das Donut-förmige Aussehen des 1. Stokes-Flecks, das nur mit einer Modentheorie zufrieden stellend erklärt werden kann. Es konnte jedoch kein Experiment gefunden werden, um daraus eine Theorie für die widersprüchlichen Eigenschaften des 1. Stokes-Flecks abzuleiten. Die naheliegendsten Versuche einer Erklärung sind das Auftreten eines normalen Gauß-förmigen 1. Stokes-Flecks der von einer schwachen 1. Stokes- M_{0A} -Mode überlagert ist oder eine nicht voll ausgebildete M_{0A} -Mode, weil die Wechselwirkungslänge im Verstärkungskanal des Pumplichts zu kurz ist.

Bei der 1. anti-Stokes-Streuung in Wasserstoffgas wurde erstmals die Druckabhängigkeit der konusförmigen 1. anti-Stokes-Komponenten untersucht, die aus der longitudinalen Wellenvektoranpassung entstehen. Sowohl die 1. anti-Stokes, die durch die Anpassung mit dem 1. Stokes-Fleck als auch die, die durch die 1. Stokes- M_{00} -Mode generiert wird, konnte beobachtet werden und der Konuswinkel beider Komponenten wies eine gute Übereinstimmung mit der Theorie auf. Weiterhin wurde für verschiedene Pumpkonuswinkel mit Hilfe von Abblockexperimenten nachgewiesen, dass auch in Wasserstoff eine exakte aplanare Phasenanpassung möglich ist. Auch hier berechnet sich der Konuswinkel ϑ_A aus der longitudinalen Wellenvektoranpassung und der Winkel $\Delta\varphi$ zwischen den transversalen Komponenten der Pumpwellenvektoren aus der transversalen Anpassung.

Beim Pumpen mit ps-Pulsen zeigten sich bei der 1. Stokes keine großen Unterschiede im Vergleich zu den Experimenten mit ns-Pulsen, lediglich der axiale 1. Stokes-Fleck wies ein anderes Verhalten auf. Während er beim Pumpen mit ns-Pulsen bei kleinen Pumpwinkeln und hohen Drücken nicht auftrat, war er mit ps-Pulsen immer nachzuweisen. Bezuglich der 1. anti-Stokes mussten jedoch deutliche Veränderungen festgestellt werden. Während die Komponenten, die sich mit transversaler Wellenvektoranpassung erklären lassen, unverän-

dert auftraten, tauchten neben den, aus den ns-Experimenten bekannten, longitudinalen Komponenten zusätzliche Ringe im Fernfeld auf. Diese zeigten eine identische Druckabhängigkeit wie die longitudinalen Komponenten, allerdings konnte keine Theorie gefunden werden, die die Konuswinkel erklären könnte.

6 Vergleich von Aceton und Wasserstoff

Neben der prinzipiellen Analyse der stimulierten Raman-Streuung in Wasserstoffgas und vor allem in flüssigem Aceton, war es ein Ziel dieser Arbeit, festzustellen, in wie weit sich Gemeinsamkeiten für die Raman-Streuung in den beiden Medien finden lassen. Für die Fälle, wo klare Unterschiede erkennbar waren, werden wir versuchen, einen Erklärungsansatz zu vermitteln.

Beginnen wir mit der 1. Stokes-Streuung. In beiden Medien beobachtet man das Auftreten der verstärkungsgeführten M_{00} -Mode, deren Konuswinkel auch mit allen Rechnungen übereinstimmt. Parallel dazu erscheint in Wasserstoff und Aceton immer ein intensiver 1. Stokes-Fleck. Weiterhin zeigt keine der beiden 1. Stokes-Komponenten eine klare Abhängigkeit von der Pulslänge des Pumpbündels. Auch die Pumpleistung, bei der die M_{00} -Mode auftaucht, war in beiden Medien immer höher als die benötigte Leistung, bei der sich der 1. Stokes-Fleck bildet. Letzterer ist also immer die dominierende 1. Stokes-Komponente. In Wasserstoff zeigte sich nur bei sehr kleinen Winkeln ($\vartheta_p < 3 \text{ mrad}$) ein umgekehrtes Verhalten, d. h. die M_{00} -Mode erscheint bei den geringeren Pumpleistungen. Allerdings fehlen in diesem Winkelbereich die Vergleichsdaten zu Aceton. Was den 1. Stokes-Fleck betrifft, konnte in Aceton nie die für Wasserstoff übliche Donut-Form beobachtet werden.

Sehr interessant wäre es in diesem Fall natürlich, in Aceton die 1. Stokes-Streuung im Pumpwinkelbereich $\vartheta_p < 3 \text{ mrad}$ zu untersuchen. Dies wäre allerdings nur in einer Küvette mit einer Länge von mindestens 100 cm möglich, was in diesem Rahmen technisch zu aufwändig geworden wäre. Denn es wäre ein hoher Aufwand für die Temperaturstabilisierung der Küvette nötig, um Konvektionsströmungen zu verhindern.

Die große Diskrepanz bei der 1. anti-Stokes-Streuung in den beiden Medien war das unterschiedliche Auftreten der longitudinalen und transversalen Komponenten. Während in älteren Arbeiten in Wasserstoff die transversalen Komponenten dominierten, waren in Aceton

immer nur die longitudinalen Moden zu sehen. Durch die hier vorgestellten Messungen konnten diese Widersprüche zum Großteil geklärt werden. Die 1. anti-Stokes wird in beiden Medien durch die Wechselwirkung mit dem Pumpkonus und dem 1. Stokes-Fleck bzw. der 1. Stokes-M₀₀-Mode über einen Vier-Photonen-Prozess generiert. Bei den transversalen Moden zeigte sich eine klare Abhängigkeit von der Pulslänge des verwendeten Pumpbündels. Pumpt man mit ns-Pulsen, so ist davon auszugehen, dass sich ein relativ guter auf Verstärkungsführung basierender Wellenleiter ausbilden kann, da diese Pulse eine Länge von ca. 4 m besitzen. In der Wellenleitertheorie werden die Moden aus den transversalen Randbedingungen berechnet, das entspricht den transversalen Raman-Moden. Man kann also davon ausgehen, dass bei gut ausgebildeten Wellenleitern die transversalen Raman-Moden bevorzugt auftreten, was in Übereinstimmung mit den Experimenten ist. Mit ns-Pulsen wurden in Wasserstoff schon immer sehr intensive transversale 1. anti-Stokes-Moden gemessen und auch in Aceton tauchten nur beim Pumpen mit ns-Pulsen transversale Moden auf (Kapitel 4.6). Mit ps-Pulsen, bei denen auf Grund der kurzen Länge der Wellenleiter deutlich schlechter ausgebildet sein sollte, konnten in Aceton nie transversale Moden in der 1. anti-Stokes beobachtet werden und auch in Wasserstoff waren sie deutlich schwächer als bei vergleichbaren Messungen mit ns-Pulsen. Ebenso sollte ein kleiner Pumpkonuswinkel und somit ein langes Bessel-Bündel für eine längere Führung der Raman-Moden im Wellenleiter sorgen. Dies konnte im Experiment mit Wasserstoff ebenfalls beobachtet werden, denn bei höheren Pumpwinkeln ($\vartheta_p > 10$ mrad) tauchten nie transversale Moden in der 1. anti-Stokes auf. Es sollte jedoch noch darauf hingewiesen werden, dass auch andere Parameter wie z. B. die Positionierung der Zelle (Kapitel 5.2) einen Einfluss auf die Intensitätsverteilung im 1. anti-Stokes-Modenspektrum haben.

Da hier zum ersten Mal die 2. anti-Stokes-Streuung in Wasserstoffgas beobachtet wurde (Kapitel 5.3), können wir auch dazu einen Vergleich aufstellen. Es hat sich gezeigt, dass sich in jedem Medium die 2. anti-Stokes durch einen Vier-Photonen-Prozess mit dem Pumpkonus, dem 1. Stokes-Fleck und dem 1. anti-Stokes-Konus erklären lässt. Entscheidend ist hier, dass sowohl bei Wasserstoff als auch bei Aceton der Prozess dominiert, der die intensivsten Lichtfeldstärken beinhaltet.

7 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde die stimulierte Raman-Streuung in flüssigem Aceton und Wasserstoffgas unter Verwendung von ausbreitungsvarianten J_0 -Bessel-Bündeln behandelt. Zur Herstellung der J_0 -Bessel-Bündel wurden verschiedene vierstufige Rechteck-Phasengitter oder ein Glas-Axicon verwendet, die mit einem frequenzverdoppelten 30 ps- oder 13 ns-Nd:YAG-Laser beleuchtet wurden. Diese Lichtbündel dienen zum Pumpen der stimulierten Raman-Streuung. Die Fernfelder (Winkelspektren) der generierten Stokes- und anti-Stokes-Bündel wurden mit einer CCD-Kamera aufgenommen und am Computer ausgewertet oder direkt auf einer Leinwand beobachtet. Um die Messergebnisse theoretisch deuten zu können, wurden die longitudinalen und transversalen Anpassungen von verschiedenen dreidimensionalen Diagrammen der Wellenvektoren der beteiligten Lichtbündel ausgewertet, die eine entsprechende Raman-Streuung generieren können.

In Aceton wurde beim Pumpen mit ps-Pulsen zunächst die 1. Stokes-Streuung beobachtet, wobei neben einer axialen Streuung die zusätzliche konusförmige 1. Stokes-Streuung als verstärkungsgeführte M_{00} -Mode identifiziert werden konnte. Bei der 1. anti-Stokes-Streuung berechnen sich die Konuswinkel der zwei auftretenden Fernfeldringe durch die longitudinale Anpassung der beteiligten Wellenvektoren. Hier sind neben einem 1. anti-Stokes-Photon jeweils zwei Photonen des Pumpbündels und ein Photon des 1. Stokes-Flecks oder der 1. Stokes- M_{00} -Mode beteiligt. Zusätzlich wurde nachgewiesen, dass der durch den 1. Stokes-Fleck entstehende 1. anti-Stokes-Konus exakt aplanar phasenangepasst werden kann. Dazu wurde im Experiment ein azimuthaler Teil des Pumpbündels abgeblockt und die dadurch entstehenden dunklen Stellen (Fehlstellen) im 1. anti-Stokes-Fernfeldring ausgewertet.

Die gemessenen Konuswinkel der 2. anti-Stokes-Streuung geben keinen klaren Aufschluss darüber, welcher der drei möglichen energieerhaltenden Generationsprozesse für die Erzeugung verantwortlich ist. Aus diesem Grund wurden auch hier Abblockexperimente

durchgeführt und die Reaktion des 2. anti-Stokes-Fernfeldrings mit numerischen Simulationen verglichen, da die zugrunde liegende transversale Geometrie für eine analytische Auswertung zu kompliziert ist. Als dominierender Mechanismus wurde damit eindeutig der Vier-Photonen-Prozess identifiziert, der die 2. anti-Stokes-Streuung mit einem Pump-, 1. anti-Stokes- und axialem 1. Stokes-Photon generiert. Der Konuswinkel der 2. anti-Stokes-Streuung berechnet sich aus der entsprechenden longitudinalen Wellenvektoranpassung. Dieser Prozess wurde bereits in Vorüberlegungen favorisiert, da er beim Betrachten der beteiligten Lichtintensitäten die stärkste Streuung liefern sollte.

Bei der 2. Stokes-Streuung wurde neben einer intensiven axialen Streuung ebenfalls eine konusförmige Komponente erfasst. Analog zur 2. anti-Stokes-Streuung standen drei mögliche Generationsprozesse zur Auswahl. Der maßgebliche Prozess ist hier ein Vier-Photonen-Prozess, bei dem ein Pumpphoton und zwei Photonen des 1. Stokes-Flecks beteiligt sind. Diese Erkenntnis wurde zum einen aus der Abschätzung der Lichtintensitäten und zum anderen aus der Tatsache gewonnen, dass der Konuswinkel der 2. Stokes-Streuung bei kleinen Pumpwinkeln der zugehörigen transversalen Wellenvektoranpassung folgt. Weiterhin wurde durch all diese Experimente zur Raman-Streuung 2. Ordnung in Aceton eindeutig gezeigt, dass die von Vaicaitis et al. [Vai00] veröffentlichte Theorie für den hier präsentierten Messbereich ungültig ist.

In einem kleinen Pumpwinkelbereich konnte auch erstmals eine konusförmige 3. Stokes-Streuung detektiert werden. Es wurde gezeigt, dass auch hier die gemessenen Konuswinkel mit dem intensivsten Generationsprozess übereinstimmen. Die beteiligten Photonen stammen vom Pumpkonus und dem 1. und 2. Stokes-Fleck.

Bemerkenswert ist hier noch zu erwähnen, dass sich die gute Übereinstimmung der theoretischen Berechnungen mit den Experimenten allein aus der Raman-Frequenzverschiebung und den Brechungsindexdaten für Aceton und der Geometrie der Prozesse ergibt und nicht durch die Anpassung freier Parameter wie in [Gad99] und [Vai00].

Die Untersuchungen zur stimulierten Raman-Streuung in Wasserstoff mit ns-Pulsen führten dazu, dass die Interpretation der axialen 1. Stokes-Streuung als verstärkungsgeführte M_{0A} -Mode als falsch anzusehen ist. Die Divergenz dieses 1. Stokes-Flecks weist nämlich eine klare Abhängigkeit von der Länge des Pump-Bessel-Bündels auf, wie es für reine vollentwickelte Moden nicht der Fall sein sollte. Außerdem taucht der 1. Stokes-Fleck bei Drücken und Pumpwinkeln auf, bei denen er nach der Modentheorie unterdrückt werden sollte. Offensichtlich kann sich eine M_{0A} -Mode nicht vollständig ausbilden.

Bei der 1. anti-Stokes-Streuung in Wasserstoff wurde erstmals gezeigt, dass auch hier die exakte aplanare Phasenangepassung bevorzugt wird, falls dies möglich ist. Dazu wurde bei verschiedenen Pumpwinkeln die Druckabhängigkeit der 1. anti-Stokes-Komponente gemessen, deren Konuswinkel sich aus der longitudinalen Wellenvektoranpassung ergibt. Die bereits erwähnten Abblockexperimente belegten auch in Wasserstoff die aplanare Geometrie beider longitudinalen 1. anti-Stokes-Komponenten, die durch den 1. Stokes-Fleck bzw. durch die 1. Stokes- M_{00} -Mode generiert werden. Zusätzlich konnte erstmals die mit Hilfe des 1. Stokes-Flecks generierte 1. und 2. anti-Stokes-Streuung bis zu einem Pumpwinkel von 40 mrad beobachtet werden, wobei beide der Theorie der longitudinalen Wellenvektoranpassung folgen.

Der abschließende Vergleich der stimulierten Raman-Streuung in flüssigem Aceton und Wasserstoffgas offenbarte viele Gemeinsamkeiten. So zeigte sich bei der 1. Stokes-Streuung in beiden Medien zuerst der intensive axiale Fleck und erst bei höheren Pumpintensitäten die verstärkungsgeführte M_{00} -Mode. Bei der Betrachtung der 1. anti-Stokes-Streuung offenbarte sich, dass beim Pumpen mit ns-Pulsen und kleinen Winkeln des Pumpkonus ein guter Wellenleiter gebildet wird, der sowohl bei Wasserstoff als auch bei Aceton transversale Raman-Moden begünstigt. Die ps-Pulse bilden auf Grund ihrer kurzen Länge offensichtlich einen schlechteren Wellenleiter. Hier werden die longitudinalen Raman-Moden bevorzugt, während die transversalen bei Wasserstoff geschwächt bzw. bei Aceton vollständig unterdrückt werden.

ANHANG

A Optische Daten von Aceton

Aceton zeigt für die stimulierte Raman-Streuung zwar nicht so hervorragende Eigenschaften wie Wasserstoff (siehe Anhang B), aber andere nichtlineare Effekte, wie z. B. die stimulierte Brillouin-Streuung, können durch die Verwendung von sehr kurzen Pulsen im ps-Bereich unterdrückt werden. Auch auf eine messbare Selbstfokussierung gab es während der durchgeführten Experimente keine Hinweise. Die Vorteile der stimulierten Raman-Streuung in Aceton sind eine große Raman-Frequenzverschiebung, wodurch Messungen ohne besonders teure Interferenzfilter möglich waren und sowohl die 1. und 2. anti-Stokes- als auch die 1. Stokes-Streuung im sichtbaren Frequenzbereich liegen, was die Experimente erleichterte. Durch die hohe Raman-Verstärkung von Aceton war es außerdem möglich, mit den zur Verfügung stehenden Lasern eine gut sichtbare Raman-Streuung zu erzielen.

Bei der Raman-Linie von Aceton mit dem höchsten Verstärkungsfaktor handelt es sich um eine symmetrische Streckschwingung der $-\text{CH}_3$ -Gruppen mit einer Raman-Frequenzverschiebung von $\nu = 2927 \text{ cm}^{-1}$ [Bru03]. Alle anderen Verstärkungsfaktoren für die Streck- oder Biegungs-Schwingungen sind im Raman-Spektrum von Aceton um mindestens eine Größenordnung schwächer und spielen daher bei der stimulierten Raman-Streuung keine Rolle. Bei der entscheidenden Schwingung von Aceton beträgt der Raman-Verstärkungsfaktor $g_0 \approx 1,2 \frac{\text{cm}}{\text{GW}}$ [Nig97].

Ausschlaggebend für die Theorie der Wellenvektoranpassung bei der Raman-Streuung ist aber der Brechungsindex in Aceton bei den entsprechenden Wellenlängen der Stokes- und anti-Stokes-Komponenten. Da Daten für exakt diese Wellenlängen nicht vorlagen, wurden ursprünglich Brechungsindexwerte für verschiedene Wellenlängen aus [Lan96] entnommen und mit Hilfe der Sellmeier-Formel

$$n(\lambda) = \sqrt{1 + \frac{C_1 \lambda^2}{\lambda^2 - C_2}} \quad (\text{A.1})$$

gefittet. Damit konnten die Brechungsindices und folglich die Beträge der Wellenvektoren für die gesuchten Wellenlängen gewonnen werden. Allerdings zeigte sich, dass damit die Theorie signifikant von den Messwerten (Kapitel 4) abwich.

Aufgrund dieser systematischen Abweichung und da die verwendeten Acetondaten aus [Lan96] aus dem Jahr 1927 stammten, wurde bei der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt in Braunschweig eine genauere Messung angefordert. Diese Daten [PTB05] sind in Tabelle A.1 aufgeführt.

Tabelle A.1: Brechungsindices von Aceton p.a. bei 20,000 °C für verschiedene Wellenlängen, gemessen von der PTB Braunschweig. Die Unsicherheit der Brechzahl beträgt $3 \cdot 10^{-5}$ für die Wellenlängen 598 und 579 nm und $1 \cdot 10^{-5}$ für die anderen Wellenlängen.

Wellenlänge λ [nm]	Brechungsindex
644	1.356981
589	1.358581
579	1.358958
546	1.360218
509	1.362016
480	1.363699
436	1.367053
404	1.370194

Der Fit dieser neuen Werte wurde wieder nach der Sellmeier-Formel mit Mathematica durchgeführt, was die folgende Formel für den Brechungsindex von Aceton bei einer Temperatur von 20,000 °C ergibt, wobei λ in nm eingesetzt werden muss:

$$n(\lambda) = \sqrt{1 + \frac{0,819494 \lambda^2}{\lambda^2 - 10781,1 \text{ nm}^2}}. \quad (\text{A.2})$$

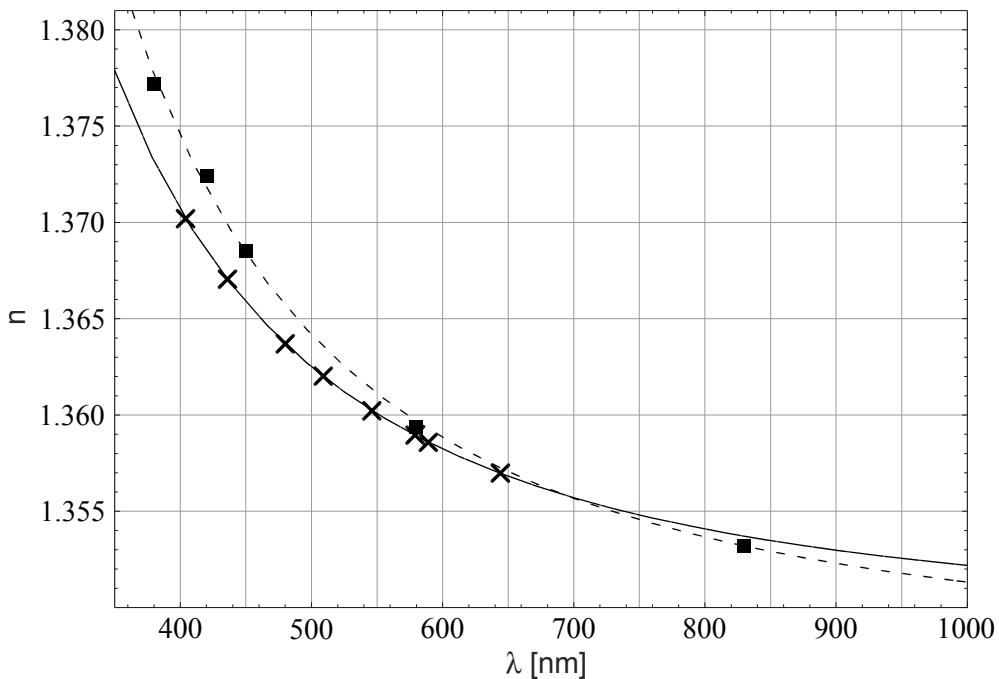


Abbildung A.1: Brechungsindexdaten der PTB Braunschweig (Kreuze) für 20 °C mit zugehörigem Sellmeier-Fit (durchgezogene Linie) und Daten aus [Lan96] (Quadrate) für 21,6 °C mit Fit (gestrichelte Linie).

In Abbildung A.1 sind sowohl die Werte aus Tabelle A.1 (Kreuze) als auch der Fit (durchgezogene Linie) dargestellt und man erkennt, dass sich die Daten gut fitten lassen, d. h. es treten nirgends größere Abweichungen auf. Zusätzlich wurden noch die Brechungsindices aus [Lan96] (Quadrate) und deren Fit (gestrichelte Linie) eingezeichnet, wodurch jetzt klar wird, warum die Rechnungen mit diesen Werten bis zu 20 % von den Messungen abweichen. Die Kurven sind zwar nicht direkt vergleichbar, da die Daten aus [Lan96] bei einer Temperatur von 21,6 °C aufgenommen wurden. Aber der Temperatureinfluss auf den Brechungsindex beträgt bei Aceton ca. $-0,00055 \text{ } \text{K}^{-1}$ und ist annähernd konstant für den sichtbaren Wellenlängenbereich, d. h. eine Temperaturänderung bewirkt nur eine Verschiebung der Brechungsindexkurve nach oben oder unten, nicht jedoch eine Veränderung der Krümmung, also der Dispersion. Aber in Abbildung A.1 ist deutlich zu sehen, dass die Daten aus [Lan96] eine deutlich stärkere Wellenlängenabhängigkeit aufweisen, also die Dispersion höher ist. Genau dieser Punkt wirkte sich jedoch enorm auf die Rechnungen zur Wellenvektoranpassung aus und, wie bereits erwähnt, ergaben sich Abweichungen bis zu 20 %.

Tabelle A.2: Wellenlängen der verschiedenen Raman-Linien von Aceton und die zugehörigen Brechungsindices, die mit Formel (A.2) berechnet wurden.

Raman-Linie	Wellenlänge λ [nm]	Brechungsindex
2. Anti-Stokes	405.66	1.37002
1. Anti-Stokes	460.32	1.36507
Pump	532.00	1.36086
1. Stokes	630.12	1.35734
2. Stokes	772.62	1.35446
3. Stokes	998.40	1.35220

In Tabelle A.2 sind schließlich die mit Formel (A.2) berechneten Brechungsindices für die benötigten Stokes- und anti-Stokes-Komponenten und deren Wellenlänge angegeben. Die auf den ersten Blick unsinnig vielen Nachkommastellen bei den Wellenlängen haben den Grund, dass für die Theorie zwar nicht die hohe Genauigkeit, aber die hohe Symmetrie der Stokes und anti-Stokes-Wellenlängen bezüglich der Pumpwellenlänge wichtig ist. Denn die Wellenlängen werden aus der Frequenz des Pumplichts und der Raman-Frequenzverschiebung ermittelt und rechnet man nun in Wellenlängen um, so entsteht durch das zwangsweise Runden eine Asymmetrie. Geschieht dieses Runden auf zu wenige Stellen, so ist die Asymmetrie so groß, dass sich deutliche Unterschiede zu einer exakten Rechnung ohne Rundungsfehler ergeben. In Tabelle A.2 sind nun so viele Stellen angegeben, dass bei der graphischen Auftragung der Theoriekurven keine Abweichungen zu einer exakten Rechnung beobachtet werden konnten.

Erwähnt werden sollte noch, dass die Labortemperatur je nach Jahreszeit von ca. 17 bis 23 °C schwankte. Diese Schwankungen wirken sich natürlich auf den Brechungsindex aus, berechnet man nun aber sämtliche Theoriekurven aus Kapitel 4 mit diesen Extremtemperaturen, so zeigte sich in keiner Kurve ein bemerkenswerter Unterschied. Deshalb wurden für alle Rechnungen die Werte für 20 °C verwendet.

B Optische Daten von Wasserstoff

Für die Untersuchungen von stimulierter Raman-Streuung ist Wasserstoffgas ein ideales Medium, da andere nichtlineare Effekte (z. B. Selbstfokussierung, stimulierte Brillouin-Streuung), die die Messungen beeinflussen könnten, nicht bzw. nicht messbar auftreten. Weiterhin weist Wasserstoff eine noch etwas größere Raman-Frequenzverschiebung als Aceton auf. Die verschiedenen Stokes- und anti-Stokes-Linien sind auch hier mit dem Auge eindeutig zuzuweisen. Ebenso besitzt Wasserstoff eine hohe Raman-Verstärkung, was trotz des zur Verfügung stehenden, beschränkten Lasersystems eine messbare Raman-Streuung ergab.

Die dominierenden Raman-Linien in Wasserstoff sind die Übergänge aus dem so genannten Q-Zweig, d. h. die Rotationsquantenzahl J bleibt erhalten ($\Delta J = 0$). Es handelt sich also um einen reinen Schwingungs-Raman-Effekt, wobei die Schwingungsquantenzahl vom Grundzustand $v = 0$ in den ersten angeregten Zustand $v = 1$ wechselt. Da J nicht festgelegt ist, existieren folglich viele Q(J)-Raman-Linien. Allerdings zeigen Messungen, dass für die stimulierte Raman-Streuung nur die Q(1)-Raman-Linie mit einer Frequenzverschiebung von $\bar{v} = 4155 \text{ cm}^{-1}$ von Bedeutung ist. Denn die Q(0)- und Q(2)-Linien weisen einen Raman-Verstärkungsfaktor g_0 auf, der circa eine Größenordnung kleiner ist, als der der Q(1)-Linie, alle anderen sind noch kleiner. Bei der Q(1)-Raman-Linie hat Wasserstoffgas einen Verstärkungsfaktor $g_0 \approx 2,6 \frac{\text{cm}}{\text{GW}}$ [Lög94] und eine Linienbreite $\Delta \bar{v}_R = 0,154 \text{ cm}^{-1}$ [Lög94] bei einem Druck von 100 bar. Sämtliche Quellen für die Zahlenwerte und eine genauere Beschreibung der Q(1)- und der anderen Q(J)-Übergänge sind in [Lög94] in Kapitel 3.5 nachzulesen, sind aber in dieser Arbeit nicht weiter von Bedeutung.

Für die Berechnung der Konuswinkel der verschiedenen Stokes- und anti-Stokes-Moden mit Hilfe der Wellenvektoranpassung ist es nötig, den Brechungsindex von Wasserstoffgas möglichst gut zu kennen. Genau gesagt sind die exakten Brechungsindices bei den auftretenden Wellenlängen (Pump-, 1. Stokes-, 1. anti-Stokes-, 2. Stokes-Wellenlänge, etc.) in

Abhängigkeit vom Gasdruck nötig, man braucht also sowohl die Wellenlängen- als auch die Druckabhängigkeit.

Um eine gute Näherung für die benötigten Wellenlängen zu erhalten, wurden mehrere Messungen des Brechungsindex bei konkreten Wellenlängen mit Hilfe der Sellmeier-Formel gefittet. Die Daten stammen von verschiedenen Quellen und sind in [Lan96] zusammengefasst, alle wurden jedoch unter Normalbedingungen ermittelt, d. h. bei der Dichte ρ_0 , dem Druck $p_0 = 760$ Torr und der Temperatur $T_0 = 273$ K. Der Fit nach der Sellmeier-Formel mit Mathematica ergibt für den wellenlängenabhängigen Brechungsindex

$$n^{\rho_0}(\lambda) = 1 + 10^{-6} \left(\frac{23264,4}{175 - 10^6 \lambda^{-2}} + \frac{69,5321}{20 - 10^6 \lambda^{-2}} \right), \quad (\text{B.1})$$

wobei die Wellenlänge λ in nm eingesetzt werden muss.

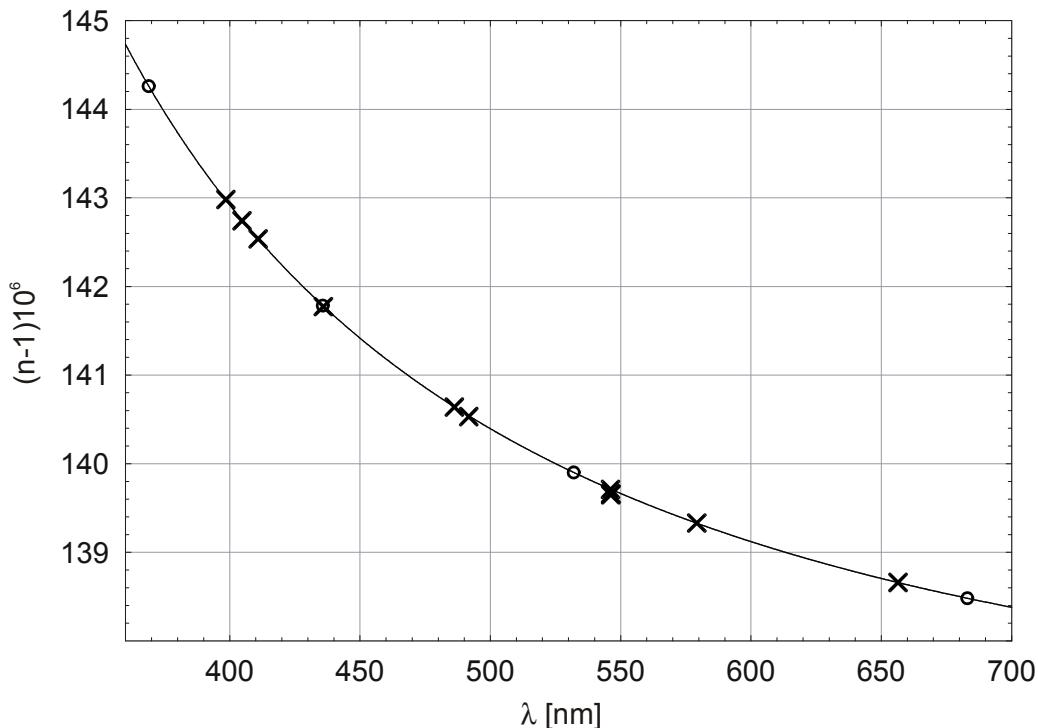


Abbildung B.2: Brechungsindex von Wasserstoffgas in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ unter Normalbedingungen. Die durchgezogene Linie zeigt den Fit nach Gleichung (B.1) durch die Literaturdaten [Lan96] (Kreuze). Die Ringe markieren die benötigten Daten für die Raman-Linien (siehe auch Tabelle B.1).

In Abbildung B.2 sind die verwendeten Brechungsindexdaten als Kreuze und der Fit als durchgezogene Linie eingezeichnet, zusätzlich wurden die für die Raman-Streuung benö-

tigten Daten als Kreise eingezeichnet. Letztere sind nochmals in Tabelle B.1 zusammengefasst. Sowohl in der Tabelle als auch in der Abbildung B.2 wird die für Gas-Brechungsindices übliche Angabe in $(n-1)10^6$ verwendet.

Tabelle B.1: Exakte Wellenlängendaten und mit Formel (B.1) berechnete Brechungsindices bei Normalbedingungen für die verschiedenen Raman-Linien.

Raman-Linie	Wellenlänge λ [nm]	Brechungsindex $10^6(n^{\rho_0} - 1)$
2. anti-Stokes	368,9031	144,262
1. anti-Stokes	435,6882	141,785
Pump	532,0000	139,901
1. Stokes	682,9765	138,482

Auch hier wurden aus dem gleichen Grund wie bei Aceton (siehe Anhang A) die Wellenlängen ungewöhnlich genau auf 4 Nachkommastellen angegeben, da beim Runden auf 3 Stellen schon eine deutliche Veränderung in den damit berechneten Werten der Brechungsindices erkennbar war.

Für die Abhängigkeit des Brechungsindex vom Gasdruck in Wasserstoff liefert [Hil55] die Daten für die normierte Dichte ρ/ρ_0 für einen Druckbereich von 0,01 bis 100 atm bei verschiedenen Temperaturen. Um die Werte für die Labortemperatur von ca. 293 K zu erhalten, wurde der Datensatz für 290 und 300 K interpoliert und diese dann mit Mathematica gefittet, was folgende Formel lieferte:

$$\frac{\rho}{\rho_0} = \frac{0,987167p}{1,056791 + 0,000663630p} \quad (\text{B.2})$$

Die Auswirkungen der Dichteänderung auf den Brechungsindex zeigt die in [Lan96] angegebene Formel:

$$n^\rho = 1 + (n^{\rho_0} - 1) \frac{\rho}{\rho_0}. \quad (\text{B.3})$$

Somit haben wir eine Formel, die den Brechungsindex sowohl in Abhängigkeit von der Wellenlänge als auch vom Druck angibt. Hier sollte jedoch beachtet werden, dass die Daten aus dem Zeitraum von 1909 bis 1937 stammen und dementsprechend Fehler aufweisen können, wie es auch bei Aceton aufgetreten ist (siehe Anhang A).

Literaturverzeichnis

- [Bai02] J. Baier, *Stokes- anti-Stokes-Kopplung bei der stimulierten Raman-Streuung mit Bessel-Lichtbündeln*, Diplomarbeit, Universität Regensburg, 2002.
- [Bru03] Messung der Firma Bruker, 2003
- [Dur87] J. Durnin, *Exact solutions for nondiffracting beams*, J. Opt. Soc. Am. B 4 (1987) 651.
- [Gad99] R. Gadonas, V. Jarutis, A. Marcinkevicius, V. Smilgevicius, A. Stabinis, V. Vaicaitis, *Transverse phase-matching in stimulated Raman scattering by a Bessel beam*, Opt. Commun. 169 (1999) 189.
- [Gol95] I. Golub, *Superluminal-source-induced emission*, Opt. Lett. 20 (1995) 1847.
- [Hil55] J. Hilsenrath, *Tables of Thermal Properties of Gases*, National Bureau of Standard Circular 564, 1955
- [Int05] <http://www.intel.com/technology/silicon/sp/>
- [Lan96] Landolt-Börnstein (New Series), *Volume 38 Optical Constants, Subvolume B, Refractive Indices of Organic Liquids*, Springer, CD-ROM 1426, 1996.
- [Lög94] S. Lögl, *Stimulierte Raman-Streuung mit einem Gaußschen Laser-Bündel in Wasserstoffgas*, Dissertation, Universität Regensburg, 1994.
- [Nak82] R. Nakagaki, I. Hanazaki, *Overtone Spectra of CH Stretching Vibrations in Acetone and Acetaldehyde*, J. Phys. Chem. 86 (1982) 1501.
- [Nig95] L. Niggli, *Die Erzeugung von Bessel-Lichtbündeln und ihre Anwendung bei der stimulierten RAMAN-Streuung*, Diplomarbeit, Universität Regensburg, 1995.
- [Nig97] L. Niggli, M. Maier, *Efficient conical emission of stimulated Raman Stokes light generated by a Bessel pump beam*, Optics Lett. 22 (1997) 910.
- [Nig98] L. Niggli, M. Maier, *Gain-guided modes in stimulated scattering processes with diffraction-free pump beams*, Opt. Commun. 154 (1998) 65.

- [Nig99] L. Niggel, *Beugungsfreie Ausbreitung von Licht in optisch nichtlinearen Medien am Beispiel der stimulierten Raman-Streuung mit Bessel-Bündeln*, Dissertation, Universität Regensburg, 1999.
- [Pap68] A. Papoulis, *Systems and Transforms with Applications in Optics*, 1. Aufl., McGraw-Hill, Inc., New York (1968).
- [PTB05] Physikalisch-Technische Bundesanstalt, *Prüfbericht, Aceton p.a.*, Braunschweig, 2005
- [Sch03] U.T. Schwarz, J. Zeitler, J. Baier, M. Maier, S. Sogomonian, *Stimulated anti-Stokes Raman scattering with Bessel beams in hydrogen gas*, J. Opt. Soc. Am. B 20 (2003) 1750.
- [Sog99] S. Sogomonian, L. Niggel, M. Maier, *Nonplanar phase-matching of stimulated anti-Stokes Raman scattering pumped by a Bessel beam*, Opt. Commun. 162 (1999) 261.
- [Vai00] V. Vaicaitis, A. Stabinis, A. Marcinkevicius, V. Jarutis, *Second-order Stokes and anti-Stokes coupling in stimulated Raman scattering by Bessel beam*, Opt. Commun. 178 (2000) 461.
- [Zei01] J. Zeitler, *Druckabhängigkeit der stimulierten Raman-Streuung mit Bessel-Lichtbündeln in H₂-Gas*, Diplomarbeit, Universität Regensburg, 2001.

Teile dieser Arbeit wurden veröffentlicht:

- T. Manz, U.T. Schwarz, Max Maier, *Stimulated Stokes and anti-Stokes Raman scattering in liquid acetone with a Bessel beam*, Optics Communications 235 (2004) 201-217
- T. Manz, U.T. Schwarz, Max Maier, *Erratum to „Stimulated Stokes and anti-Stokes Raman scattering in liquid acetone with a Bessel beam“ [Opt. Commun. 235 (2004) 201]*, Optics Communications 249 (2005) 363-365

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bedanken bei:

- Prof. Dr. Max Maier für die freundliche Aufnahme am Lehrstuhl, die unkomplizierte Zusammenarbeit und die hervorragende Betreuung
- Thomas Ascherl für die sehr kompetente und tatkräftige Unterstützung bei allen Versuchsaufbauten und die vielen aufmunternden Worte
- Allen Mitgliedern des Lehrstuhls Maier für die gute und harmonische Zusammenarbeit und die angeregten Diskussionen
- Meinen langjährigen Kommilitonen Petra Schneider, Jürgen Moser, Manfred König und Joachim Stahl für die abwechslungsreiche Studien- und Promotionszeit und die vielen außeruniversitären Aktivitäten
- Meiner Mutter für die unermüdliche Unterstützung während meines Studiums und der Promotion

Eidesstattliche Erklärung

Ich erkläre hiermit an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe; die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe des Literaturzitats gekennzeichnet.

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Herstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe eines Promotionsberaters oder anderer Personen in Anspruch genommen. Niemand hat von mir weder unmittelbar noch mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

(Thomas Manz)